Transformations au cours de refroidissements continus de l'alliage Ti4A13Nb

F. Sadi, C. Servant

► To cite this version:

F. Sadi, C. Servant. Transformations au cours de refroidissements continus de l'alliage Ti4A13Nb. Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C2), pp.C2-241-C2-246. 10.1051/jp4:1996234 . jpa-00254212

HAL Id: jpa-00254212

<https://hal.science/jpa-00254212>

Submitted on 1 Jan 1996

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.

Transformations au cours de refroidissements continus de l'alliage $\text{Ti}_4\text{Al}_3\text{Nb}$

F.A. Sadi et C. Servant

Laboratoire de Métallurgie Structurale, U.R.A. 1107 du C.N.R.S., I.S.M.A., Université de Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France

Abstract. This paper summarizes the structural transformations taking place in the $\text{Ti}_4\text{Al}_3\text{Nb}$ alloy during continuous coolings from 1200°C. We have shown that the phase transformations and the resulting microstructures are highly dependent on the cooling rate.

1. INTRODUCTION

En raison d'applications potentielles, le système Al-Nb-Ti a fait l'objet de très nombreux travaux ces dernières années au voisinage des phases $\alpha_2\text{-Ti}_3\text{Al}$ (DO19) et $\gamma\text{-TiAl}$ (L1₀) partiellement substituées en Nb. Le système, très complexe, dans un état d'équilibre, présente plusieurs composés ternaires avec un domaine de composition plus ou moins important: la phase orthorhombique Ti_2AlNb (Cmcm, Banerjee et al, 1988), le composé $\text{Ti}_4\text{Al}_3\text{Nb}$ de structure B8₂ (P6₃/mmc, Strychor et al, 1988, Bendersky et al, 1990), la phase γ_1 récemment mise en évidence, de composition atomique 60Al-20Ti-20Nb (Chen et al, 1994) et par ailleurs des phases dénommées T2 et T1 (Perepezko et al, 1990) qui sont sujettes à controverses.

Le présent travail sur le composé $\text{Ti}_4\text{Al}_3\text{Nb}$ fait partie d'une étude plus large des transformations à l'équilibre et hors d'équilibre dans les domaines de compositions précédemment cités. Après homogénéisation, l'alliage a été refroidi à différentes vitesses allant des trempes énergiques à des conditions plus douces se rapprochant des conditions d'équilibre afin d'établir un diagramme du type T.R.C. (Transformations au cours de Refroidissements Continus).

Une modélisation par l'approche thermodynamique du diagramme de phases du système ternaire Al-Nb-Ti, consistant en une réoptimisation de la base de données de Kattner et al (1992) sur un ensemble de données beaucoup plus conséquent est en cours. Elle permet de calculer, à l'équilibre et hors d'équilibre, les chemins de refroidissement des alliages depuis le liquidus et d'interpréter la microstructure observée.

2. PROCEDURE EXPERIMENTALE

2.1. Matériau

L'alliage de composition atomique en %: 52.3Ti-36.9Al-10.8Nb a été élaboré dans un four à électrode consommable par fusion à l'arc électrique sous vide. Le matériau brut d'élaboration se présente sous forme de disque de 15 cm de diamètre et de 1.5 cm d'épaisseur. Sept refusions ont été nécessaires pour assurer à l'alliage une bonne homogénéité. Les niveaux de pureté en oxygène, azote et hydrogène sont respectivement de 600, 120 et 40 ppm en masse. Sa température de fusion déterminée par pyrométrie optique dans un four haute fréquence et analyse thermique différentielle est de 1660°C, soit supérieure de l'ordre de 300 °C à celle calculée par simulation à l'aide de la base de Kattner et al [8].

2.2. Méthodes expérimentales

Nous avons utilisé la dilatométrie de trempe ultra-rapide avec un appareillage du type DT 1000 qui permet de mettre en oeuvre des vitesses de refroidissement allant de 150 à 0.08°C/s. Les échantillons se présentent sous forme de parallélépipèdes de 12x2x2mm³; la température est mesurée à l'aide de thermocouples platine/platine-rhodié 10% soudés directement sur les échantillons. La thermorésistométrie, la microcalorimétrie différentielle, et l'analyse thermique différentielle ont été conjointement utilisées pour des vitesses de refroidissement plus faibles, allant de 20°C/s à 0.016°C/s. Dans tous les cas, les échantillons sont portés à la température de mise en solution de 1200°C pendant 150 s sous une pression de 1 atmosphère d'hélium C (< à 2 ppm d'oxygène). Après ces traitements, les échantillons sont caractérisés par

diffraction des rayons X à l'aide d'une anticathode de cuivre ($\lambda_{K\alpha} = 1.5418 \text{ \AA}$) et la microdureté Vickers est mesurée sous une charge de 1000 N pendant un temps de 25 s. Nous avons tout d'abord suivi l'évolution de la microstructure par microscopie électronique à balayage sur plans polis, puis par microscopie électronique à transmission; à cet effet, des lames minces ont été préparés par polissage électrolytique en utilisant la technique du double jet, dans un bain contenant 300 ml de méthanol, 175 ml de butanol et 30 ml d'acide perchlorique sous une tension de 15V et une température de -50°C .

3. RESULTATS ET DISCUSSION

L'alliage étudié avait la composition atomique suivante en %: 52.3Ti-36.9Al-10.8Nb (soit 55.6Ti-22.3Al-22.8Nb % massique). Sa microstructure à l'état brut de livraison, représentée sur la Figure 1, est constitué de gros grains ex- β . On note, de plus, deux sortes d'aiguilles α_2 : des grosses issues des joints de grains β , notées: W (Widmanstätten)JG et de très fines, intragranulaires, notées WIG.

Le tracé du diagramme T.R.C de l'alliage après homogénéisation à 1200°C est représenté sur la Figure 2.

Figure 1: Micrographie électronique montrant les ex-grains β , les aiguilles α_2 WJG et WIG.

Figure 2: Tracé du diagramme T.R.C. de l'alliage de composition : Ti-36.9Al-10.8Nb (% atomique).

Cette homogénéisation a eu lieu dans le domaine biphasé ($\alpha + \beta$), comme le confirment la microstructure observée après trempe ultra-rapide (150°C/s) et le tracé de la section isothermale à 1200°C du diagramme de phase ternaire Al-Nb-Ti qui nous a permis de calculer à l'équilibre la composition des phases α et β ainsi que leur fraction volumique respective, Figure 3 et Tableau 1. On notera le bon accord entre les résultats obtenus par l'expérience et le calcul.

Figure 3: Coupes isothermes établies par calcul thermodynamique à : a) 1200°C , b) 1038°C

Figure 3c: Micrographie électronique à balayage montrant la formation de la phase γ .

Phases	Méthode	Ti	Al	Nb	Fraction vol.
β	(1)	50.67 ± 1	36.87 ± 1	12.46 ± 1	0.6 ± 0.05 (1)
	(2)	51.25	36.56	12.19	0.6 (2)
α	(1)	52.44 ± 1	37.01 ± 1	10.55 ± 1	0.4 ± 0.05 (1)
	(2)	53.85	37.40	8.75	0.4 (2)

Tableau 1: Composition atomique en % et fraction volumique des phases présentes à 1200°C, déterminées par microanalyse X et analyse d'images (1) et calcul thermodynamique (2).

Pour les échantillons refroidis rapidement (50 à 150°C/s) à partir du domaine ($\alpha+\beta$), la microstructure, à la température ambiante, est composée de deux phases ordonnées α_2 (DO19-Ti3Al) et B2. A l'intérieur des gros grains B2, la phase ω'' athermale a précipité sous forme de particules très fines et qui apparaissent diffuses lors de l'observation en champ sombre en microscopie électronique à transmission. Les Figures 4a et b représentent les clichés de diffraction de la phase ω'' athermale respectivement selon les axes de zone $\langle 113 \rangle_\beta$ et $\langle 111 \rangle_\beta$.

La formation de la phase ω à partir de la phase B2 a déjà été observée dans différents alliages [10]. La phase β haute température, refroidie rapidement, se transforme en une phase B2 de structure ordonnée (type CsCl) puis en la phase ω'' athermale, par une transformation displacive [10]. Cette phase hérite de l'ordre de la phase mère B2. Dans le cas de notre alliage, la formation de la phase ω'' athermale est confirmée sur les diagrammes de diffraction d'axe de zone $\langle 113 \rangle_\beta$ et $\langle 111 \rangle_\beta$, représentés sur la Figure 4, par la présence de lignes de diffusion caractéristiques ainsi que par celle de tâches allongées situées aux $1/3\langle 112 \rangle^*$ et $2/3\langle 112 \rangle^*$ de la coupe d'axe de zone $\langle 113 \rangle_\beta$.

Pour les plus faibles vitesses de refroidissement, à partir de la phase mère B2, apparaît la phase ω'' isothermale, puis B8₂. Les grains de cette phase atteignent la taille de 400 nm pour la vitesse de 0.08°C/s. Les Figures 4c et d montrent les diagrammes de diffraction de la phase ω isothermale suivant les axes de zone $\langle 113 \rangle_\beta$ et $\langle 110 \rangle_\beta$. Sur les courbes dilatométrique dérivée et d'analyse thermique différentielle, nous avons, de plus, relevé un accident thermique entre 1050 et 1025°C, que nous avons associé à la formation de la phase γ . Cette phase a été observée en microscopies électroniques à balayage et à transmission. Sa taille varie entre 1 et 2 microns. Sa composition déterminée par microanalyse X (STEM) est reportée dans le Tableau 2.

Figure 4a: Diagramme de diffraction électronique d'axe de zone $\langle 113 \rangle_\beta$, pour la phase ω'' athermale.

Figure 4: Diagrammes de diffraction électronique d'axes de zones: b) $\langle 111 \rangle_\beta$, pour la phase ω'' athermale; c) $\langle 113 \rangle_\beta$, d) $\langle 110 \rangle_\beta$ pour la phase ω isothermale.

Phases	Méthode	Ti	Al	Nb
B2/ ω'' (B8 ₂)	(1)	51.7 ± 1	35.2 ± 1	13.1 ± 1
	(2)	50.0	37.5	12.5
$\alpha 2$ (D019)	(1)	52.4 ± 1	36.8 ± 1	10.8 ± 1
	(2)	57.3	35.5	7.2
γ (L10)	(1)	44.6 ± 1	43.9 ± 1	11.5 ± 1
	(2)	43.6	45.8	10.6

Tableau 2: Composition atomique des phases présentes dans l'alliage Ti₄Al₃Nb refroidi à 0.08°C/s depuis 1200°C, déterminées par STEM (1) et calcul thermodynamique (2).

La phase ω isothermale précipite dans la matrice B2 sous forme de petits grains dont la taille évolue en fonction inverse de la vitesse de refroidissement comme cela est indiqué dans la Figure 5; ce qui suggère que le processus qui gouverne cette transformation est la diffusion. D'après le calcul thermodynamique, la phase B2 devrait se transformer entièrement en phase B8₂. Toutefois, dans le cas des vitesses de refroidissement mises en oeuvre et pour la composition étudiée qui est un peu différente de celle stoechiométrique du composé Ti₄Al₃Nb, cette phase n'a pas été observée seule à la température ambiante, ce qui montre que l'équilibre n'est pas encore atteint. On notera, de plus, sur la Figure 5, que la donnée de Bendersky et al (1990) se place très bien sur notre courbe expérimentale.

Figure 5: Evolution de la taille des domaines ω en fonction de la vitesse de refroidissement, dans l'alliage Ti-36.9Al-10.8Nb (% atomique).

Figure 6: Micrographies électroniques en champ sombre montrant l'évolution de la taille des domaines ω pour les vitesses de refroidissement suivantes: a) $V_r = 150^\circ\text{C/s}$, b) 10°C/s , c) 2°C/s , d) 0.08°C/s . dans l'alliage Ti-36.9Al-10.8Nb (% atomique).

D'après Bendersky [1] un nouvel ordre résultant d'un changement d'occupation chimique des atomes dans la phase ω'' conduit à la formation de la phase $B8_2$ de plus grande symétrie selon la réaction $B2 \rightarrow \omega'' \rightarrow B8_2$; ce qui montre que la phase ω'' est métastable.

Dans les alliages binaires Ti-Al, la phase γ peut se former suivant la réaction eutectoïde $\alpha \rightarrow \gamma + \alpha_2$ aux environs de 40% atomique d'aluminium à 1120°C , [11]. Cela a été confirmé récemment par Hellwig et al, [12]. La composition en % atomique de la phase γ déterminée par STEM (Tableau 2) coïncide bien avec celle trouvée dans la littérature [1,14]. De plus, le calcul thermodynamique à l'équilibre, prévoit la formation de cette phase à partir de 1150°C . Sa composition indiquée dans le Tableau 2 est en bon accord avec l'expérience ainsi que la fraction volumique calculée de l'ordre de 0.5%. La Figure 3 montre l'évolution de l'alliage à l'aide des deux coupes isothermes calculées à 1200°C , 1038°C .

4. CONCLUSION

L'établissement du diagramme TRC a montré que l'équilibre n'est pas loin d'être atteint pour une vitesse de refroidissement de l'ordre de 0.08°C/s et qu'un accord satisfaisant est trouvé entre le calcul et l'expérience. Au terme d'un tel refroidissement, les trois phases mises en évidence dans l'alliage étudié ont des compositions en niobium relativement proches (de l'ordre de 2% atomique). En raison des nombreux domaines de phases existants au voisinage de la composition $\text{Ti}_4\text{Al}_3\text{Nb}$, l'obtention du composé stoechiométrique seul nécessite une grande maîtrise de la composition lors de l'élaboration. La dureté de l'alliage triphasé est plus faible que celle mesurée pour les alliages refroidis rapidement ce qui laisse préjuger d'une moins faible ductilité.

Remerciements

Les auteurs remercient Dr D. BANERJEE, du Defence Metal Research Laboratory, Hyderabad, Inde et Dr Y. Bigay, du CEREM, LETRAM, Centre d'Etudes de Saclay, France pour l'élaboration des alliages. Nous sommes reconnaissants envers Dr A. Hazotte et H. Wöllmer, du LSG2M, Ecole des Mines de Nancy, France, pour les essais de thermorésistométrie.

Références

- [1]: L.A. BENDERSKY, W.J. BOTTINGER, B. P. BURTON, F. S. BIANCANIELLO and C. B. SHOEMAKER, *Acta Metall. Mater.*, **38**, N°6, (1990), 931-943.
- [2]: B. MOZER, L. A. BENDERSKY and W. J. BOTTINGER, *Scripta Metallurgica et Materialia*, **24**, (1990), 2363-2368.
- [3]: L.A. BENDERSKY, W.J. BOTTINGER and A. ROYTBURD, *Acta Metall. Materi.*, **39**, N°8, (1991), 1959-1969.
- [4]: K. MURALEEDHARAN, A. K. GOGIA, T. K. NANDY, D. BANERJEE and S. LELE, *Metallurgical Transactions A*, **23A**, (1992), 401-416.
- [5]: K. MURALEEDHARAN, T.K. NANDY, D. BANERJEE and S. LELE, *Metallurgical Transactions A*, vol. **23A**, (Feb. 1992), 417-431.
- [6]: J. H. PEREPEZKO, Y. A. CHANG, L. E. SEITMAN, J. C. LIN, N. R. BONDA, T. J. JEWETT and J. C. MISHURDA, in *High Temperature Aluminides and Intermetallics* (edited by S.H. Wang, C. T. Liu, D. P. Pope, and J. O. Stiegler), Warrendale, Pa (1990), 19-47.
- [7]: A. ZDZIOBEK, M. DURAND-CHARRE, J. DRIOLE and F. DURAND, *Z. Metallkd.*, **86**, (1995), 1-7.
- [8]: U. R. KATTNER and W. J. BOTTINGER, *Materials Science and Engineering*, **A 152**, (1992), 9-17.
- [9]: B. SUNDMAN, B. JANSSON and J. O. ANDERSON, **2**, N°9, (1985), 153-190.
- [10]: R. STRYCHOR, J. C. WILLIAMS, W. A. SOFA, *Metallurgical Transactions A*, **19A**, (1988), 225-234.
- [11]: S. A. JONES, R. D. SHULL, A. J. McALISTER and M. J. KAUFMAN, *Scripta Metallurgica et Materialia*, **22**, (1988), 1235.
- [12]: A. HELLWIG, G. INDEN and M. PALM, *Scripta Metallurgica et Materialia*, **27**, (1992), 143-148.
- [13]: H. NAKAMURA, M. TAKEYAMA, Y. YAMABE and M. KIKUCHI, *Scripta Metallurgica et Materialia*, **28**, (1993), 997-1002.
- [14]: G. CHEN, W. ZHANG, Y. WANG, J. WANG, Z. SUN, *Structural Intermetallics*, The Minerals, Metals & Materials Society, 1993, 319-324.H.