



Étude du comportement des bifilms lors de solidifications contrôlées d'alliages d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si avec et sans centrifugation

Mémoire

Julien April-Borgeat

Maîtrise en génie des matériaux et de la métallurgie - avec mémoire
Maître ès sciences (M. Sc.)

Québec, Canada

© Julien April-Borgeat, 2021

Étude du comportement des bifilms lors de solidifications contrôlées d'alliages d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si avec et sans centrifugation

Mémoire

Julien April-Borgeat

Sous la direction de :

Dominique Dubé, directeur de recherche
Daniel Larouche, codirecteur de recherche

Résumé

Les bifilms sont des inclusions solides, présentes en très grand nombre dans l'aluminium et sont néfastes au niveau des propriétés mécaniques des alliages. Il a été observé que lors de solidification s'approchant de l'équilibre, les intermétalliques Al_3Fe et $Al_5FeSi-\beta$ ne peuvent germer que sur les films d'oxyde présents. Ayant une masse volumique bien plus élevée que l'aluminium liquide, ces intermétalliques entament une sédimentation dès leur formation et entraînent donc avec eux les bifilms sur lesquels ils ont germé. L'objectif principal de ce projet est l'étude du comportement des bifilms dans des alliages d'aluminium enrichi en fer lors de solidifications lentes. Un alliage Al-3.74%Fe faisant germer Al_3Fe et un autre Al-1.16%Fe-13.5%Si faisant germer $Al_5FeSi-\beta$ ont été produits et coulés en barreaux. Un appareillage capable de centrifuger les barreaux a été utilisé pour générer une force G supérieure à l'accélération gravitationnelle terrestre lors de la solidification. Certains barreaux ont été centrifugés lors de leur solidification, d'autres non. Tous les barreaux ont été découpés perpendiculairement à l'axe en séparant les différentes zones d'accumulation de particules des zones de métal sans particules accumulées. Les résultats de cartographie élémentaire XRF permettent de confirmer que la sédimentation des intermétalliques s'opère pour chaque alliage créant une zone d'accumulation de particules au bas des échantillons. Une technique a été développée pour quantifier et localiser les bifilms dans ces zones découpées; le Test à Pression Réduite Modifié – TPRM. Ce test révèle les bifilms en les faisant gonfler lors d'une refusion sous pression contrôlée. Une fois solidifiés, les échantillons ont été coupés et polis, les pores ont été dénombrés et la surface de métal mesurée pour connaître le nombre de pores/cm² de métal. Les résultats de TPRM nous montrent que les intermétalliques ont aussi entraîné avec eux les bifilms. Les zones nettoyées de leurs bifilms montrent une réduction de leur nombre de pores/cm² allant jusqu'à 53 % pour l'alliage Al-Fe et de 63 % pour l'alliage de Al-Fe-Si en comparaison à leur échantillon de référence respectif. Cette diminution atteint minimalement 40% chez tous les échantillons nettoyés de leur bifilms, qu'ils soient centrifugés ou non.

Abstract

Bifilms are solid inclusions, present in large numbers in aluminum and are detrimental to the mechanical properties of alloys. It has been observed that upon solidification approaching equilibrium, the intermetallic Al_3Fe and $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ can only nucleate on the oxide films present. Having a much higher density than liquid aluminum, these intermetallic particles start sedimentation as soon as they are formed and therefore carry with them the bifilms on which they have nucleated. The main objective of this project is the study of the behavior of bifilms in iron-enriched aluminum alloys during slow solidifications approaching equilibrium. An Al-3.74%Fe alloy which nucleates Al_3Fe and another Al-1.16%Fe-12.6%Si alloy which nucleates $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ were cast into bars. An apparatus capable of centrifuging the bars was used to generate a G force greater than the Earth's gravitational acceleration during solidification. Some bars were centrifuged during solidification, others were not. All the bars were cut perpendicular to the axis, separating the different areas of particle accumulation from the areas of metal without accumulated particles. The XRF elemental mapping results allow us to confirm that intermetallic sedimentation occurs for each alloy, creating a zone of particle accumulation at the bottom of the samples. A technique has been developed to quantify and locate the bifilms in these areas; the Modified Reduced Pressure Test - MRPT. This test reveals bifilms by swelling them during re-fusion under controlled pressure. Once solidified, the samples were cut and polished, the pores were counted, and the metal surface measured to calculate the number of pores/cm² of metal. The results of TPRM allow us to say that the intermetallic also carried the bifilms with them. The bifilm-cleaned areas show a reduction in their number of pores/cm² of up to 53 % for the Al-Fe alloy and 63 % for the Al-Fe-Si alloy in comparison to the value of their respective reference sample. This reduction reaches a minimum of 40 % in all samples cleaned of their bifilms, whether they were centrifuged or not.

Table des matières

Résumé	ii
Abstract	iii
Table des matières	iv
Liste des figures.....	vi
Liste des tableaux.....	viii
Liste des abréviations, sigles et acronymes	ix
Remerciements.....	x
Introduction.....	1
1. Mise en contexte.....	1
2. Problématique.....	1
3. Objectifs.....	3
4. Organisation du mémoire.....	4
1. État des connaissances	5
1.1. Rappels Théoriques.....	5
1.1.1. La centrifugation.....	5
1.1.2. La convection.....	9
1.2. Revue de littérature	10
1.2.1. Les bifilms	10
1.2.2. Le Test à Pression Réduite (TPR) - Reduced Pressure Test (RPT)	20
1.2.3. Le binaire Al-Fe et l'intermétallique Al_3Fe	21
1.2.4. Le ternaire Al-Fe-Si et l'intermétallique $Al_5FeSi-\beta$	25
2. Méthodologie	28
2.1. Approche expérimentale.....	28
2.2. Matériel.....	32
2.2.1. Matières premières utilisées pour préparer les alliages expérimentaux.....	32
2.2.2. Fours et creusets pour la préparation des alliages mères	33
2.2.3. Les creusets utilisés pour les essais de sédimentation, de centrifugation et les tests à pression réduite modifiés (TPRM)	34
2.2.4. Four de centrifugation	34
2.2.5. Le moule à barreaux utilisé pour préparer les spécimens destinés à la centrifugation, la sédimentation et les tests à pression réduite modifié (TPRM)....	36
2.3. Procédures expérimentales détaillées	37
2.3.1. Choix des alliages expérimentaux.....	37
2.3.2. Préparation des alliages mères	40
2.3.3. Procédure d'élaboration des alliages expérimentaux	41
2.3.4. Procédure pour les tests statiques (sédimentation naturelle) et en centrifugation dans le four rotatif.....	42
2.4. Techniques d'analyses	46
2.4.1. Échantillonnage des lingots et barreaux.....	46
2.4.2. Découpage, sablage et polissage.....	47
2.4.3. Métallographie.....	48
2.4.4. Analyse d'image.....	49
2.4.5. Spectroscopie d'émission optique par décharge électrique (OES)	49
2.4.6. Spectrométrie d'émission atomique au plasma par micro-ondes (MP-AES) ...	50
2.4.7. Microsonde et cartographie élémentaire en diffraction de longueur d'onde (Wavelength Diffraction Spectrum - WDS).....	51
2.4.8. Cartographie élémentaire en micro-fluorescence de rayons X (micro-XRF) ...	51
2.4.9. Test de solidification à pression réduite modifié – TPRM	52

3. Résultats.....	55
3.1. Composition chimique et microstructures des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe	55
3.1.1. Composition chimique de l'alliage expérimental Al-Fe.....	55
3.1.2. Microstructure des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe.....	58
3.2. Composition chimique et microstructures des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe-Si.....	61
3.2.1. Composition chimique de l'alliage expérimental Al-Fe-Si	61
3.2.2. Microstructure des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe-Si	63
3.3. Observation de bifilms	67
3.4. Résultats des essais de centrifugation et de sédimentation naturelle des barreaux	68
3.4.1. La microstructure des spécimens de l'alliage expérimental Al-Fe après solidification en sédimentation naturelle et en centrifugation	68
3.4.2. Microstructure des spécimens de l'alliage expérimental Al-Fe-Si après solidification en sédimentation naturelle et en centrifugation	77
3.5. Résultats des tests de TPRM de barreaux centrifugés et sédimentés d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si.....	86
3.6. Commentaires	91
Conclusion.....	97
Retour sur le travail	97
Travaux futurs	98
Bibliographie.....	100
Annexe A - Identification des lieux d'échantillonnage.....	105

Liste des figures

Figure 1-1 : Exemple de bifilms dans un alliage binaire Al-Fe, microscopie optique	12
Figure 1-2 : Solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium en fonction de la température. [18].....	14
Figure 1-3 : Schéma de la solidification eutectique rencontrant des bifilms, [28]	16
Figure 1-4 : Exemple de remontée de métal liquide et déchirure du film d'oxyde, [18]	19
Figure 1-5 : Portion de 0 à 8% fer du diagramme de phase Aluminium-Fer, [55].....	21
Figure 1-6 : Cartes de sélection de microstructures de l'alliage Al-Fe, [58]	23
Figure 1-7 : Cartes de sélection de microstructures de l'alliage Al-Fe, [58]	23
Figure 1-8 : Portion de 0 à 2% fer du diagramme de phases Al-12.55Si-xFe, [55]	25
Figure 1-9 : Diagramme de phases isotherme ternaire Al-Fe-Si à 600°C, [59].....	26
Figure 1-10 : Exemple de carte de sélection de microstructure pour Al-7Si-xFe, ($\tau_5 =$ Al ₈ Fe ₂ Si- α , et $\tau_6 =$ Al ₅ FeSi- β), [62]	27
Figure 2-1 : Procédure expérimentale en schéma.....	32
Figure 2-2 : Four et système rotatif utilisé pour la centrifugation et la sédimentation. Un seul creuset d'acier y est installé, mais le dispositif peut en recevoir 2 ou 4.	35
Figure 2-3: Schéma du montage des creusets allant dans le four rotatif, avec thermocouple.	36
Figure 2-4 : Demi-moule d'acier servant à couler les barreaux qui seront éventuellement insérés dans les creusets d'alumine pour les différents tests. Les trous ronds servent à aligner les deux parties du moule avec des gougeons d'alignement. Le poteyage est visible sous forme d'une fine poudre blanche à la surface de l'acier.....	37
Figure 2-5 : Taux de refroidissement de l'enceinte du four de centrifugation lorsque l'alimentation électrique est éteinte à 750°C.....	39
Figure 2-6 : Courbe de température du four, de l'alliage Al-Fe et du creuset lors d'un test de solidification à l'équilibre.	44
Figure 3-1 : Portion du diagramme de phases du binaire Al-Fe. La ligne rouge représente la concentration en fer de l'alliage Al-3.74Fe. [55]	56
Figure 3-2 : Macrographie de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié lentement et sédimenté naturellement. L'encadré en rouge présente le lieu approximatif de la Figure 3-3.	58
Figure 3-3 : Image en électrons rétrodiffusés de l'alliage Al-Fe refroidi lentement au four à partir de l'état liquide et emplacement des différents points d'analyses du Tableau 3-3.....	59
Figure 3-4 : Micrographie optique de l'alliage expérimental Al-Fe lors d'un refroidissement dans le moule a barreaux, loin des conditions d'équilibre A) intermétallique Al ₃ Fe en forme d'étoile à 10 branches; B) eutectique dissocié Al- Al ₆ Fe	61
Figure 3-5 : Portion du diagramme de phases de l'alliage produit, Al-13.5Si-XFe qui montre pour la concentration en fer de l'alliage Al-13.5Si-1.16Fe et les températures des événements de solidification [55].	62
Figure 3-6 : Macrographie de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement et sédimenté naturellement. L'encadré en rouge présente le lieu approximatif de la Figure 3-7.....	64
Figure 3-7 : Image en électrons rétrodiffusés de l'alliage Al-Fe-Si refroidi lentement au four à partir de l'état liquide et emplacement des différents points d'analyses du Tableau 3-6.	65
Figure 3-8 : Métallographie optique de bifilms et leur intermétalliques associés dans des alliages Al-Fe-Si et Al-Fe. Les flèches rouges indiquent les bifilms. A) et B) Alliage	

expérimental Al-Fe-Si tel que coulé dans le moule à barreaux, C) Partie centrale d'un alliage expérimental d'Al-Fe centrifugé lors de sa solidification lente.	67
Figure 3-9 : Distribution du fer dans une coupe longitudinale d'un barreau d'alliage expérimental Al-Fe réalisée par fluorescence des rayons X. Le rouge représente la distribution du fer. A) échantillon solidifié sous sédimentation naturelle, B) échantillon solidifié sous centrifugation.....	69
Figure 3-10 : Distribution du fer en fluorescence des rayons X pour un échantillon de 20 grammes d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié en sédimentation naturelle. L'entièreté de l'échantillon est présentée.....	71
Figure 3-11 : Métallographie optique à 50X d'échantillons solidifiés lentement sous sédimentation naturelle - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone sous la frontière.	73
Figure 3-12 : Portion de barreau d'alliage d'Al-Fe tel que coulé. L'échantillon a été usiné sur sa circonférence révélant les intermétalliques ayant germés sur les parois.	74
Figure 3-13 : Métallographie optique à 50X d'échantillons solidifiés lentement sous centrifugation - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone sous la frontière.....	77
Figure 3-14 : Cartographie élémentaire le long d'une coupe longitudinale d'un barreau d'alliage expérimental Al-Fe-Si réalisée en fluorescence des rayons X. La distribution du fer est en rouge et celle du silicium est en vert. A) barreau sédimenté, B) barreau centrifugé.....	78
Figure 3-15 : Métallographie optique à 50X de la zone d'accumulation de particules du haut complètement d'un échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement en sédimentation naturelle.	80
Figure 3-16 : Métallographie optique à 50X de barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement sous sédimentation naturelle - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone de particules accumulées sous la frontière (on y voit aussi une partie de la zone frontière).	82
Figure 3-17 : Métallographie optique à 50X de barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement sous centrifugation - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone de particules accumulées sous la frontière.	84
Figure 3-18 : Macrographies des barreaux d'alliage expérimental Al-Fe après centrifugation, découpe, TPRM et polissage. A) Section "B" du barreau, B) Section "D" du barreau.....	87
Figure 3-19 : Nombres de pores par cm ² de métal polis de barreaux de l'alliage d'Al-Fe. La cartographie élémentaire du fer de gauche sert à positionner les différentes sections le long d'un barreau. La ligne orange représente le nombre de pores par cm ² de métal d'un TPRM réalisé sur un barreau tel que coulé.	88
Figure 3-20 : Nombres de pores par cm ² de métal polis de barreaux de l'alliage d'Al-Fe-Si. La cartographie élémentaire du silicium présentée à gauche sert à positionner les différentes sections le long d'un barreau. La ligne orange représente le nombre de pores par cm ² de métal d'un TPRM réalisé sur un barreau tel que coulé.....	89
Figure A-1 : Lieux d'échantillonnages des barreaux à leur sortie du moule. En A, le haut du barreau, B, le bas du barreau et C, le chemin de coulée.	105

Liste des tableaux

Tableau 2-1 : Composition chimique des lingots de base utilisés pour la préparation des alliages-mères.....	33
Tableau 2-2 : Composition chimique et caractéristiques des alliages expérimentaux destinés à la centrifugation, à la sédimentation naturelle et aux tests à pression réduite modifié (TPRM).....	40
Tableau 3-1: Composition chimique des échantillons prélevés sur l'alliage expérimental Al-Fe, en spectroscopie d'émission atomique par plasma aux micro-ondes (MP-AES).....	55
Tableau 3-2 : Fractions volumiques d'intermétallique et température de germination des phases de l'alliage Al-Fe cible et final.....	57
Tableau 3-3: Compositions chimiques aux endroits identifiés sur la microstructure de l'échantillon de l'alliage expérimental Al-Fe (voir Figure 3-3). Mesures effectuées par microsonde à diffraction de longueur d'ondes.....	60
Tableau 3-4 : Composition chimique des échantillons prélevés sur l'alliage Al-Fe-Si expérimental, en spectroscopie d'émission optique à source étincelle (ES-OES).....	62
Tableau 3-5 : Proportions volumiques de particules d'intermétalliques $Al_5FeSi-\beta$ et de silicium dans la microstructure des barreaux de l'alliage Al-Fe-Si expérimental à différentes températures lors la solidification.....	63
Tableau 3-6 : Compositions chimiques aux endroits identifiés sur la microstructure de l'échantillon de l'alliage expérimental Al-Fe-Si (voir Figure 3-7). Mesures effectuées par microsonde à diffraction de longueur d'ondes.....	66
Tableau 3-7 : Pourcentage de variation du nombre de pores/cm ² de métal par rapport aux échantillons de références des échantillons de TPRM des alliages expérimentaux d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si.....	90

Liste des abréviations, sigles et acronymes

G :	coefficient d'accélération gravitationnelle (nombre de g)
g :	accélération gravitationnelle terrestre (m/s^2)
r :	distance de l'axe de rotation (m)
ω :	vitesse angulaire (rad/sec)
P :	pression métallostatique dans le liquide (N/m^2 ou Pa)
ρ :	masse volumique du liquide (g/cm^3)
h :	distance de la surface du liquide (m)
F_g :	force gravitationnelle occasionnée par la masse de la particule (N)
F_b :	force engendrée par la poussée d'Archimède (N)
F_D :	force de frottement entre la particule et le liquide (N)
m :	masse de la particule (g)
ρ' :	masse volumique de la particule (g/cm^3)
C_D :	coefficient de traînée
A :	aire de surface de la particule (m^2)
v :	vitesse de chute de la particule (m/s)
RPT :	« Reduced Pressure Test »
TPR :	« Test à Pression Réduite »
CFC :	Structure cubique à face centrée
at.% :	Pourcentage atomique (%)
TPRM:	Test à Pression Réduite Modifié
mcx :	Morceaux
T :	Température ($^{\circ}C$)

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mon directeur de recherche Dominique Dubé qui a su me soutenir tout au long de cette longue maîtrise, et qui m'a aussi confié l'amorce de ce projet de recherche. Il a été à l'écoute de mes idées et m'a fait confiance dans chacune des étapes de ce projet, tout en me faisant profiter de sa grande expérience professionnelle. J'aimerais aussi remercier mon co-directeur, Daniel Larouche, qui a été là pour m'épauler lorsque je me suis butté à des questions plus complexes pour lesquelles lui-seul pouvait m'aider. La méthodologie de recherche et l'éthique de travail de mon directeur et de mon co-directeur me resteront longtemps un exemple pour moi. Je tiens aussi à remercier l'ensemble du personnel de recherche et de l'administration du département, particulièrement : Daniel Marcotte pour son aide et son expérience pratique dans le laboratoire de fonderie, Vicky Dodier pour son soutien et son travail en chimie analytique dans le laboratoire de chimie, et Nathalie Moisan pour son support lors de mes interminables découpages, polissages et prise de métallographies. Je tiens aussi à souligner l'apport des différentes collègues étudiants gradués qui m'ont apporté des commentaires et des critiques constructives à la suite de mes différentes présentations ou lors de discussions informelles. J'ai beaucoup aimé échanger avec eux, que ce soit de mon projet ou du leur. J'en profite aussi pour remercier ma conjointe Marie-Pier Bolduc-Crustin qui est ma motivation pour persévérer dans la vie. J'aimerais terminer ces remerciements avec un mot spécial pour mes parents qui m'ont toujours supporté dans mes études et mes choix de carrière. Sans eux, je n'aurais certainement pas persévéré jusqu'aux études graduées. Merci à vous, vous me poussez à me dépasser, vous êtes mon inspiration.

Introduction

1. Mise en contexte

L'aluminium est un des métaux les plus utilisés dans le monde. Au Québec en 2020, les alumineries produisent 2.8 millions de tonnes d'aluminium primaire annuellement, soit 90% de la production canadienne. Cette productivité place les alumineries canadiennes en 4^e position parmi les pays producteurs d'aluminium de première fusion.

L'aluminium possède de nombreuses propriétés intéressantes dont une faible masse volumique, une excellente ductilité, une haute conductivité électrique et thermique et une grande résistance à la corrosion, pour ne nommer que celles-là. En plus de disposer de toutes ces propriétés intéressantes, l'aluminium est très avantageux à recycler. En effet, le recyclage de l'aluminium ne consomme que 5% de l'énergie nécessaire à la production primaire. Plus de 75% de l'aluminium produit depuis 1988 est toujours en utilisation et environ 30% de la production mondiale provient du recyclage[1]. Cependant, le recyclage répété de l'aluminium peut mener à l'accumulation d'éléments chimiques indésirables et la formation en quantité croissante de particules d'impuretés[2].

La nature exacte de ces particules dépend des éléments présents dans l'alliage. Parmi les éléments qui peuvent s'accumuler sous forme dissoute dans l'aluminium liquide, citons le fer dont la présence provoque la formation de particules de phases secondaires pendant la solidification. D'autres types de particules sont formées par l'oxydation de l'aluminium liquide qui réagit rapidement avec l'oxygène de l'air et la vapeur d'eau. On nomme ces inclusions *bifilms*, parce qu'elles sont en réalité composées de deux films d'oxyde séparés l'un de l'autre par un peu de gaz [3]–[7]. La manipulation de l'aluminium liquide tend à créer et à incorporer ces bifilms d'oxyde dans l'aluminium liquide. Les bifilms sont pratiquement insolubles dans l'aluminium liquide, difficiles à détecter et leur quantité tend à croître lors des fusions successives.

2. Problématique

Plusieurs travaux [4], [6], [8]–[11] ont montré que les bifilms nuisent aux propriétés mécaniques des alliages d'aluminium. En effet, lorsque le nombre de bifilm par cm^3 augmente, l'allongement, la résistance ultime en traction et plusieurs autres propriétés mécaniques des alliages d'aluminium s'en trouvent diminuées. Il a aussi été observé que l'aluminium en contenait un très grand nombre et que leurs tailles varient beaucoup [4], [9],

[12]–[18]. Lors des essais de traction, il arrive souvent d'en observer à l'œil nu sur les faciès de rupture et, au microscope, il est possible d'en déceler d'autres, de tailles encore plus petites.

Les bifilms sont néfastes parce qu'ils constituent une interface faible dans le volume. Ils peuvent également, si les conditions sont propices, gonfler lors de la solidification de l'aluminium. Il en résulte des films ouverts (pores) qui peuvent demeurer dans la matrice métallique après la solidification complète de l'alliage et réduire encore davantage les propriétés mécaniques que ne l'aurait fait le même bifilm qui serait resté recroquevillé sur lui-même. Plusieurs travaux [14], [19]–[21] ont récemment montré que de nombreux composés intermétalliques, dont certaines plaquettes contenant du fer, germaient sur les bifilms et pouvaient accroître leur effet néfaste sur les propriétés mécaniques. Il est donc important qu'il en reste le moins possible dans les composantes moulées pour lesquelles de bonnes propriétés mécaniques comme un grand allongement ou une grande résistance ultime en traction sont requises.

Quelques techniques ont été proposées pour éliminer ou prévenir la formation des inclusions d'oxyde ou encore pour en réduire leurs effets, mais aucune n'est pleinement satisfaisante. Parmi les principales techniques, citons l'utilisation de l'argon qui protège la surface de l'oxydation durant la fusion et la coulée, l'utilisation de calcium pour réagir avec les oxydes d'aluminium [13], [22]–[24], le dégazage de l'aluminium par l'utilisation de bulles d'argon qui appauvrissent l'aluminium en hydrogène [2], [8], [18], [22], [23], [25], [26], la filtration de l'aluminium lors de la coulée des pièces [2], [24], [25], [27] et l'utilisation d'hydrogène pour faire flotter les bifilms [2], [5], [8], [26]. Toutefois, la technique la plus simple utilisée à ce jour pour réduire la présence de bifilms consiste à laisser au repos le bain d'aluminium en fusion pendant plusieurs heures pour permettre aux particules de flotter ou de sédimenter sous l'influence naturelle de la gravité et de la poussée d'Archimède [9], [10], [18]. La coulée doit ensuite être soignée pour minimiser les turbulences superficielles provoquées par le remplissage des moules qui peut générer de nouveaux bifilms [9], [28]–[30]. Dans sa description du procédé Cosworth, Campbell [18, p. 102] mentionne qu'un bain d'aluminium en fusion qu'on laisse reposer 72h permet de produire des pièces avec de meilleures propriétés mécaniques que le même bain utilisé sans le laisser reposer avant la coulée. Il explique que les bifilms présents dans l'aluminium ont le temps de flotter ou de sédimenter sur environ un mètre (profondeur du bain de fusion) pendant cette période.

Cependant, le maintien prolongé d'un bain de fusion à température élevée est coûteux et techniquement difficile.

La cinétique de sédimentation ou de flottaison d'une particule sphérique dans un liquide dépend de trois paramètres principaux: l'accélération à laquelle est soumis le bain liquide (habituellement, au niveau de la mer, l'accélération gravitationnelle terrestre vaut $9,8 \text{ m/s}^2$), la taille de la particule et la différence de densité entre la particule et son milieu. Lorsque les particules ne sont pas sphériques, un facteur de forme peut être introduit pour tenir compte du freinage supplémentaire et corriger le temps de sédimentation. La différence de densité entre le bifilm et son milieu est très variable puisque le bifilm est toujours composé d'au moins une partie solide et d'une partie gazeuse dont la proportion peut varier [9], [15], [18]. Si une particule est petite ou que la différence de densité entre la particule et le milieu liquide est faible, la vitesse limite de la particule dans le liquide est peu élevée. Cependant, même si la vitesse de déplacement est faible, une particule peut flotter ou sédimenter si un temps suffisant lui est alloué ou si l'accélération à laquelle est soumis le bain liquide est élevée. Si on pouvait imposer à l'alliage liquide une accélération supérieure à la gravité terrestre, on pourrait théoriquement diminuer le temps naturel de sédimentation et permettre le développement de procédés plus rapides pour séparer les bifilms de l'aluminium liquide et préparer des alliages dont les propriétés seraient supérieures. Il faut donc trouver un moyen de réduire le temps nécessaire à la séparation des bifilms par flottation ou sédimentation.

3. Objectifs

L'objectif principal de ce projet est d'étudier le comportement des bifilms et leurs interactions avec les intermétalliques Al_3Fe et $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ lors de la solidification dans différentes conditions afin de déterminer s'il est possible d'accélérer le processus naturel de séparation des bifilms d'oxyde. Cette étude sera effectuée avec et sans centrifugation pour des alliages d'aluminium-fer et d'aluminium-fer-silicium. Tel que mentionné précédemment, le temps nécessaire à la sédimentation des particules peut être réduit si on accroît la taille des particules et la différence de densités entre les particules et le liquide. Pour atteindre cet objectif, il est prévu d'augmenter ces deux paramètres simultanément : utiliser la germination préférentielle des intermétalliques Al_3Fe et $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ qui possèdent une densité et une épaisseur plus élevées que le bifilm. La particule mixte résultante serait donc composée d'une paroi d'oxyde d'aluminium, d'intermétallique de fer et d'un mince centre gazeux, dont les caractéristiques seraient idéales pour provoquer sa sédimentation rapide. Des alliages aluminium-fer seront développés dans le but de faire germer ces

intermétalliques sur les bifilms tout en s'assurant que les intermétalliques restent libres dans le liquide sur une plage de temps suffisante pour laisser le temps à la sédimentation d'agir. Il est également prévu de modifier l'accélération que subit la masse liquide via l'utilisation de la centrifugation. En centrifugeant, on élève l'accélération à des valeurs bien supérieures à celle de la gravitation terrestre. Une technique d'analyse fondée sur le gonflement des bifilms permettra aussi de révéler la quantité et la position des bifilms dans les échantillons solidifiés. À l'aide de ces deux techniques, il est prévu de déterminer les meilleures conditions pour faire flotter ou sédimenter les bifilms et ainsi produire des zones enrichies en bifilms et d'autres zones nettoyées de ses bifilms. S'il est réellement possible de nettoyer certaines zones de bifilms, il va sans dire que ces zones pourraient bien posséder de meilleures propriétés mécaniques que celles de l'alliage de base non nettoyé. Cependant, dans ce projet nous n'étudierons pas les propriétés mécaniques des alliages mais plutôt la possibilité d'appauvrir certaines zones en bifilms pour les concentrer ailleurs, et de révéler leur présence dans ces zones.

4. Organisation du mémoire

Ce mémoire se divise en cinq chapitres. L'introduction fait l'état de la problématique, pose l'objectif du projet de recherche et en définit les grandes lignes. Le premier chapitre se nomme : « État des connaissances » et contient un rappel théorique des notions nécessaires à la compréhension du reste du document. On y retrouve surtout des rappels de notions de physique et de mécanique des fluides, mais aussi une sous-section de revue de littérature qui couvre le sujet des bifilms, de leur formation à leur élimination en passant par leur interaction avec l'hydrogène. Cette sous-section couvre aussi les processus de solidification des deux familles d'alliages étudiés dans ce projet : l'Al-Fe et Al-Fe-Si. Le chapitre 2 présente l'approche méthodologique utilisée pour ce projet. Il contient une description de l'approche expérimentale, du matériel utilisé, des procédures expérimentales et des différentes techniques d'analyses qui sont utilisées pour apporter les résultats. Le chapitre 3 est destiné à présenter les différents résultats obtenus dans ce projet de recherche et les commentaires et observations s'y rattachant. Seuls les résultats les plus pertinents et les plus parlants sont présentés. Toute la discussion portant sur les résultats et observations du chapitre 3 s'y retrouve aussi. Le dernier chapitre est la conclusion. Il clôt le mémoire et contient un retour sur les manipulations faites, les conclusions spécifiques et générales et les recommandations pour l'utilisation de ces conclusions dans des travaux futurs.

1. État des connaissances

1.1. Rappels Théoriques

1.1.1. La centrifugation

La centrifugation est un moyen d'augmenter l'accélération appliquée sur un système. Ses utilisations sont multiples, mais la principale utilité est la séparation de liquides de densités différentes ou encore la décantation plus rapide de particules. C'est cette deuxième utilisation que nous exploitons dans ce projet. La centrifugation nous permet d'accélérer les phénomènes de sédimentation et de flottation des particules solides s'opérant lors de la solidification d'alliages. Les dispositifs utilisés pour réaliser la centrifugation sont généralement des systèmes tournant à haute vitesse autour d'un axe perpendiculaire au sol. Il est important de noter que l'accélération gravitationnelle terrestre s'ajoute de manière vectorielle à l'accélération centrifuge. Le vecteur d'accélération résultant montre donc toujours un léger angle par rapport à l'horizontale. Il ne faut pas le négliger dans le calcul du coefficient d'accélération gravitationnelle G résultant (le nombre de g) [31].

Pour calculer le nombre de G , on utilise la formule suivante [32]:

Équation 1-1

$$G = \frac{\sqrt{g^2 + (r\omega^2)^2}}{g}$$

Avec :

g : accélération gravitationnelle terrestre (m/s^2),

r : distance de l'axe de rotation (m),

ω : vitesse angulaire (rad/sec)

Un G de 1 représente l'accélération gravitationnelle terrestre, alors qu'un G de 10 représente simplement 10 fois la valeur de celle-ci (10 g). Comme on le constate dans l'Équation 1-1, le coefficient d'accélération gravitationnelle résultant est fonction de r et de ω , ce qui signifie qu'il augmentera avec la distance de l'axe de rotation. Pour un solide en rotation, l'accélération n'est donc pas uniforme mais varie en fonction de la distance entre chaque point de ce solide et l'axe de rotation.

Pour les phénomènes qui subissent l'influence de la gravité, on peut remplacer la valeur de "g" dans les calculs qui décrivent le mouvement par $g \times G$. Par exemple, l'Équation 1-2 décrit la pression métallostatique en tenant compte d'une accélération supérieure à l'accélération de la gravité terrestre [32]:

Équation 1-2

$$P = \rho \times g \times G \times h$$

où

- P : pression métallostatique dans le liquide,
- g : l'accélération gravitationnelle,
- ρ : masse volumique du liquide,
- G : coefficient d'accélération gravitationnelle (nombre de g),
- h : distance de la surface du liquide.

L'augmentation du coefficient d'accélération gravitationnelle G a aussi un effet sur les forces s'appliquant sur une particule solide en mouvement dans un liquide soumis à une accélération. À des fins de calcul, considérons un système composé d'une particule seule dans un liquide soumis à une accélération $g \times G$. Lors de la centrifugation les trois forces s'exerçant sur la particule sont : la force gravitationnelle occasionnée par la masse de la particule F_g , la poussée d'Archimède F_b , et la force de frottement entre la particule et le liquide (drag force) F_D .

La pesanteur artificielle occasionnée par la masse de la particule (F_g) se calcule comme suit [32]:

Équation 1-3

$$F_g = m \times g \times G$$

où

- m : masse de la particule,
- g : accélération gravitationnelle terrestre,
- G : coefficient d'accélération gravitationnelle (nombre de g).

La poussée d'Archimède exercée par le liquide sur la particule (F_b) est dirigée dans le sens inverse de l'accélération et se calcule comme suit [32]:

Équation 1-4

$$F_b = \frac{m \times g \times G \times \rho}{\rho'}$$

Avec :

ρ : masse volumique du liquide

ρ' : masse volumique de la particule.

La force engendrée par le frottement entre la particule et le liquide (F_D) est fonction de la vitesse de cette particule. Cette force prend une direction opposée à la direction de la vitesse qui la génère. F_D se calcule comme suit [32]:

Équation 1-5

$$F_D = C_D \times \frac{v^2}{2} \times \rho \times A$$

où

C_D : coefficient de traînée (fonction de forme de particule),

A : aire de surface de la particule [33],

v : vitesse de la particule dans le liquide,

ρ : masse volumique du liquide.

Comme la somme des forces est égale à la masse multipliée par l'accélération, on peut résoudre le système de forces s'appliquant sur notre particule en faisant leur somme:

Équation 1-6

$$m \frac{dv}{dt} = F_g - F_b - F_D$$

On peut maintenant résoudre en substituant l'Équation 1-3, l'Équation 1-4 et l'Équation 1-5 dans l'Équation 1-6, comme suit :

Équation 1-7

$$m \times \frac{dv}{dt} = (m \times g \times G) - \left(\frac{m \times g \times G \times \rho}{\rho'} \right) - \left(C_D \times \frac{v^2}{2} \times \rho \times A \right)$$

Au début de la centrifugation, la particule subit une accélération, puis une décélération avant d'atteindre sa vitesse finale de chute. Pour connaître celle-ci, il suffit de poser que l'accélération est égale à 0, et donc que $dv/dt = 0$. On résout ensuite pour trouver v :

Équation 1-8

$$v = \sqrt{\frac{2 \times m \times g \times G \times (\rho' - \rho)}{A \times \rho \times \rho' \times C_D}}$$

Cette vitesse de chute est constante lorsque l'accélération est constante, mais elle varie dans les systèmes centrifugés pour lesquels l'accélération croît avec la distance de l'axe de rotation.

Pour une particule sphérique, on peut calculer cette vitesse finale de chute. La masse et l'aire projetée sont données par les formules suivantes :

Équation 1-9

$$m = \frac{\pi \times D'^3 \times \rho'}{6}$$

Équation 1-10

$$A = \frac{\pi \times D'^2}{4}$$

où D' est le diamètre de la particule. Le coefficient de trainée se calcule avec [32]:

Équation 1-11

$$C_D = \frac{24 \times \mu}{D' \times \rho \times v}$$

où μ est la viscosité dynamique.

On peut maintenant substituer m , A et C_D dans l'Équation 1-8:

Équation 1-12

$$v = \frac{g \times G \times D'^2 \times (\rho' - \rho)}{18 \times \mu}$$

La vitesse de chute finale d'une particule sphérique dépend donc de l'accélération, de la taille, de la forme et de la masse volumique de la particule, ainsi que de la viscosité

dynamique et de la masse volumique du liquide. Plus précisément c'est la différence de masse volumique qui influence directement la vitesse. Le facteur ayant le plus grand impact est certainement le diamètre de la particule, puisqu'il est au carré. Comme le but dans ce projet est d'accélérer les phénomènes de sédimentation des particules, il faut augmenter artificiellement G et la différence de masse volumique. La centrifugation est donc le moyen le plus efficace pour augmenter artificiellement G .

1.1.2. La convection

La convection thermique est un phénomène qu'il ne faut pas négliger lorsqu'on étudie la solidification. Il s'agit du mouvement engendré dans un liquide par une différence de masse volumique au sein de ce même liquide. La différence de masse volumique peut provenir du refroidissement du liquide en contact avec la paroi froide d'un moule. Le liquide qui refroidit au contact d'une paroi froide subit une contraction thermique qui élève sa densité qui devient alors supérieure à celle du métal liquide plus chaud qui l'entoure. Cette différence de masse volumique engendre un mouvement : le liquide plus dense près de la paroi se dirige vers le bas (dans le sens du vecteur accélération g) et le liquide moins dense se dirige vers le haut.

De même, le changement de masse volumique du liquide peut provenir de changements de concentration en éléments d'alliage dans le liquide à la suite d'un échange de solutés durant la solidification (ségrégation). Par exemple, pendant la solidification qui se déroule sur une paroi, il y a dans le liquide devant le front de solidification, un appauvrissement ou un enrichissement en éléments d'alliage. Ce changement de concentration peut provoquer une augmentation ou une diminution de densité du liquide, ce qui se traduit par un courant descendant ou ascendant le long de la paroi.

La vitesse du courant de convection est fonction de la différence entre la masse volumique dans le liquide près de la paroi et le reste de la masse liquide. Plus un liquide se refroidit rapidement, plus il lui est possible d'atteindre une grande différence de masse volumique, et donc plus la convection sera intense. De même, plus la différence de concentration en soluté entre le liquide près de la paroi et le reste de la masse liquide est élevée, plus la convection est intense. Comme la convection est engendrée par une différence de masse volumique, il est évident qu'une augmentation du coefficient d'accélération gravitationnelle accroît l'intensité de la convection.

1.2. Revue de littérature

1.2.1. Les bifilms

a) *Origine et nature des bifilms*

L'aluminium liquide réagit rapidement lorsqu'il est exposé à l'oxygène ou à l'azote gazeux. Dans l'air ambiant, la surface de l'aluminium en fusion tend à se couvrir d'une couche d'oxyde amorphe qui se transforme ensuite en alumine gamma ($\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}\gamma$), puis en alumine alpha ($\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}\alpha$). La transformation se produit en quelques heures [9], [18], [34] et lors de la transformation cristallographique, il arrive que des fissures se forment dans la couche d'oxyde causées par des variations de volume. La couche d'oxyde fissurée tend à épaissir avec le temps en raison de l'apport continu en oxygène. Lorsque l'oxygène est absent ou épuisé, c'est le nitrure d'aluminium qui tend à se former. Comme ce film possède une masse volumique inférieure à celle de l'aluminium liquide, il tend à flotter à la surface du liquide s'il n'est pas perturbé. Cependant, on retrouve également des films d'oxydes dans la masse d'aluminium liquide.

Dans ses travaux, Campbell [9], [13], [18], [28], [29], [35] montre que des films d'oxyde qui sont aussi incorporés dans la masse d'aluminium liquide possèdent aussi des parois doubles. Il les nomme *bifilms*. Un bifilm se compose de deux minces couches d'oxyde d'aluminium solide séparées par un peu de gaz, un mélange d'oxygène, d'azote et un peu d'argon, selon des proportions qui varient avec l'âge du bifilm. Après sa création, le gaz initialement emprisonné dans le bifilm réagit avec l'aluminium présent derrière les parois. La concentration en oxygène et en azote dans le bifilm chute ce qui, après un temps plus ou moins long, n'y laisse que de l'argon.

Lors de la manipulation de l'aluminium liquide, une perturbation de la surface peut entraîner un repli de la surface sur elle-même et des petites bulles d'air peuvent être emprisonnées dans le liquide. Les turbulences peuvent être d'origines diverses : agitation de la surface du bain de fusion, introduction d'un instrument ou d'un élément d'alliage dans le bain ou encore une vague causant des éclaboussures. Ainsi, pendant le remplissage d'un moule, la rencontre de deux fronts d'aluminium liquide qui s'avancent produit un bifilm sur toute la surface de rencontre. Ce film peut être fragmenté ou demeurer continu selon les conditions d'agitation locales. À l'intérieur de la masse liquide, la remontée d'une bulle d'air à partir du bas d'un bain en fusion laisse derrière elle une mince enveloppe d'oxyde, qui constitue aussi

un bifilm. Même si la bulle réussit à atteindre la surface du bain et à vider son contenu d'air dans l'atmosphère, sa trainée oxydée reste dans l'aluminium liquide et se fractionne pour donner plusieurs bifilms de tailles et d'épaisseur variées.

Considérons le cas des bulles d'air emporté dans le liquide. L'atmosphère contenue dans ces bulles ou ces rabats de surface réagit avec l'aluminium à proximité pour former des oxydes et des nitrures qui contribuent à épaissir la couche d'oxyde déjà présente entre la bulle et l'aluminium liquide. Advenant la rupture complète ou partielle du film d'oxyde, l'aluminium liquide exposé à l'atmosphère se réoxyde tant qu'il y a de l'oxygène disponible [3], [4], [7], [18], [36], [37]. Seul l'argon qui compose environ 1% de l'air ambiant demeure inerte dans le bifilm. Le volume de gaz d'un bifilm se résorbe donc d'environ 99% pour ne laisser que l'enveloppe d'oxyde d'aluminium épaissie et une fine couche d'argon au centre [12], [13], [16], [18]. S'il n'y avait pas d'argon, les parois oxydées du bifilm finiraient par se coller en raison de la pression isostatique et résulteraient en une particule difforme composée surtout d' Al_2O_3 [36], [37]. Chaque bifilm constitue donc un pore plus ou moins étendu dont la présence peut altérer sérieusement les propriétés mécaniques des alliages de fonderie.

Avec les turbulences engendrées par la coulée ou par le brassage de l'alliage, les bifilms pourront finir par se recroqueviller sur eux-mêmes et pourront parfois se déchirer en bifilms de moins grand volume [9], [18], [38]. La forme et la taille du bifilm auront un impact majeur sur les propriétés mécaniques finales. Si les bifilms restent complètement recroquevillés sur eux-mêmes, leur impact sur les propriétés mécaniques après solidification sera faible. Cependant, si, pour une des raisons énumérées un peu plus loin, le bifilm se déplie et finit par prendre une forme plus étalée, il pourra alors agir comme lieu de concentration de contrainte et même servir à l'initiation d'une fracture [15]–[17], [39].

Les bifilms se retrouvent en très grand nombre dans l'aluminium, et sont aussi de très petite taille. Pour se donner une idée, il n'est pas rare d'en compter 10^9 par m^3 , et cette concentration peut même atteindre 10^{11} par m^3 . Cela correspond à 100 par mm^3 [9], [18]. On retrouve des exemples de bifilm partiellement ouverts à la Figure 1-1.

Il a été mentionné que les bifilms présents dans le liquide ont tendance, avec le temps et l'agitation du liquide, à se recroqueviller sur eux-mêmes. Cependant, certains phénomènes peuvent survenir pendant le maintien du bain de fusion à haute température ou encore lors de la solidification de l'alliage et provoquer le déploiement et le gonflement des bifilms. Ce

sont (b) la chute de solubilité de l'hydrogène pendant la solidification, (c) le retrait de l'alliage pendant la solidification provenant du changement de volume associé au changement de phase et (d) la germination préférentielle de phases solides sur les bifilms pendant le processus de solidification. Ces phénomènes de gonflement des bifilms créent donc une pression à l'intérieur de ceux-ci. Lorsque cette pression devient plus grande que la pression métallostatique du liquide calculé à l'Équation 1-12, il peut y avoir gonflement et déploiement du bifilm.

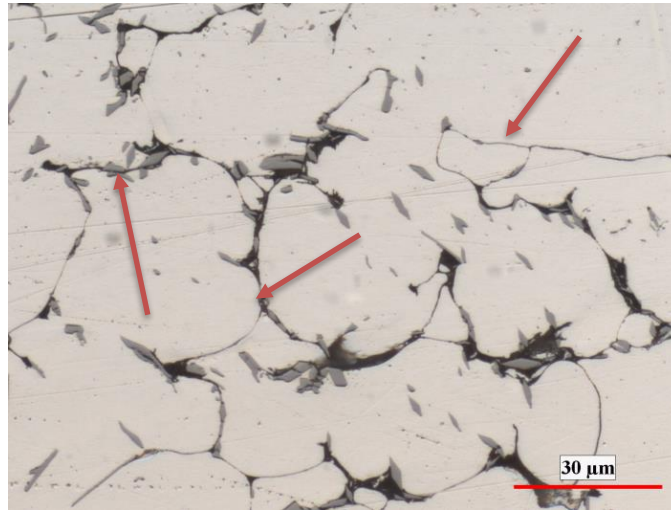
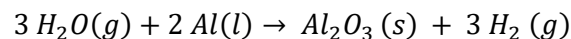


Figure 1-1 : Exemple de bifilms dans un alliage binaire Al-Fe, microscopie optique

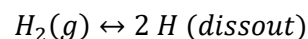
b) Influence de l'hydrogène sur le comportement des bifilms

L'hydrogène possède une grande solubilité dans l'aluminium liquide. Cet hydrogène provient surtout de l'humidité de l'air, de la combustion et de l'humidité adsorbée à la surface des réfractaires utilisés en fonderie. L'eau qui se trouve en contact avec l'aluminium liquide réagit et se dissocie selon les réactions suivantes :

Équation 1-13



Équation 1-14



À l'équilibre, la concentration en hydrogène dans l'aluminium liquide tend vers celle de son environnement. Plus l'humidité de l'atmosphère en contact avec la surface de l'aluminium liquide est élevée, plus sa concentration dans le bain liquide sera élevée. Le temps

nécessaire pour atteindre cet équilibre dépend principalement du volume et de la température puisque c'est par diffusion dans le volume que l'équilibre est atteint. Par rapport aux éléments d'alliage courants, l'hydrogène est très mobile et diffuse rapidement dans l'aluminium.

La Figure 1-2, montre une chute soudaine de la solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium qui se solidifie. Au cours de la solidification, environ 95% de l'hydrogène dissout est expulsé hors de la masse liquide. Dans le haut d'un creuset, il pourra diffuser dans l'atmosphère ambiante. Dans le volume, chaque bifilm peut en recevoir également. Comme il y a souvent beaucoup de bifilms [18], la distance la plus courte à parcourir pour l'hydrogène est souvent celle jusqu'à un bifilm. Chaque bifilm peut absorber de l'hydrogène ce qui élève la pression en hydrogène gazeux à l'intérieur de l'enveloppe d'alumine du bifilm [4], [8], [9], [18], [35], [40]. La pression interne peut provoquer le déploiement et le gonflement des bifilms. Au fur et à mesure que l'hydrogène diffuse vers l'intérieur des bifilms, la masse volumique totale de l'ensemble bifilm-gaz peut diminuer au point de les pousser jusqu'à la surface du liquide s'ils ne sont pas entravés par les dendrites d'aluminium ou les particules primaires en formation dans le bain de liquide.

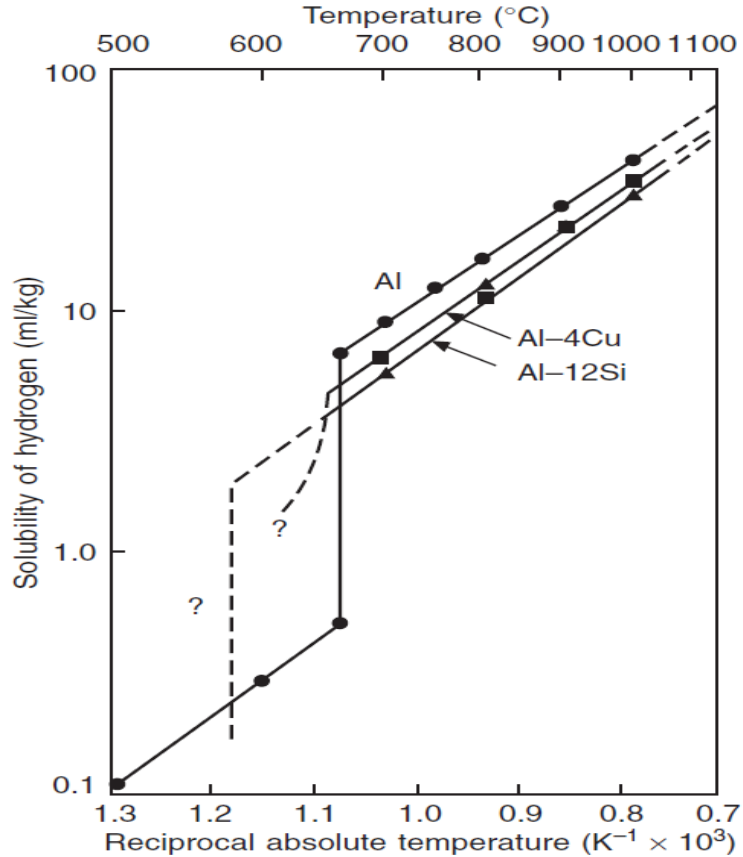


Figure 1-2 : Solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium en fonction de la température. [18]

c) Influence du retrait sur le comportement des bifilms

Le retrait de solidification est un autre phénomène qui peut influencer le comportement des bifilms. Il est causé par la différence de masse volumique entre les phases liquide et solide : les alliages d'aluminium subissent un retrait de l'ordre d'environ 7% en volume lors de leur solidification. C'est pour cette raison que la majorité des pièces moulées possèdent des masselottes qui permettent un apport en métal liquide lors de ce changement de phases. Si certaines zones sont mal desservies par les masselottes, elles peuvent se retrouver avec une pression inférieure à celle de l'atmosphère. Il en résulte un gonflement des bifilms présents dans cette région [5], [7], [9], [18], [26], [35]. Il faut se souvenir que le gaz présent dans le bifilms possède une pression d'environ une atmosphère. Il n'y a pas alors nécessairement de diffusion de gaz vers l'intérieur du bifilm, mais un gain en volume du gaz déjà présent dans le bifilm pour tenter d'équilibrer sa pression avec celle de la zone mal desservie par les masselottes.

d) Influence de la germination de phases solides sur le comportement des bifilms

Le dernier phénomène est assez nouveau et encore mal compris. Il s'agit de l'interaction de germes primaires avec les bifilms. La littérature scientifique récente montre que certains intermétalliques, dont Al_3Fe , $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ ainsi que les particules de silicium germent préférentiellement sur les parois d'aluminium oxydés [14], [19]–[21], [41].

La croissance des particules d'intermétallique de fer sur les bifilms cause leur déploiement. Ils germent et grossissent sous forme de plaquettes; et au fur et à mesure qu'ils grossissent, ils tendent à rectifier la forme du bifilm sur lequel ils ont germé [13], [14], [18], [20], [29], [42]. On peut observer dans des coupes métallographiques des particules d'intermétallique comportant de grandes fissures longitudinales. Pendant longtemps, on attribuait la fissuration des intermétalliques à la nature fragile des particules et à la contraction de refroidissement. Elles étaient supposées réduire les propriétés mécaniques des alliages de par leur fragilité [43]–[45]. Il a par la suite été observé que ces craques n'étaient pas seulement des fissures et que deux fines couches d'oxyde d'aluminium s'y trouvaient, ce qui renforçait la théorie de la présence et du comportement des bifilms. Il est important de noter ici que ce n'est pas uniquement la nature de l'intermétallique qui provoque cette rectification, mais sa morphologie aussi. En effet, les alliages qui donnent lieu à la formation de $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ peuvent, en changeant les conditions de solidification, provoquer l'apparition d'un intermétallique différent. On appelle ce nouvel intermétallique l' $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si-}\alpha$ et il prend la forme, sur des métallographies, « d'écritures chinoises » dans l'aluminium. Cette morphologie est beaucoup plus compacte que les plaquettes et ne génère pas de rectification des bifilms, bien qu' $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si-}\alpha$ germe aussi sur ces derniers. Il est même possible d'utiliser cet intermétallique volontairement pour « désactiver » les bifilms [9], [19], [46]–[48]. Lorsqu'on parle de désactivation, on fait référence à la diminution de l'effet négatif des bifilms sur les propriétés mécaniques. Comme la particule de $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si-}\alpha$ prend une morphologie plus compacte, le bifilm à l'origine de la germination de l'intermétallique possèdera des dimensions finales plus limitées et n'aura pas la possibilité de se gonfler ou de se déplier, puisqu'il se retrouvera contraint par une autre particule.

Les germes de silicium pur ont aussi reçu une attention particulière par rapport à leur propension à germer sur les films d'oxydes. Bien qu'ils ne croissent pas sous forme de plaquettes, mais bien sous forme de polyèdres de formes variables, les germes de silicium pur peuvent aussi avoir tendance à rectifier les bifilms, avec tous les effets négatifs associés.

Cependant, il existe certains éléments d'alliage, dont le strontium et le sodium, qui peuvent supprimer cette tendance que possède l'oxyde d'aluminium à faire germer le silicium pur [9], [12], [14], [28], [38], [43], [49]. Lors de la solidification eutectique d'un alliage aluminium-silicium, la germination et la croissance des phases d'Al et de Si surviennent simultanément; la germination préférentielle des phases de silicium pur se produit toujours et on se retrouve ainsi avec une structure eutectique qui emprisonne les bifilms encore présents au moment de la solidification [28] (voir la Figure 1-3).

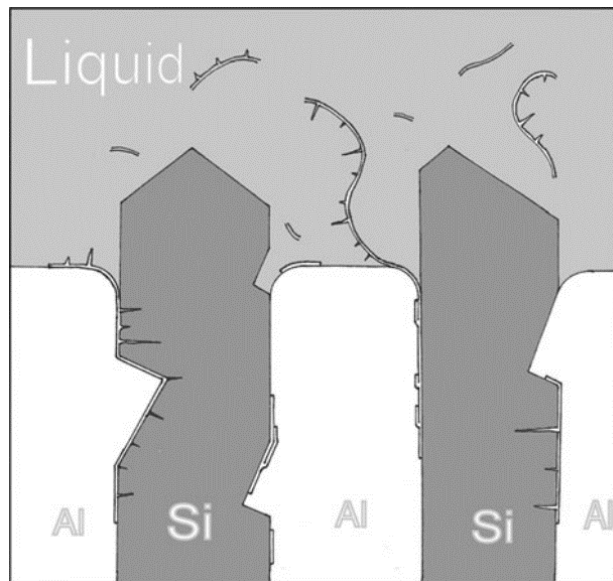


Figure 1-3 : Schéma de la solidification eutectique rencontrant des bifilms, [28]

e) Élimination des bifilms

Lorsque les bifilms demeurent recroquevillés sur eux-mêmes, ils ont peu ou moins d'influence sur les propriétés mécaniques. Toutefois, tel que décrit précédemment, plusieurs phénomènes favorisent le déploiement des bifilms. Il est donc nécessaire de diminuer le plus possible la quantité de bifilms avant la solidification. Quelques techniques existent pour les éliminer, pour prévenir leur formation ou encore pour réduire leur impact; mais en utilisant les techniques actuelles, il en reste toujours une certaine quantité.

L'usage de gaz inerte pour protéger la surface du bain de fusion est une méthode très répandue pour réduire l'oxydation du bain d'aluminium liquide [18], [23], [24]. Si l'atmosphère en contact avec l'aluminium est exempte d'oxygène, il ne peut y avoir alors d'oxydation et même les bulles emportées dans le liquide ne tendent pas à former de films d'oxyde en se résorbant (donc pas de bifilm non-plus). Les bulles remontent alors vers la

surface sans interagir chimiquement avec l'aluminium. Il est aussi possible de purger les moules à l'aide de ce gaz inerte pour prévenir la formation d'oxydes lors de la coulée. Cependant, la plupart des bifilms proviennent des premières étapes de fabrication de l'aluminium pour lesquelles la protection au gaz inerte est difficile, voire impossible. Les protections par gaz inerte sont souvent utilisées de concert avec d'autres méthodes.

Certains auteurs mentionnent avoir essayé de filtrer l'aluminium liquide au moment de sa coulée pour retenir les bifilms [9], [24], [25], [27], [34], [50]. On utilise normalement un filtre de céramique réfractaire pour qu'il ne réagisse pas avec l'aluminium liquide que l'on installe directement sur le chemin de coulée tout juste avant de remplir le moule. Cette technique permet de séparer mécaniquement les bifilms de la matrice de métal, mais n'est pas efficace à 100%. En effet, certains bifilms retenus par le filtre peuvent se déchirer sous l'effet du flux de métal liquide et passer quand même dans le moule en petit morceaux. Il est aussi possible qu'un très grand bifilm soit suffisamment recroquevillé sur lui-même pour qu'il puisse passer par les mailles du filtre et tout de même se retrouver dans le moule. Bien que les bifilms soient recroquevillé sur eux-mêmes lors de la coulée, les phénomènes énumérés plus haut s'opèreront pour les dérouler et les faire gonfler lors de la solidification. Il est aussi possible que l'aluminium liquide se réoxyde immédiatement après la sortie du filtre, car le jet sortant du filtre peut être fragmenté et en contact avec l'oxygène dans le moule.

Le dégazage est une autre technique étudiée pour se débarrasser des bifilms. Il consiste à réduire au minimum la concentration en hydrogène dans l'aluminium liquide lors de la solidification. S'il n'y a pas d'hydrogène dissout, on supprime alors l'un des principaux facteurs du gonflement des bifilms, à savoir : la diffusion de l'hydrogène [8], [9], [11], [22], [25], [26]. Avec le dégazage, on ne supprime aucun bifilm, mais on intervient sur les processus qui les rendent néfastes. Pour dégazer de l'aluminium liquide, la procédure est simple. On pousse des bulles d'argon pur au bas du bain de liquide et on laisse les bulles remonter jusqu'à la surface. L'hydrogène dissout dans l'aluminium tend alors à diffuser dans les bulles d'argon qui remontent vers la surface, afin d'équilibrer les concentrations. Comme la pression partielle d'hydrogène dans les bulles d'argon pur est nulle initialement, la concentration en hydrogène du bain diminuera avec le temps de traitement. D'autres bifilms, comme les trainées d'oxydes [18][9], [11], [13], [18], [28], peuvent déboucher sur la surface de la pièce coulée, ce qui permet à l'hydrogène de s'échapper sans jamais faire gonfler le bifilm, puisqu'aucune pression ne peut s'y accumuler.

Parmi les techniques employées, la technique de la décantation est de loin la plus simple. Il suffit de laisser reposer un bain d'aluminium à haute température assez longtemps pour que les légères forces qui agissent sur les bifilms provoquent leur ascension ou leur sédimentation [10], [18], [51]. Il faut plus de 24h à ces bifilms pour flotter ou couler dans les bains de métal liquide industriel. La masse volumique moyenne d'un bifilm est fonction de sa proportion de solide et de gaz, et elle varie donc avec le temps en fonction du degré de déploiement et de gonflement des bifilms. La vitesse finale de déplacement des particules varie avec la différence de masse volumique et la taille des particules. Avec le temps, la majorité des bifilms qui sont mobiles auront flotté ou seront décantés. Plus on attend, plus la séparation est achevée, mais plus le procédé est coûteux. Les particules les plus denses possèdent une vitesse finale plus élevée. Les petites particules atteignent une vitesse très faible et il est possible qu'elles ne sédimentent qu'après plusieurs jours. Il est aussi possible qu'un bifilm possède une masse volumique proche de celle du liquide et ne développe jamais de vitesse descendante ou ascendante. On constate que cette technique provoque la séparation de certains bifilms, mais pas de tous, et que ce n'est pas nécessairement les plus gros ni les plus petits qui se séparent. L'aluminium le plus « propre » est celui que l'on retrouve dans la région centrale du bain liquide. Il faut alors être en mesure de soutirer cet aluminium sans provoquer de turbulence dans le bain, ce qui entraînerait les bifilms préalablement séparés.

Le sur-gazage à l'hydrogène, qui est aussi une technique proposée dans la littérature, est assez contre-intuitive. Elle consiste à faire artificiellement gonfler les bifilms pour les faire flotter de manière contrôlée avant la coulée dans le moule [8], [11], [26], [52]. Pour se faire, on génère par barbotage des bulles d'un gaz riche en hydrogène dans l'aluminium liquide. L'utilisation d'une flamme au gaz naturel qui, lors de sa combustion, dégage de la vapeur d'eau, peut aussi contribuer à l'apport d'hydrogène [4], [8], [25], [53]. Naturellement, cet hydrogène va diffuser vers l'aluminium, puis vers l'intérieur des bifilms pour, encore une fois, tenter d'équilibrer les concentrations (initialement, le bifilm ne contient pas ou très peu d'hydrogène). Sous l'effet de la diffusion, le bifilm va se dérouler et éventuellement gonfler. Lorsqu'il est assez gros et de faible masse volumique, bien avant que l'équilibre de la concentration d'hydrogène soit atteint, il tend à remonter vers la surface. Une fois tous les bifilms accumulés à la surface de l'aluminium, on écume la surface pour les séparer de l'aluminium « propre ». Encore une fois, il ne s'agit pas d'une technique efficace à 100%;

certains bifilms, ne possédant pas une taille suffisante pour accumuler assez d'hydrogène, resteront indéfiniment en suspension dans l'aluminium liquide.

Le remplissage par le fond des moules peut également prévenir ou atténuer la formation des bifilms. En faisant entrer le métal par la fond du moule, on supprime la chute du métal liquide qui peut entraîner des bulles ou des films d'oxyde de surface [30]. Avec cette approche, le front de métal liquide progresse du bas au haut de la pièce sans se rabattre librement sur lui-même. Le film d'oxyde d'aluminium adhère sur les parois du moule au fur et à mesure de la montée du métal (voir la Figure 1-4).

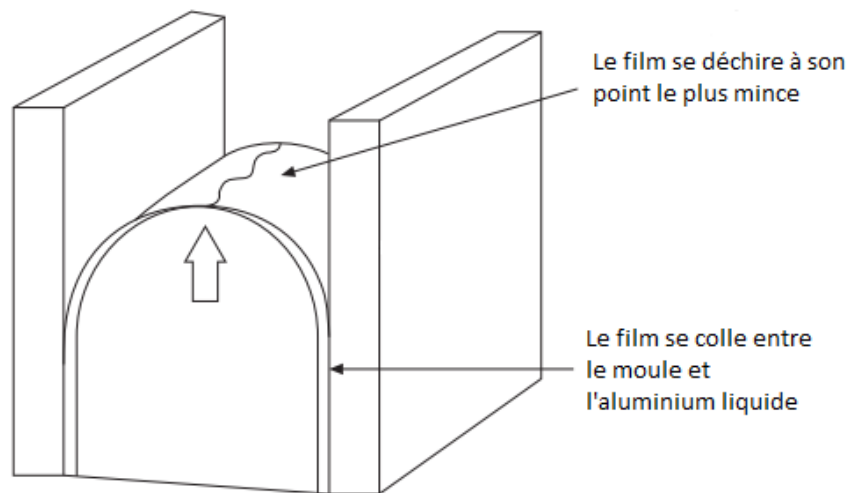


Figure 1-4 : Exemple de remontée de métal liquide et déchirure du film d'oxyde, [18]

Il est difficile, voire impossible, de supprimer complètement la formation des bifilms et leur influence sur les propriétés mécaniques des pièces moulées. Il est également difficile de les observer en raison de leur faible épaisseur. L'une des principales techniques utilisées pour les observer est l'analyse des faciès de rupture obtenus à la suite d'essais de tractions. En effet, comme les bifilms sont souvent à l'origine de l'initiation de la fracture, il n'est pas rare de retrouver la moitié des bifilms (ou film d'oxyde simple) sur le faciès de rupture. L'analyse de ces faciès au microscope électronique à balayage permet parfois, si l'oxyde est assez épais, de visualiser sa forme et sa taille. Il arrive aussi parfois que ce film d'oxyde soit assez étendu pour qu'on puisse les observer à l'œil nu. Une technique d'analyse prometteuse développée par Campbell et Fox [16], [17], [35] permet de révéler la présence des bifilms, de les mesurer et de les dénombrer. On appelle cette technique le « Reduced Pressure Test – RPT », ou « Test à Pression Réduite – TPR ».

1.2.2. Le Test à Pression Réduite (TPR) - Reduced Pressure Test (RPT)

Le test développé par Campbell et Fox [16], [17], [35] évalue la qualité d'un bain de métal liquide à un instant précis. Il consiste à prélever un échantillon représentatif d'aluminium liquide et à le placer rapidement sous un vide partiel pendant sa solidification. L'échantillon pèse environ 80 grammes et est prélevé à l'aide d'une louche tout juste après avoir retiré la couche d'oxyde de la surface. Il est ensuite versé dans un creuset d'acier mince poteyé pour être soumis à la pression réduite. L'aluminium se solidifiant sous une pression inférieure à une atmosphère a tendance à gonfler. Ce gonflement provient surtout de la chute de solubilité de l'hydrogène pendant la solidification : avec la chute de température et le changement de phase, la solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium liquide chute [4], [8], [9], [18], [35], [40], [54]. L'hydrogène dissout dans l'alliage liquide diffuse vers les bifilms et les gonfle. En raison de la pression ambiante réduite pendant la solidification, le gonflement est accentué. La présence d'argon résiduel dans les bifilms contribue également au gonflement, mais dans une moindre proportion. L'aluminium encore liquide peut gonfler tant qu'il demeure liquide assez longtemps pour permettre aux bulles de gonfler et à l'hydrogène le temps de diffuser.

La pression optimale à atteindre a été étudiée par Campbell et Dispinar [16], [17], [35]. Il a été déterminé que si la pression est trop proche de la pression atmosphérique, le gonflement est très limité. Si la pression est trop faible, les bulles formées dans le liquide gonflent beaucoup et peuvent atteindre la surface et à se vider de leur gaz. En se vidant de leur gaz, elles se trouvent à s'écraser sur elles-mêmes et à disparaître. La pression optimale pour permettre aux pores de se former serait de 100 millibars, soit environ 0.1 atmosphère.

Divers indices de performance ont été développés pour caractériser la qualité générale des bains d'aluminium liquide. Certains indices donnent une bonne idée de la concentration d'hydrogène avant solidification et d'autres donnent plutôt une idée du nombre de pores présents, et donc du nombre de bifilms avant solidification. Un indice plus pertinent est le « bifilm Index » [16], [17], [54]. Cet index témoigne surtout de l'influence des bifilms et diminue celle de l'hydrogène sans toutefois la supprimer. Sans bifilm, il n'y aurait pas de gonflement, et sans hydrogène, le gonflement serait très limité, car uniquement dû à la dilatation de l'atmosphère résiduelle des bifilms. Pour être en mesure de calculer le « bifilm index » de chaque échantillon, un minimum de préparation est nécessaire. Les échantillons soumis au test TPR doivent d'abord être découpés pour en exposer l'intérieur. Il est ensuite nécessaire de polir l'une des deux surfaces de coupe pour révéler tous les pores qui s'y

trouvent. On utilise ensuite un programme d'analyse d'images pour mesurer et compter le nombre de pores. Le « bifilm index » se calcule donc en additionnant la plus grande dimension de chaque pore après TPR. Cet indice est recommandé puisqu'il est simple et facile à obtenir. Il est aussi possible de diviser cette valeur par la superficie de métal de l'échantillon évalué. En divisant le « bifilm index » de la sorte, on ramène chaque mesure à une même quantité de métal, ce qui rend ces indices plus comparables les uns aux autres. Lorsqu'on parle de « superficie de métal », on entend l'aire de la surface de coupe moins l'aire occupée par les porosités. Pour trouver la superficie de métal, on utilise un programme d'analyse d'image capable de mesurer les superficies respectives des pores et de l'échantillon.

1.2.3. Le binaire Al-Fe et l'intermétallique Al₃Fe

L'alliage aluminium-fer est l'un des deux principaux alliages étudiés dans ce projet; il est donc important de bien comprendre ses caractéristiques de solidification. Comme la composition des alliages traités contient moins de 5% fer, la discussion portera principalement sur la portion du diagramme de phase aux concentrations plus faibles en fer. La Figure 1-5 montre la portion du diagramme de phase du système Al-Fe dans le domaine riche en aluminium et provient du logiciel de calcul thermodynamique ThermoCalc [55]. Une réaction eutectique est présente à 655°C pour une composition de 1.8% à 2.2% massique de fer, selon les conditions de solidification :

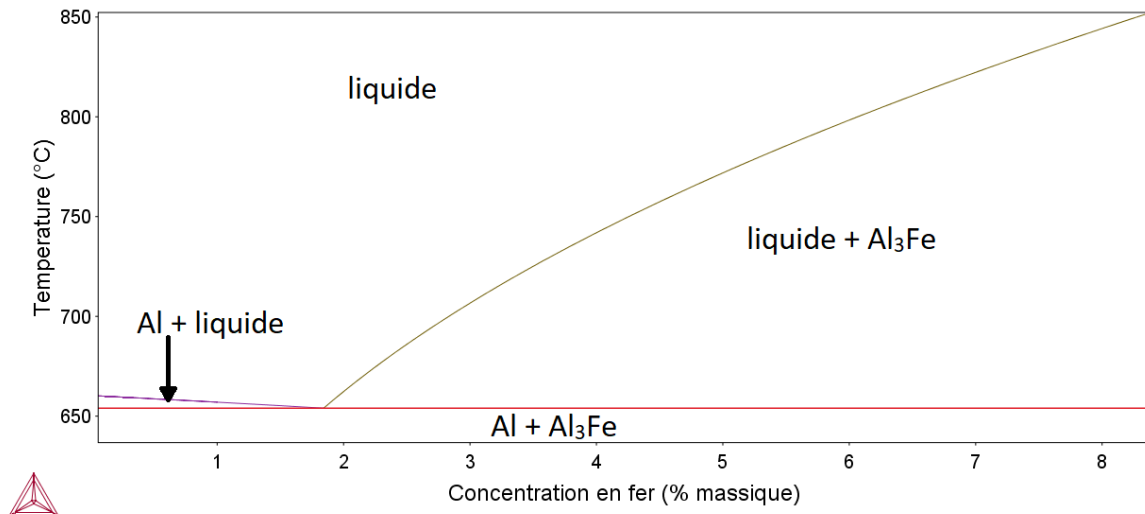


Figure 1-5 : Portion de 0 à 8% fer du diagramme de phase Aluminium-Fer, [55]

La solubilité du fer dans l'aluminium solide est très faible, soit environ 0.04% [56]. La solubilité en fer dans l'alliage liquide est bien plus haute et croît avec la température. Le diagramme de phase présenté à la Figure 1-5 montre qu'il est possible de former, aux compositions un peu plus riches en fer que l'eutectique, le composé intermétallique Al_3Fe qui apparaît aussi dans le constituant eutectique. Ce composé est aussi souvent appelé $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ dans la littérature scientifique [57]. Lorsque Al_3Fe apparaît avant la solidification eutectique, il se forme en plaquettes droites qui peuvent atteindre une taille assez grande pour être observée à l'œil nu. Cependant, lorsqu'il se forme pendant la solidification eutectique, il prend plutôt la forme de fines lignes pouvant courber dans une matrice d'aluminium. Il existe aussi des phases métastables qui peuvent se former sous certaines conditions lors de la solidification et qui n'apparaissent pas sur le diagramme de phase. C'est le cas lors d'un refroidissement rapide, qui se traduit par un haut gradient thermique et une vitesse de croissance rapide [56], [58]–[61].

Lors de la solidification lente d'un alliage aluminium-fer à composition hypereutectique dans des conditions proches de l'équilibre, on devrait voir apparaître les phases selon la température sur le diagramme de phases de la Figure 1-5. Le premier solide à apparaître est le composé Al_3Fe qui germe au liquidus et croît jusqu'à la température de l'eutectique à 655°C. À partir de cette température, c'est une structure eutectique irrégulière Al- Al_3Fe (eutectique1) qui se forme dans le volume résiduel. On se retrouve alors avec des grandes plaquettes d' Al_3Fe primaire dans un eutectique constitué d'aluminium et de très fines plaquettes irrégulières d' Al_3Fe . Lorsque la vitesse de refroidissement augmente et excède environ 1°C/s, les processus de solidification deviennent plus complexes. On doit se référer à des cartes de sélection de microstructures (MSM - microstructure selection map), comme illustrées sur les Figure 1-6 et Figure 1-7. Ces cartes ont été établies par Gilgien et son laboratoire [58] au cours de différentes expériences réalisées avec des conditions de refroidissement contrôlées en utilisant les méthodes de Bridgman. Ils ont fait une revue de différentes expériences réalisées pour leur permettre de tracer les cartes montrées aux Figure 1-6 et Figure 1-7. Selon les conditions expérimentales, on retrouve parfois des cartes qui présentent les vitesses de refroidissement (°C/s) et parfois, des vitesses de progression de front de solidification (m/s).

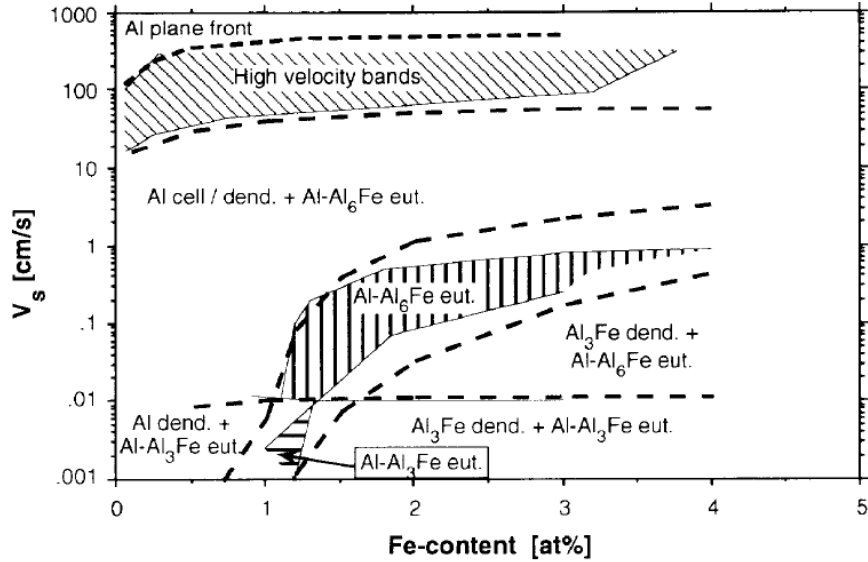


Figure 1-6 : Cartes de sélection de microstructures de l'alliage Al-Fe, [58]

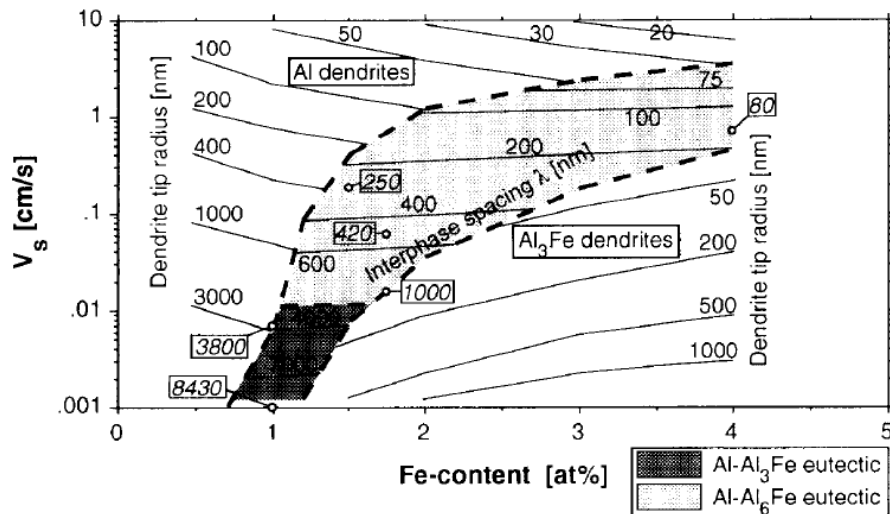


Figure 1-7 : Cartes de sélection de microstructures de l'alliage Al-Fe, [58]

Ces cartes nous permettent de prévoir la microstructure associée à une condition de refroidissement spécifique. En observant les cartes, on remarque qu'il existe un deuxième eutectique que l'on ne retrouve pas sur le diagramme de phases. Il s'agit d'un eutectique de type Al-Al₆Fe (eutectique 2) et sa température approximative de formation est de 653.4°C [56], [58]–[61]. Lors d'un refroidissement à l'équilibre, le liquide n'atteint pas cette température, puisqu'il subit une solidification eutectique à 655°C. Cependant, en accélérant le refroidissement, on peut provoquer une surfusion de l'alliage de quelques degrés, et à ce moment, il est possible de former cet eutectique. En consultant ces cartes on peut aussi se rendre compte que, plus la concentration en fer diminue, plus le degré de surfusion

nécessaire à la formation de l'eutectique 2 diminue aussi. Lors de la solidification d'un alliage hypereutectique, les premiers germes à apparaître seront les plaquettes d' Al_3Fe suivies d'un des deux eutectiques selon la vitesse de solidification et la concentration en fer de la phase liquide. Il faut aussi garder en tête que tout au long de la solidification, la concentration en fer dans le liquide diminue, mais pas linéairement. Lors de la germination des intermétalliques primaires, on se trouve avec une très grande différence entre la composition chimique du liquide et celle des germes, ce qui explique la chute rapide de la concentration en fer de l'alliage. La concentration en fer diminue rapidement jusqu'à atteindre le point où l'eutectique se forme préférentiellement. À ce moment, la concentration en fer dans le liquide devrait (à l'équilibre) rester la même jusqu'à la solidification complète. On suit donc, sur les cartes de sélection de microstructures, une ligne horizontale passant de la concentration en fer nominal de l'alliage à environ 2% massique, tant qu'on garde un taux de refroidissement constant.

En suivant cette ligne horizontale, on croise inévitablement la zone de formation d'un eutectique, qui se trouve à être la dernière structure à apparaître lors de la solidification. En consultant les cartes de sélection de microstructures, on constate aussi qu'il est théoriquement possible de former des dendrites d'aluminium primaire faiblement concentrées en fer lorsque le taux de refroidissement est très rapide ou lorsque la concentration en fer dans l'alliage est proche de 1%. Le fait de faire germer des dendrites d'aluminium primaire provoque le rejet du fer dans le liquide pour en augmenter la concentration. Lorsqu'on se trouve dans cette situation, on suit toujours une ligne horizontale sur les cartes de sélection de microstructures, mais en se déplaçant vers la droite cette fois.

Les plaquettes d' Al_3Fe changent de morphologie et adoptent la forme étoilée lorsque la vitesse de croissance augmente de 0,1 à 5 mm/s [58], [61]. Pour obtenir des vitesses de croissance du front de solidification aussi grandes, il faut des taux de refroidissement assez élevés (de l'ordre de 10^2 °C/s). De même, les différents eutectiques que l'on retrouve chez cet alliage peuvent changer de morphologie selon les conditions de solidification. L'eutectique 1 (Al- Al_3Fe) est généralement lamellaire, à lamelles fines ou grossières. L'eutectique 2 (Al- Al_6Fe) se forme plutôt en petites aiguilles d' Al_6Fe s'alignant assez parallèlement les unes par rapport aux autres. On peut aussi quelquefois apercevoir une zone d'eutectique 1 entre des zones d'eutectique 2 et des dendrites d'aluminium.

1.2.4. Le ternaire Al-Fe-Si et l'intermétallique Al₅FeSi-β

Le deuxième alliage étudié est un alliage ternaire d'aluminium-fer-silicium. Lors de la solidification de cet alliage ternaire, plusieurs intermétalliques et microstructures peuvent se former. Nous nous attarderons plus précisément au ternaire qui se situe autour de l'eutectique aluminium-silicium, mais légèrement enrichie en fer. On retrouve à la Figure 1-8, le diagramme de phases pour un alliage à 12.55 % silicium et à concentration en fer variable. Cet alliage possède un eutectique Al-Al₅FeSi-β à 575°C à une concentration en fer d'environ 0.8% [56], [62]. Pour bien représenter les interactions aluminium-fer-silicium, il faudrait utiliser un diagramme ternaire qui fait intervenir la concentration de trois éléments chimique [56], [63]. Ces diagrammes sont de forme triangulaire et sont dessinés pour une température fixe. La Figure 1-9 montre un exemple de diagramme de phases ternaire pour l'aluminium-silicium-fer à 600°C. Ce type de diagramme est très difficile à interpréter, surtout lorsqu'on essaie de suivre un chemin de solidification. Voilà pourquoi il est plus simple de travailler avec une coupe d'un ternaire, ce qui ne fait intervenir que les concentrations de deux éléments d'alliages avec une concentration fixe pour le 3^e élément.

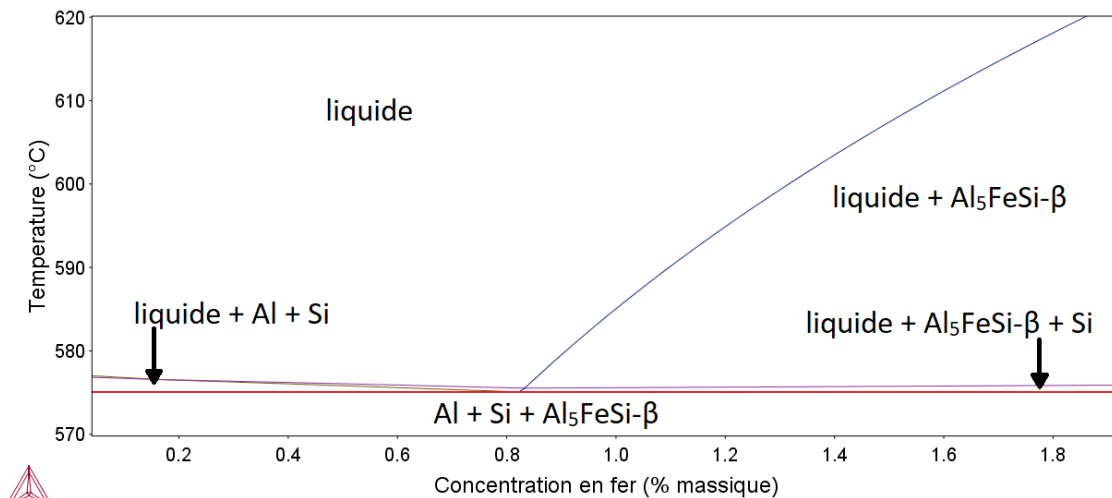


Figure 1-8 : Portion de 0 à 2% fer du diagramme de phases Al-12.55Si-xFe, [55]

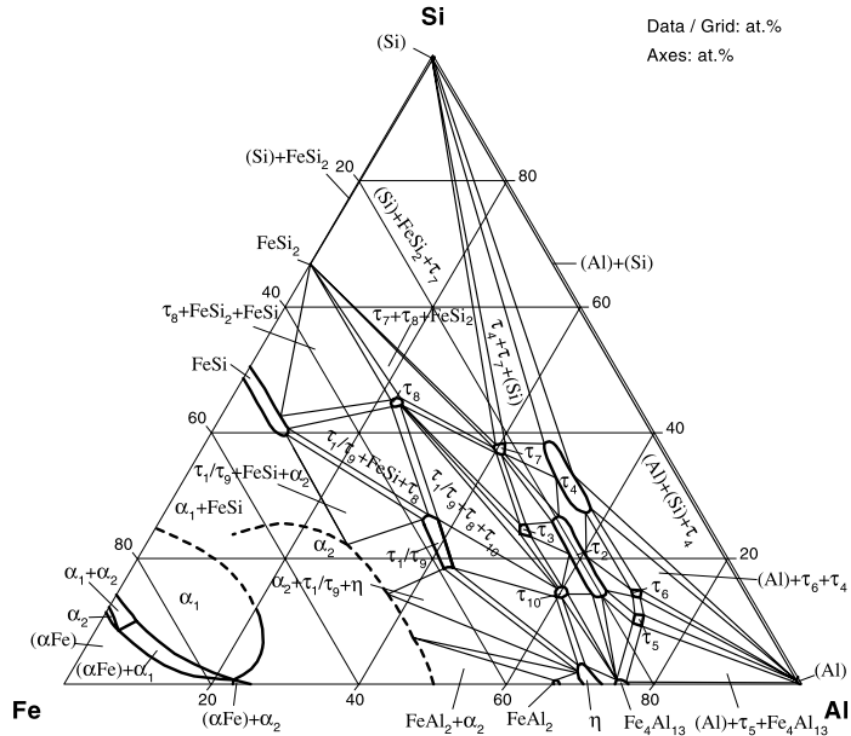


Figure 1-9 : Diagramme de phases isotherme ternaire Al-Fe-Si à 600°C, [59]

À cette concentration en silicium (12.55%Si), une solidification hypo-eutectique entraîne d'abord la formation de germes d'aluminium, puis une solidification eutectique. Une solidification hyper-eutectique lente, quant à elle, provoque la formation d'intermétalliques aluminium-fer-silicium, en premier, suivie de la même solidification eutectique [47], [56], [62]. L'alliage aluminium-fer-silicium possède aussi des phases métastables. En effet, en s'éloignant de l'équilibre, il est possible de faire germer des intermétalliques qui possèdent une composition stoechiométrique différente de celle à l'équilibre [19], [41], [47], [48], [62]. Un refroidissement rapide peut donc entraîner la formation d'eutectiques différents de ceux présentés dans les différents diagrammes de phases, mais aussi changer les phases germant avant la solidification eutectique. On peut donc, en fonction du refroidissement, obtenir deux microstructures très différentes.

Nous nous attarderons maintenant plus particulièrement à l'intermétallique Al_5FeSi - β , parfois retrouvé dans la littérature sous le nom de $\text{Al}_9\text{Fe}_2\text{Si}_2$ - β ou encore $\text{Al}_{4.5}\text{FeSi}$ - β [41], [62], [64]. Ce type de particule intermétallique germe en premier lors de la solidification d'un alliage eutectique aluminium-silicium dopé en fer. Cet intermétallique est associé à une chute des propriétés mécaniques des alliages aluminium-silicium [42], [45]. Comme pour Al_3Fe , les chercheurs ont longtemps cru que c'était une propriété de l'intermétallique lui-

même que de se fendre en son centre en raison des contraintes thermiques. Cependant, c'est le même phénomène que l'on observe pour les plaquettes d' Al_3Fe : la fissure était déjà présente lors de la germination et de la croissance de l'intermétallique [19], [20], [41], [42], [47], [62]. En effet, comme mentionné précédemment, l'intermétallique Al_5FeSi - β germe de préférence sur les parois d'oxyde d'aluminium qui constituent les bifilms. Il a même été observé par Gorny et al. [62] qu'il s'agirait en fait d'une germination d' Al_3Fe qui réagit avec le liquide par réaction péritectique pour former $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si}$ - α , qui lui aussi réagit avec le liquide pour former Al_5FeSi - β . Les auteurs remarquent même qu'il est toujours possible d'observer une fine couche de quelques nanomètres d' Al_3Fe lorsqu'on observe des particules primaires d' Al_5FeSi - β ou d' $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si}$ - α . Les conditions qui déterminent s'il y a germination d' Al_5FeSi - β ou d' $\text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si}$ - α peuvent être évaluées sur les cartes de sélection de microstructures. La Figure 1-10 est un exemple de carte de sélection de microstructures pour un alliage Al-7Si-xFe . On y constate que la germination de l'intermétallique Al_5FeSi - β est favorisée lorsque le refroidissement est lent (proche de l'équilibre) et aussi lorsque la concentration en fer augmente.

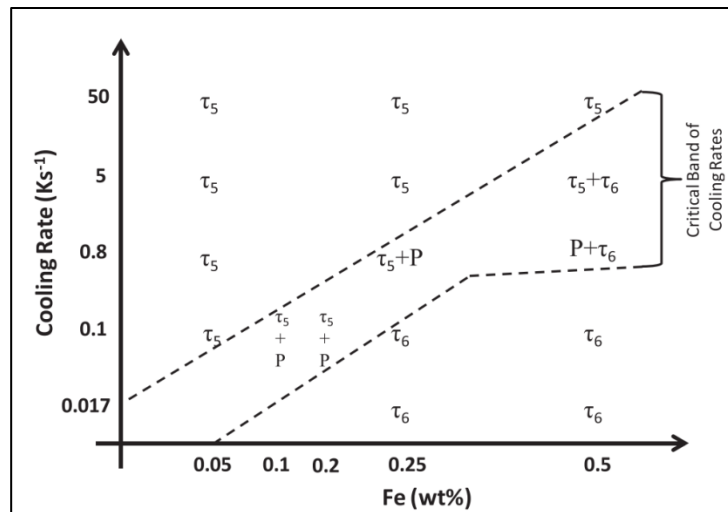


Figure 1-10 : Exemple de carte de sélection de microstructure pour Al-7Si-xFe , ($\tau_5 = \text{Al}_8\text{Fe}_2\text{Si}$ - α , et $\tau_6 = \text{Al}_5\text{FeSi}$ - β), [62]

2. Méthodologie

2.1. Approche expérimentale

Rappelons que l'objectif principal de ce projet est d'étudier le comportement des particules appelées bifilms durant la solidification d'alliages d'aluminium-fer et d'aluminium-fer-silicium. La perspective de développer une méthode pour séparer les bifilms d'oxyde qui contaminent les alliages d'aluminium liquides motive cette étude.

Tel que mentionné au Chapitre 2, plusieurs forces s'exercent sur les bifilms : la force inertielle et la poussée d'Archimède qui dépendent de l'accélération à laquelle est soumise la masse liquide et la force de traînée (visqueuse). La vitesse limite de déplacement de ces particules (sédimentation et flottation) est fonction de la taille des particules (D'), de la différence de densité entre les particules et le liquide (ρ' et ρ) et de la grandeur de l'accélération. Elle dépend également de l'encombrement des particules (facteur de forme). La vitesse limite augmente donc avec la sphéricité et la taille de la particule et lorsque sa densité moyenne est très différente de celle du liquide et lorsque l'accélération est élevée. Dans ce projet, l'étude du comportement des bifilms pendant la solidification a été effectuée en variant les conditions expérimentales pour deux alliages du système Al-Fe et Al-Fe-Si.

Pour augmenter la vitesse limite des particules en suspension dans l'aluminium pendant la solidification, deux stratégies ont été mises à profit. D'une part, on a utilisé une caractéristique de germination et de croissance des particules d'intermétalliques du système Al-Fe-Si. En effet, les travaux antérieurs [14], [19]–[21] ont montré que les intermétalliques riches en fer, dont Al_3Fe et $\text{Al}_5\text{FeSi}-\beta$, germent de manière préférentielle sur l'oxyde d'aluminium et donc aussi sur les bifilms qui se trouvent dans le liquide. Une fois la germination et la croissance de la phase de l'intermétallique amorcées, il en résulte une particule composite dont la masse volumique dépend de la proportion en volume de la pellicule d'oxyde d'aluminium, du gaz résiduel enfermé dans le bifilm et de celle de la phase intermétallique qui croît sur la pellicule d'oxyde. Comme la pellicule d'oxyde qui constitue l'enveloppe du bifilm est généralement très mince et que le volume de gaz résiduel peut être plutôt faible, la masse volumique apparente de la particule composite tend vers celle de l'intermétallique dont l'épaisseur augmente en fonction de sa taille. La présence du fer dans les particules de la phase intermétallique leur confère une masse volumique bien supérieure à celle du liquide dans lequel elles se sont formées. Il est donc possible de faire sédimenter plus rapidement les bifilms à l'aide de la phase intermétallique qui se développe

dans les alliages d'aluminium contenant du fer. Il est crucial par ailleurs que les particules composites demeurent libres suffisamment longtemps pour permettre la sédimentation.

D'autre part, on a utilisé un montage expérimental qui permet de soumettre des alliages d'aluminium liquides à des cycles thermiques et des accélérations contrôlées jusqu'à 20 fois l'accélération gravitationnelle terrestre. Ce montage est décrit en détail dans la sous-section des techniques expérimentales.

Pour réaliser cette étude, on doit respecter un certain nombre de contraintes. (1) Il faut choisir un alliage dont la phase primaire est constituée d'un intermétallique riche en fer, Al_3Fe ou $Al_5FeSi-\beta$ qui germent sur les bifilms. La phase Al_3Fe apparaît au début de la solidification dans les alliages hypereutectiques du système aluminium-fer [65]–[67]. La phase $Al_5FeSi-\beta$ se forme au cours de la première réaction (eutectique) dans le système ternaire aluminium-fer-silicium, soit avant la formation des dendrites riches en aluminium [42], [44], [47]. Il faut rappeler que la formation en réaction secondaire (ou tertiaire) de phases intermétalliques riches en fer n'est d'aucune utilité en égard aux objectifs visés puisque les particules germeraient alors sur des bifilms dont le mouvement est entravé par les phases primaires. (2) Pour ne pas gêner le libre mouvement dans le liquide des particules qui se forment sur les bifilms et considérant leur encombrement, il est nécessaire de ne pas excéder une certaine proportion en volume de solide d'intermétallique primaire. Une proportion maximale de solide intermétallique primaire inférieure à 5% devrait permettre d'atteindre cet objectif. (3) Il faut aussi qu'il y ait un délai suffisant avant l'apparition de phases secondaires pour permettre aux particules d'intermétalliques primaires de se déplacer avec les bifilms sur lesquels elles ont germé. Ce délai est fonction de l'intervalle liquidus-solidus et du taux de refroidissement pendant la solidification. Chez les alliages d'aluminium, le point de cohérence dendritique (PCD) est rarement inférieur à 10% de solide [68]–[73].

Le logiciel de calcul thermodynamique ThermoCalc [55] a été utilisé pour réaliser des simulations de solidification d'alliages de compositions chimiques différentes en vue d'en choisir un dont la phase primaire est constituée de l'intermétallique Al_3Fe , et l'autre, de l'intermétallique $Al_5FeSi-\beta$. Ces alliages ont été conçus en tenant compte des contraintes décrites précédemment, soit de :

1. S'assurer que les phases riches en fer, Al_3Fe ou $Al_5FeSi-\beta$, germent en premier;

2. S'assurer de ne pas dépasser 5% en volume de solide avant la réaction suivante,
3. S'assurer que la différence de température entre le liquidus et la réaction suivante soit suffisante pour laisser le temps aux intermétalliques de sédimenter.

Une fois choisis, les deux alliages ont été préparés et coulés en barreaux dans des moules d'acier afin de réaliser des petits spécimens cylindriques pour étudier l'influence des conditions d'accélération. La solidification de ces cylindres se fait rapidement et ne laisse donc pas le temps aux particules primaires d'intermétallique de sédimenter.

Pour les essais de centrifugation, les spécimens des alliages (petits cylindres) ont été insérés dans la centrifugeuse à température ambiante, puis chauffés jusqu'à fusion complète. La température a été maintenue assez longtemps pour dissoudre tous les intermétalliques et aussi pour obtenir un équilibre en hydrogène dissout entre l'alliage liquide et l'atmosphère. En condition d'accélération élevée, la rotation de la centrifugeuse a été ajustée pour obtenir 20G, puis on laissait refroidir les spécimens jusqu'à solidification complète. La centrifugation élevée était donc appliquée sur les spécimens cylindriques au tout début de la solidification. En condition d'accélération gravitationnelle normale, la sédimentation a été étudiée avec le même montage mais sans rotation du système. Après les essais de centrifugation, la quantité de particules d'intermétallique ayant sédimenter dans les spécimens a été étudiée. Cette sédimentation a produit une couche d'épaisseur variable constituée de particules d'intermétalliques.

Pour être en mesure de caractériser la taille de la zone de sédimentation et la nature et la distribution des particules, certains spécimens ont été découpés le long de l'axe du cylindre et polis pour en révéler les microstructures. La position de l'interface de sédimentation, la forme des particules ayant sédimenter et la porosité ont été analysés. Une cartographie élémentaire a été réalisée pour révéler la présence du fer et localiser les intermétalliques Al_3Fe et $Al_5FeSi-\beta$ qui sont les phases qui en contiennent le plus. Il a donc été possible de déterminer dans quelle zone on retrouve les intermétalliques et surtout la taille de cette zone.

Des barreaux ont aussi été sectionnés transversalement en quatre sections et examinés pour caractériser la présence des bifilms. Ceux-ci étant très difficiles à identifier en raison de leur faible épaisseur (20 nm jusqu'à quelques micromètres), un test a été développé pour les mettre en évidence. Ce test est semblable au Test à Pression réduite utilisé en fonderie

(« Reduced Pressure Test – RPT » [16], [17]). Des morceaux de spécimens centrifugés sous 20G (ou solidifiés en sédimentation naturelle sous 1 G) ont été refusionnés dans un petit creuset et solidifiés sous un vide partiel. Quelques essais ont été nécessaires afin de bien établir les conditions de refroidissement optimales. Comme les bifilms prennent de l'expansion en raison de la présence d'argon résiduel et sous l'effet de la diffusion d'hydrogène, après la solidification complète, le gonflement laisse des pores dont il suffit de caractériser la présence. Comme il n'a pas été possible de préciser la quantité d'hydrogène dissout lors du test et que l'hydrogène est partiellement responsable du volume de gonflement, nous n'avons pas considéré les modifications de volume des spécimens mais plutôt le nombre de bifilms distincts dans les différents spécimens d'échantillon par superficie de métal (nb/cm²) sans égard à leur taille. [16], [17], [53], [74]. On a appelé ce test : Test à Pression Réduite Modifié – TPRM. Pour des fins de comparaisons, un morceau de chaque alliage tel que coulé dans le moule d'acier a aussi été évalué pour fournir une valeur de référence.

Il est important de remarquer que la composition chimique des différents échantillons que l'on passe au TPRM varie même s'ils proviennent tous du même alliage, puisqu'une variation de la composition chimique engendre aussi une variation des températures du liquidus et du solidus de ces échantillons. Comme la température du liquidus varie, la température à laquelle on peut dissoudre tous les intermétalliques, et donc libérer les bifilms liés, varie aussi. Il faut s'assurer de réaliser tous les TPRM à une température adéquate. Cette température a été choisie en fonction du liquidus de l'échantillon le plus concentré en éléments d'alliages et est la même pour tous les échantillons d'un même barreau. Un schéma de la procédure expérimentale complète se trouve à la Figure 2-1.

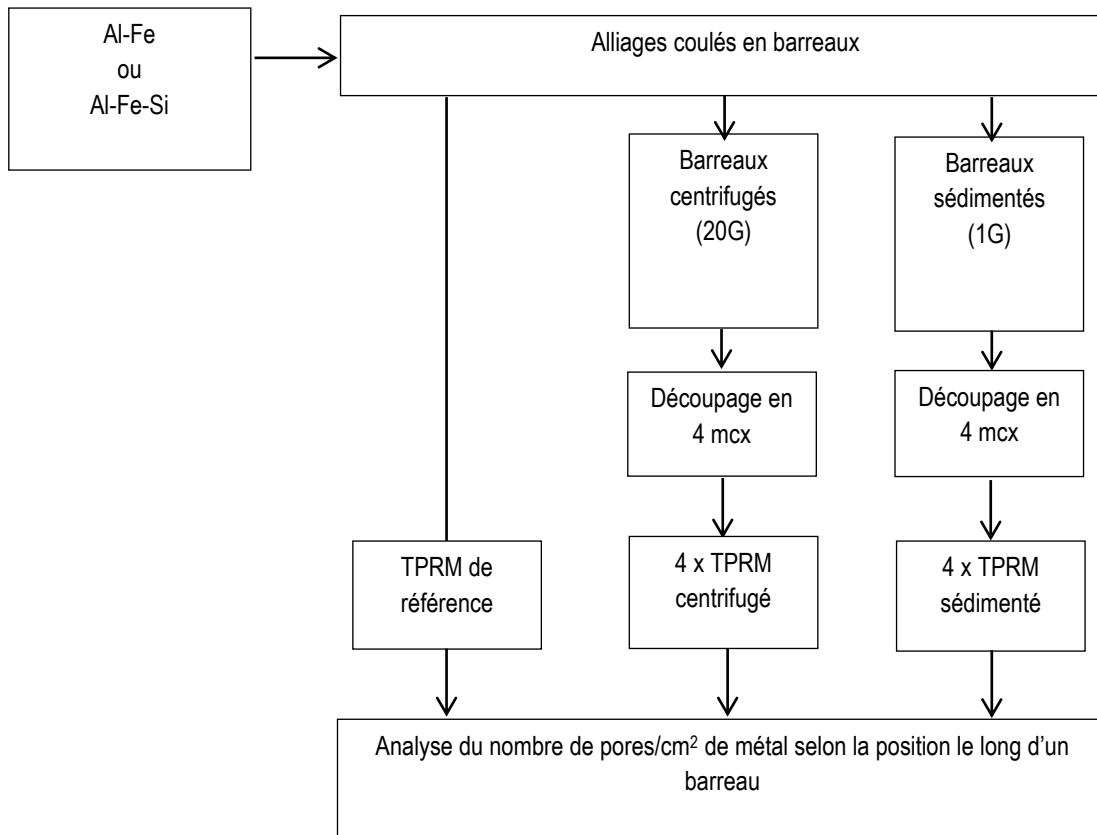


Figure 2-1 : Procédure expérimentale en schéma

2.2. Matériel

2.2.1. Matières premières utilisées pour préparer les alliages expérimentaux

Pour préparer les alliages, trois éléments sont nécessaires : l'aluminium, le silicium et le fer. Le silicium utilisé provient d'un lingot d'alliage Al-25%Si fourni par Alcan, une ancienne entreprise canadienne de fabrication d'aluminium maintenant connue sous le nom de Rio Tinto Alcan. Les lingots d'aluminium pur sont fournis par la compagnie AIM (Fer et Métaux Américain), une entreprise de recyclage de métaux. Les compositions chimiques de ces lingots sont indiquées au Tableau 2-1 et nous proviennent toutes deux des fournisseurs. Tous les morceaux de lingots d'aluminium et Al-25%Si ont été découpés à la scie à ruban. Le fer utilisé provient de morceaux de fer 99,9% pur découpés à la guillotine et laminés pour augmenter la surface de contact avec l'aluminium liquide. Avant d'être dissoute dans l'aluminium liquide, chaque plaque a été nettoyée au jet de sable pour retirer tout oxyde présent en surface. Les plaques ont été ensuite brossées avec une brosse d'acier inoxydable pour retirer les particules de sable pouvant s'être logées dans le fer, puis lavées, rincées et séchées.

Tableau 2-1 : Composition chimique des lingots de base utilisés pour la préparation des alliages-mères

Échantillon	Composition chimique (% massique)							
	Fe	V	Ni	Si	Ti	Ga	Zn	Al
Aluminium pur	0.05	0.01	0.01	0.05	0.01	0.01	0.01	Bal.
Al-25Si	0.21	0.00	0.00	24.9	0.00	0.00	0.00	Bal.

2.2.2. Fours et creusets pour la préparation des alliages mères

Les alliages-mères ont été préparés en utilisant un four à induction « NORAX » et des creusets de carbure en silicium de taille #6 (capacité de 1000 cm³) vendus par « Morgan Crucible », une compagnie américaine produisant des creusets de fusion de différentes tailles et pour différentes applications. La température du four a été mesurée en continu avec un thermocouple de type « K » de 6 mm de diamètre et enduit d'un poteyage de nitrure de bore. Pendant les fusions, ce thermocouple était placé juste au-dessus de la surface du métal, à moins d'un centimètre du liquide. Il était donc normal d'observer de légères différences de température entre ce thermocouple et l'aluminium liquide dans le creuset. C'est pourquoi la température du bain était également suivie de manière plus précise à l'aide d'un thermocouple de type « K » de 4 mm de diamètre plongé manuellement pendant environ 20 secondes dans l'aluminium, soit assez longtemps pour lire une température stable, et ce à des intervalles de 2 minutes. Un couvercle de laine réfractaire recouvrait le creuset pour diminuer les pertes de chaleur.

Les creusets neufs ont été préalablement conditionnés en les chauffant progressivement à 200°C sur 2 heures, puis en les chauffant rapidement à 900°C et en les gardant à cette température au moins 2 heures. Pour ce conditionnement, les creusets étaient placés à l'envers pour permettre à toutes phases liquides résiduelles de couler lors du chauffage à 900°C. Si les creusets n'étaient pas neufs, il fallait tout de même les faire sécher avant de les utiliser. Toute humidité résiduelle se décompose à haute température et résulte en un apport non désiré d'hydrogène et d'oxygène lors des fusions. Pour les faire sécher, ils ont été chauffés de la température ambiante jusqu'à 200°C sur 75 minutes, puis gardés à cette température pendant au moins 8 heures. Pour minimiser la dissolution du matériel du creuset de carbure de silicium dans l'aluminium lors de la première fusion, les différents creusets utilisés ont été rincés avec de l'aluminium pur aux températures d'opération du four. On s'assure ainsi aussi qu'aucun résidu soluble ne se trouve dans le creuset lors des

fusions des alliages expérimentaux. Une fois les creusets conditionnés, rincés et adéquatement séchés, la préparation des alliages peut alors être réalisée.

2.2.3. Les creusets utilisés pour les essais de sédimentation, de centrifugation et les tests à pression réduite modifiés (TPRM)

Les creusets utilisés lors des essais de sédimentations, de centrifugations et de TPRM étaient en alumine pure à 99,7% et conçus spécialement pour s'ajuster dans les supports à creusets en acier du four de centrifugation. Ils ont été fabriqués par la compagnie Chinoise « Zhengzhou Mission Ceramic Product Co. » qui se spécialise dans la fabrication de creusets de céramique résistant à haute température. Les creusets de forme cylindrique mesuraient 130 mm de haut et leurs diamètres intérieur et extérieur étaient de 22 mm et 30 mm respectivement (paroi d'environ 4 mm d'épaisseur). Avant chaque utilisation, une fine couche de poteyage de nitrure de bore a été déposée à l'intérieur. Cette couche servait à empêcher les alliages de réagir avec la silice résiduelle des creusets et facilitait le démoulage. Pour enduire la surface intérieure, le poteyage était d'abord mélangé à de l'eau pour former un liquide avec des particules de nitrure de bore en suspension. Puis, les creusets étaient chauffés à 150°C et l'intérieur des creusets était ensuite enduit de ce liquide qui séchait rapidement pour ne laisser qu'une fine couche de poteyage sec.

2.2.4. Four de centrifugation

Pour réaliser les tests en centrifugation, un four à résistance électrique a été utilisé. Ce four a été modifié pour y insérer un système de centrifugation. Une vue de l'intérieur du four et de son montage rotatif est illustrée à la Figure 2-2. Le dispositif porte-creusets était fixé sur une plaque d'acier soudée à un mandrin vertical qui traverse la paroi inférieure du four. Le mandrin était lui-même entraîné en rotation par l'arbre d'un moteur électrique à vitesse variable situé sous le four. Le dispositif porte-creusets consiste en quatre supports à creuset en acier disposés à 90° les uns par rapport aux autres. Comme chaque creuset est toujours opposé à un autre, on minimise le débalancement lors de la rotation et donc les vibrations engendrées. Ces supports étaient installés sur des pivots leur permettant de pivoter d'une position verticale à une position presque horizontale lors de la centrifugation.

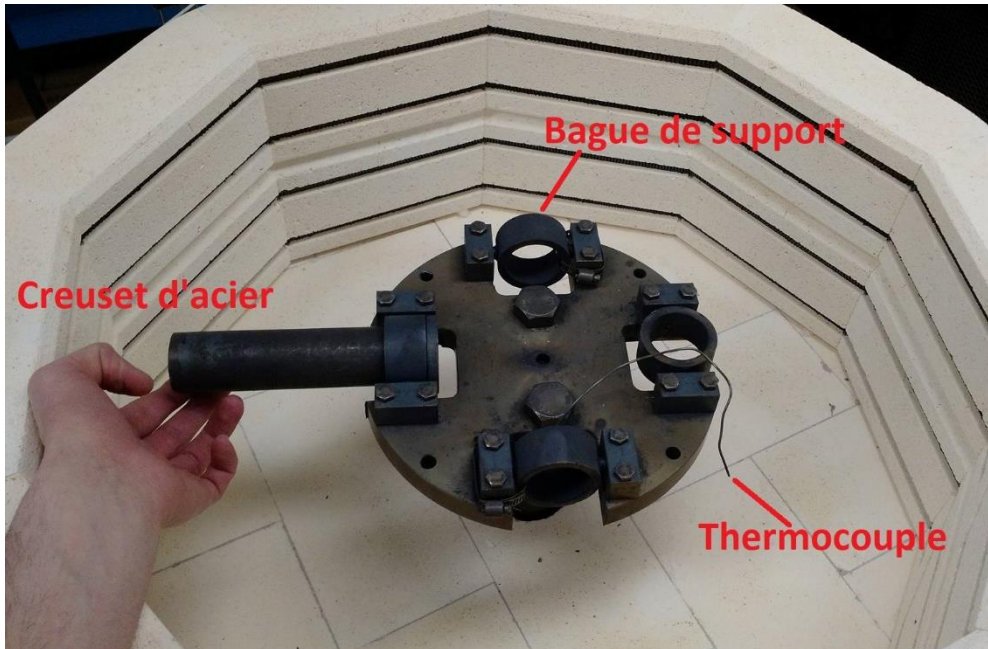


Figure 2-2 : Four et système rotatif utilisé pour la centrifugation et la sédimentation. Un seul creuset d'acier y est installé, mais le dispositif peut en recevoir 2 ou 4.

Les aciers qui ont été choisis pour la fabrication des différentes parties du dispositif rotatif sont l'acier inoxydable austénitique 316L et l'acier ferritique de type 430. Ces aciers possèdent une bonne résistance mécanique pour les températures expérimentales visées et une perte de masse par oxydation moindre que les aciers au carbone classiques. Ces deux alliages ne présentent aussi aucun changement de phase sur la plage de température étudiée [75]. Un changement de phase pourrait libérer de l'énergie, ce qui fausserait les données de températures et influencerait sur les processus de solidifications de l'alliage. Les supports à creuset sont conçus en acier inoxydable austénitique 316L. Ils sont de forme cylindrique et disposent d'un épaulement en haut pour se glisser dans les bagues auxquelles sont fixés les pivots, voir Figure 2-2. On peut donc les retirer du montage sans sortir les pivots de leur logement. Les porte-creusets d'acier mesurent 158 mm de haut et ont un diamètre intérieur et extérieur de 32 mm et 37 mm respectivement, avec une épaisseur de paroi d'environ 2,5 mm. Il existe un espace de 1 mm entre le creuset d'alumine et son porte-creuset d'acier où était placée de la laine réfractaire. On peut voir un schéma de ce montage à la Figure 2-3. Cet isolant sert à minimiser les pertes thermiques entre le creuset et l'acier, à uniformiser le flux thermique vers la surface du creuset et à éviter de drainer la chaleur par un seul endroit où il pourrait y avoir un contact alumine-acier. L'avantage de l'utilisation de la laine minérale réfractaire est sa souplesse; elle peut être découpée à la forme désirée puis enroulée autour des creusets d'alumine avant leur

insertion dans leurs supports. Une couche de la même épaisseur, soit 1 mm compacté, a aussi été déposée sous le creuset, c'est-à-dire au fond du porte-creuset d'acier. La laine est maintenue en place à l'aide d'un fin fil de fibre de verre enroulé autour de la laine pour éviter qu'elle ne se déplace lors de son insertion. Les thermocouples utilisés pour la prise de température du creuset et du liquide mesurent 1 m de long, ce qui permettait de les faire longer le dispositif de rotation des creusets jusqu'au bas du mandrin. À cet endroit, ils étaient connectés à un dispositif de transmission de données sans fil qui lui-aussi tourne avec le système. Un ordinateur connecté à une base de réception recueillait les données en temps réel.

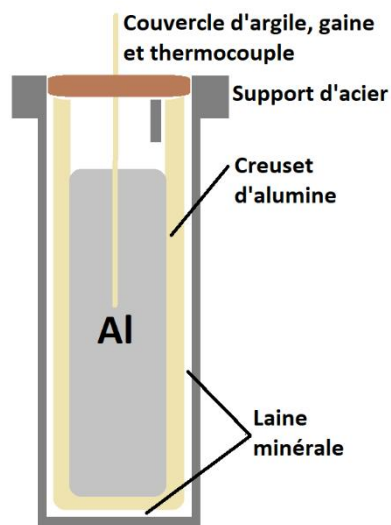


Figure 2-3: Schéma du montage des creusets allant dans le four rotatif, avec thermocouple.

2.2.5. Le moule à barreaux utilisé pour préparer les spécimens destinés à la centrifugation, la sédimentation et les tests à pression réduite modifié (TPRM)

Le moule utilisé pour la fabrication des barreaux qui sont centrifugés a été fabriqué à partir d'un acier de grade 44W conforme à la norme CAN/CSA-G40.20/G40.21-98 [76]. Deux cavités verticales de 20.5 mm de diamètre ont été usinées dans le moule pour produire les barreaux d'alliages expérimentaux. Ce moule est illustré à la Figure 2-4. Le moule a été enduit d'un poteyage au nitrure de bore avant sa première utilisation.

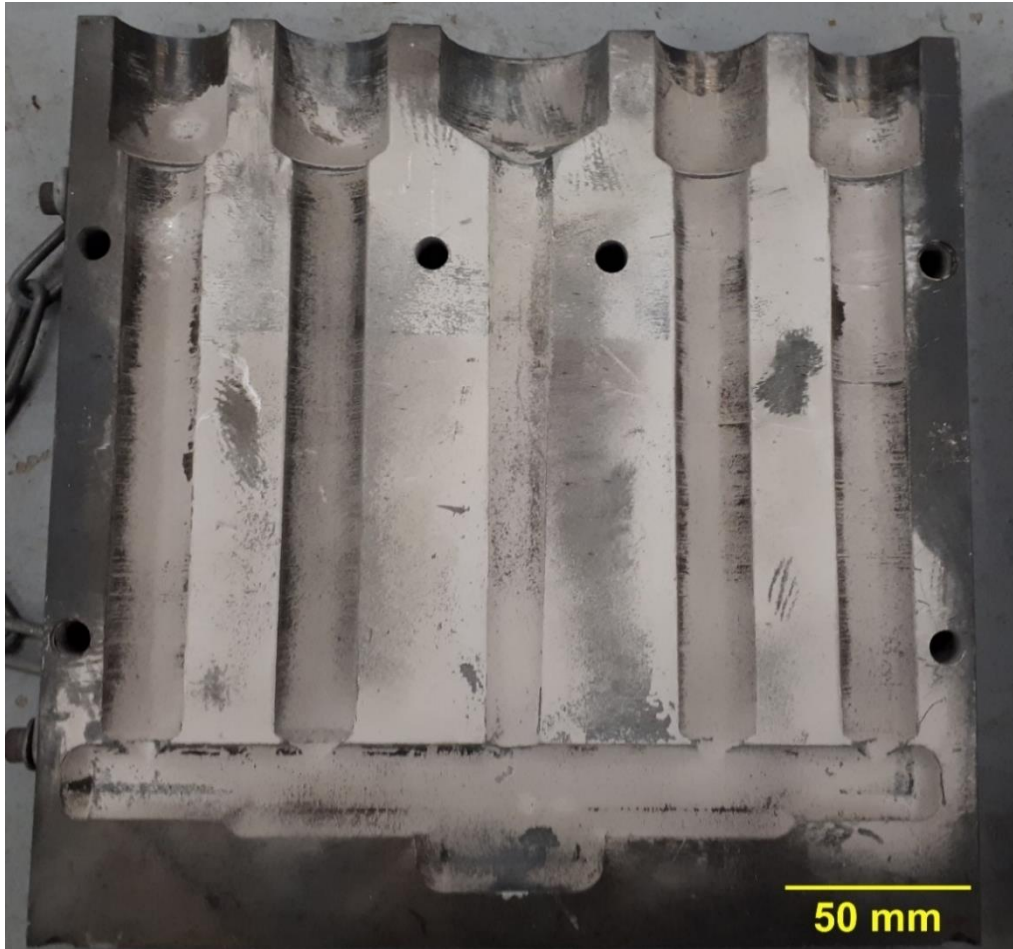


Figure 2-4 : Demi-moule d'acier servant à couler les barreaux qui seront éventuellement insérés dans les creusets d'alumine pour les différents tests. Les trous ronds servent à aligner les deux parties du moule avec des gougeons d'alignement. Le poteyage est visible sous forme d'une fine poudre blanche à la surface de l'acier.

2.3. Procédures expérimentales détaillées

2.3.1. Choix des alliages expérimentaux

La composition des alliages expérimentaux a été choisie en tenant compte de trois contraintes particulières :

1. Obtenir une germination primaire des phases Al_3Fe ou $Al_5FeSi-\beta$;
2. Ne pas dépasser 5% en volume de solide avant la solidification de l'eutectique finale;
3. S'assurer d'un écart de température suffisant entre le liquidus et l'eutectique afin de laisser le temps aux particules d'intermétallique de sédimenter.

Un premier alliage a été choisi dans le système Al-Fe : il permettra d'obtenir la phase primaire Al_3Fe . Un second alliage a été choisi dans le système ternaire aluminium-fer-silicium afin de produire des particules de phase primaire contenant $Al_3FeSi-\beta$. Ces deux phases sont, rappelons-le, capables de germer sur les bifilms d'oxyde d'aluminium. Pour calculer la quantité précise de fer à ajouter à l'aluminium, le logiciel ThermoCalc a été utilisé. Ce logiciel permet de calculer les phases se formant lors de la solidification à l'équilibre d'un alliage de composition chimique spécifiée.

Le logiciel ThermoCalc [55] a été utilisé pour produire le diagramme de phase binaire de l'alliage aluminium-fer que l'on retrouve à la Figure 1-5. Ce diagramme montre la température de la réaction eutectique ($654^\circ C$) et la plage de température dans laquelle l'intermétallique Al_3Fe germe. La phase primaire Al_3Fe est formée lorsque l'alliage liquide contient entre 2.2 % et 39 % massique de fer. À l'aide du diagramme d'équilibre Al-Fe et en utilisant les masses volumiques respectives de l'aluminium et de la phase Al_3Fe la fraction volumique de chaque phase peut être calculée. Il a été déterminé qu'avec un alliage contenant 3.91% massique de fer, on obtient 3.3% en volume de particules intermétalliques avant la solidification eutectique et un autre 3.4% en volume de particules intermétalliques plus fines germant pendant la solidification eutectique. À cette concentration de fer, la différence de température entre le liquidus et l'eutectique est de $85^\circ C$, ce qui est suffisant pour laisser le temps aux intermétalliques de sédimenter en suivant le taux de refroidissement naturel du four éteint à partir de $750^\circ C$. On retrouve la courbe de refroidissement du four à la Figure 2-5.

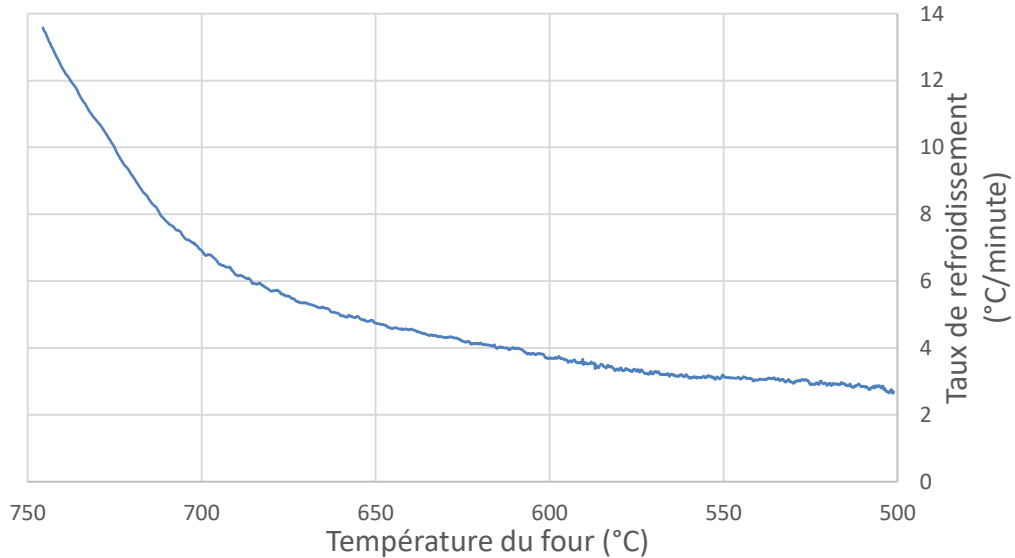


Figure 2-5 : Taux de refroidissement de l'enceinte du four de centrifugation lorsque l'alimentation électrique est éteinte à 750°C

L'alliage ternaire a été choisi dans le système aluminium-fer-silicium pour obtenir l'intermétallique $Al_5FeSi-\beta$. Dans le diagramme de phase ternaire Al-Fe-Si (Figure 1-9), il faut chercher la zone dans laquelle il ne se trouve que la phase intermétallique $Al_5FeSi-\beta$ (phase $\tau-6$) et le liquide de composition eutectique tout juste avant la solidification eutectique. On observe donc que cette zone correspond à une composition eutectique aluminium-silicium enrichie en fer. Selon le diagramme aluminium-silicium, la température de solidification eutectique est de 576°C et se trouve à 12.55% de silicium. À cette étape, on reprend la même procédure que pour le binaire aluminium-fer. Il a été déterminé qu'à 1.1% de fer, la fraction volumique d' $Al_5FeSi-\beta$ serait de 0.7% avant solidification eutectique. On se retrouve loin de notre limite maximale de 5% volumique, mais il s'agit d'une limite, et non d'une cible. À cette concentration, la différence entre le liquidus et l'eutectique est de 15°C, ce qui est suffisant pour laisser le temps aux intermétalliques de sédimenter si on choisit un taux de refroidissement suffisamment faible entre le liquidus et l'eutectique. Pour solidifier l'alliage dans un même intervalle de temps que prendra l'alliage d'Al-Fe à solidifier, soit environ 25 minutes, il faut refroidir à un taux de 0.5°C/minute. Les compositions chimiques cibles des deux alliages à concevoir sont résumées dans le Tableau 2-2.

Tableau 2-2 : Composition chimique et caractéristiques des alliages expérimentaux destinés à la centrifugation, à la sédimentation naturelle et aux tests à pression réduite modifié (TPRM)

Alliages	Composition chimique (% massique)			% d'intermétallique avant la solidification eutectique (% volumique)	T liquidus (° C)	T eutectique (° C)
	Al	Fe	Si			
Al-Fe	bal.	3.91	0.00	3.3	739	654
Al-Fe-Si	bal.	1.10	12.55	0.7	592	575

2.3.2. Préparation des alliages mères

Pour produire les deux alliages expérimentaux, on a utilisé de l'aluminium pur, un alliage Al-25%Si, et des alliages-mères Al-Fe à forte concentration en fer. Ces matériaux ont été recombinaés entre eux et dilués avec de l'aluminium pur pour produire les deux alliages expérimentaux.

Pour préparer un alliage mère Al-Fe, la quantité requise d'aluminium nécessaire est déposée dans le creuset puis fondue et amenée à la température de dissolution choisie pour le fer, soit environ 900°C. Une fois la température du bain stabilisée, on y plonge les barres de fer pur. Après immersion, lorsque la barre de fer semble assez grugée par la dissolution pour devenir fragile, on la retire et la remplace par une nouvelle pour éviter qu'un morceau ne s'en détache et ne coule au fond. La saturation d'environ 2 kg d'aluminium à 900°C prend environ 3h. Lorsque la cinétique de dissolution est assez lente, c'est-à-dire lorsque le taux de dissolution du fer est assez faible pour qu'on considère l'aluminium comme étant saturé, on retire la dernière barre de fer. Il est nécessaire de garder une bonne fluidité dans l'aluminium lors de sa coulée pour éviter toute ségrégation ou encore éviter que les intermétalliques commencent à se former lors de la coulée et n'entravent l'écoulement dans le moule lingotière. Comme l'aluminium est saturé, on se trouve théoriquement exactement sur le liquidus, ce qui fait qu'une légère descente en température entrainera une germination. Pour prévenir cette solidification trop rapide, nous avons deux solutions : augmenter la température du bain et diluer la solution en ajoutant de l'aluminium pur. Les deux techniques ont le même effet : s'éloigner de la température où la solidification s'initie (liquidus). Dans notre cas, nous avons fait le choix d'augmenter la température de coulée de 100°C et d'y ajouter environ 5% de la masse totale en aluminium pur. En s'éloignant ainsi du liquidus, on s'assure que le métal reste liquide assez longtemps, considérant que le four à induction utilisé nécessite quelques manipulations pour couler.

Lorsque l'alliage est prêt, on le coule dans une lingotière d'acier avec un poteyage de nitrure de bore. La composition chimique n'est pas exactement celle à l'équilibre sur le diagramme de phase, puisque l'aluminium a été légèrement dilué pour la coulée. La composition chimique réelle a été évaluée par MP-AES pour l'Al-Fe et la spectrométrie d'émission optique pour l'Al-Fe-Si. On a ainsi obtenu un alliage qui a été nommé Al-Fe-mère. Cinq alliages avec cinq concentrations en fer différentes ont été produits de cette façon. Les différents alliages-mère devraient tous avoir des concentrations en fer supérieur à ceux visés pour les alliages d'intérêt soient 3.91% et 1.1% massique en fer pour Al-Fe et Al-Fe-Si respectivement.

2.3.3. Procédure d'élaboration des alliages expérimentaux

Les deux alliages expérimentaux ont été élaborés en utilisant le four à induction et les mêmes creusets de carbure de silicium que ceux utilisés pour leurs alliages-mères. Nous disposons de plusieurs pièces d'aluminium avec des concentrations en fer variables, des morceaux d'Al-25Si ainsi que des morceaux d'aluminium pur. Le solveur de la suite Microsoft Excel est utilisé pour déterminer quels morceaux choisir pour avoir la composition chimique désirée. Dans ce cas, le critère à minimiser est la différence de composition chimique avec la cible. Il est possible de faire ces calculs puisque nous connaissons la composition chimique et la masse précise de chaque morceau d'alliage mère. Cette technique est utilisée puis qu'il est difficile de couper des morceaux de métal au gramme prêt et qu'une certaine incertitude est toujours reliée à ces coupes.

Tous les précurseurs sélectionnés ont été déposés dans un creuset de carbure de silicium. Lorsque toute la masse a fusionné et que la température est stable, le bain est remué à l'aide d'une cuillère-passoire enduite de poteyage. Cette même cuillère est utilisée pour écumer les impuretés flottant à la surface du bain. Toujours dans le but de minimiser les chances d'avoir une germination et une solidification avant que le moule ne se soit complètement rempli, il est nécessaire de réaliser la coulée à au moins 150°C au-dessus des liquidus calculés pour chaque alliage. Pour la coulée, la température du bain est donc maintenue à 900°C pour le binaire Al-Fe et à 800°C dans le cas de l'alliage ternaire Al-Fe-Si dont le liquidus est beaucoup plus bas, soit 592°C. Deux dernières opérations de brassage et écumage de la surface sont réalisées tout juste avant de procéder à la coulée. Lors de la première coulée de cet alliage, un pion d'analyse d'environ 120 grammes et deux moules à barreaux d'environ 1000 grammes ont été coulés. Le moule servant à couler les barreaux a été préalablement chauffé à 500°C dans un autre four pendant au moins une

heure pour aider à garder le métal fluide lors de la coulée. Le métal liquide est versé dans le moule par le bassin de coulée jusqu'à ce que le remplissage s'arrête parce que la solidification a commencé dans le moule (non désirée) ou encore lorsque le métal liquide atteint le haut des quatre masselottes débouchant au haut du moule. La solidification du métal dans le moule prend moins d'une minute, après quoi les deux sections du moule sont séparées, puis la pièce métallique est délogée du moule pour la laisser refroidir à l'air. Le creuset retourne dans le four à induction après la première coulée dans le but de réchauffer le métal liquide à 900°C pour réaliser la deuxième coulée à la même température. Les opérations de brassage et d'écumage sont aussi répétées tout juste avant la deuxième coulée. Lors de la deuxième coulée, on ne coule pas de pion d'analyse, seulement les barreaux. Le moule ne retourne pas au four entre les deux coulées. La température du moule est donc probablement un peu plus basse pour la deuxième coulée que pour la première, mais n'a pas été mesurée. Une fois les pièces refroidies, elles sont échantillonnées et les chemins de coulée et les masselottes sont séparées des barreaux. Ces barreaux seront ultérieurement ébavurés et découpés à la longueur désirée pour les tests de centrifugation, de sédimentation et/ou de TPRM.

2.3.4. Procédure pour les tests statiques (sédimentation naturelle) et en centrifugation dans le four rotatif

Les tests de sédimentation naturelle et les tests de centrifugation ont été réalisés dans le four présenté à la Figure 2-2. Les petits cylindres ont été coupés pour produire exactement la même masse de part et d'autre du système de rotation afin de ne pas le déséquilibrer. Comme les creusets que l'on utilise font 130 mm de profondeur, il est sécuritaire de travailler avec un niveau de métal liquide de 115 mm dans le creuset pour éviter le débordement lors de la fusion. Un niveau de 115 mm de liquide correspond à 38.5 cm³ de métal liquide pour ces creusets et donc à 91.36 grammes d'alliage Al-Fe. À l'état solide et à température ambiante, cette masse correspond à un volume de 32.56 cm³. Quelques-uns des barreaux ont été percés le long de leur axe pour permettre d'y insérer un thermocouple gainé d'alumine pour faire l'acquisition de la température lors des tests. Le bout de ce thermocouple arrive à environ 25 mm du fond du creuset. Le perçage de ce trou central a été réalisé avec une mèche au carbure pour éviter de contaminer l'alliage. Si on récapitule, nous avons de part et d'autre de l'axe de rotation : deux pivots d'acier montés sur un anneau de support, deux supports de creusets d'acier s'insérant dans ces anneaux, deux creusets d'alumine assis sur de la laine isolante, deux couvercles d'argile et, dans l'un

des deux échantillons, une gaine d'alumine insérée et fixée au centre du couvercle pour maintenir le thermocouple au centre du métal liquide. Toujours dans le but d'avoir la même masse de chaque côté, il est nécessaire de peser la gaine d'alumine pour pouvoir compenser cette masse avec un couvercle plus massif de l'autre côté. La Figure 2-3 montre ce montage.

Un second thermocouple a été utilisé pour enregistrer la température des creusets eux-mêmes. Ce deuxième thermocouple a été inséré entre le creuset d'alumine et celui d'acier, maintenu en place par la laine réfractaire séparant les deux creusets. Un troisième thermocouple a été utilisé pour enregistrer la température de l'enceinte du four. Ce dernier a été installé à mi-hauteur de la paroi et sa jonction était protégée par un cylindre d'alumine de 1 mm d'épais. Le thermocouple plongé dans l'aluminium n'était utilisé qu'une seule fois lors du premier test pour chaque alliage expérimental puisqu'il rend inutilisable le barreau dans lequel il est plongé. Les deux autres thermocouples sont présents lors de chaque test. Le thermocouple immergé dans l'aluminium sert à confirmer la température de l'alliage, à déterminer quelle est la différence de température entre l'alliage et le creuset, et combien de temps il faut à l'alliage pour atteindre la température du four, une fois la température du four stabilisée. Tous les thermocouples utilisés étaient des thermocouples de 1.2 mm diamètre de type « K » de la compagnie OMEGA. Les thermocouples autres que celui du four ont été fixés au système de rotation et, comme ils tournent avec le système, ils ont été connectés à des émetteurs sans fil fixés au bas du mandrin qui transmettent les données même lorsque les creusets sont en rotation. Les modules d'émission sont fixés sur un bloc de dissipation de chaleur en aluminium lui-même fixé sur l'arbre de rotation sous le four. Un module de réception capte le signal des deux thermocouples et transmet l'information à un ordinateur qui enregistre les données. Le thermocouple prenant la température du four est connecté directement dans un système d'acquisition de données indépendant des deux autres et opéré par un second ordinateur qu'il faut synchroniser avec le premier pour avoir des données cohérentes. Le système sans fil n'enregistre qu'une donnée par seconde.

Au moins 10 heures avant un essai de centrifugation ou de sédimentation naturelle, le montage est assemblé avec tous les éléments qui seront utilisés, dont les échantillons et les thermocouples. Ce montage est ensuite installé dans le four rotatif prêt à fonctionner et le four est préchauffé à 175°C jusqu'au lendemain, dans le but d'éliminer toute humidité présente. Le premier test à réaliser dans ce four est une montée et une descente en température. Il est nécessaire de faire ces tests pour déterminer à quel moment la lecture

de la température du creuset peut nous indiquer une fusion complète de l'alliage. Autrement dit, on veut savoir quelle sera la température lue sur le thermocouple du creuset et depuis combien de temps cette température sera lue au moment où la fusion sera complète. Il sera alors possible de se fier uniquement à la température de ce thermocouple pour déterminer le moment de la fusion complète, au lieu de devoir systématiquement avoir un thermocouple dans l'alliage liquide. On constate donc qu'il faut attendre 45 minutes après que la température du four se stabilise pour que la masse d'alliage atteigne la même température que le four. Il y a deux sources principalement responsables de ce retard à atteindre la température du four. La première est l'isolation des creusets qui joue bien son rôle et limite les flux thermiques entrant et sortant de l'échantillon. La seconde provient de la transformation de phases et des changements d'état qui s'opèrent lors de la fusion et lors de la solidification de l'alliage qui consomment de l'énergie au chauffage et en rejettent lors de la solidification. On peut bien voir les températures de changements d'état sur les courbes de températures des différents tests à la Figure 2-6.

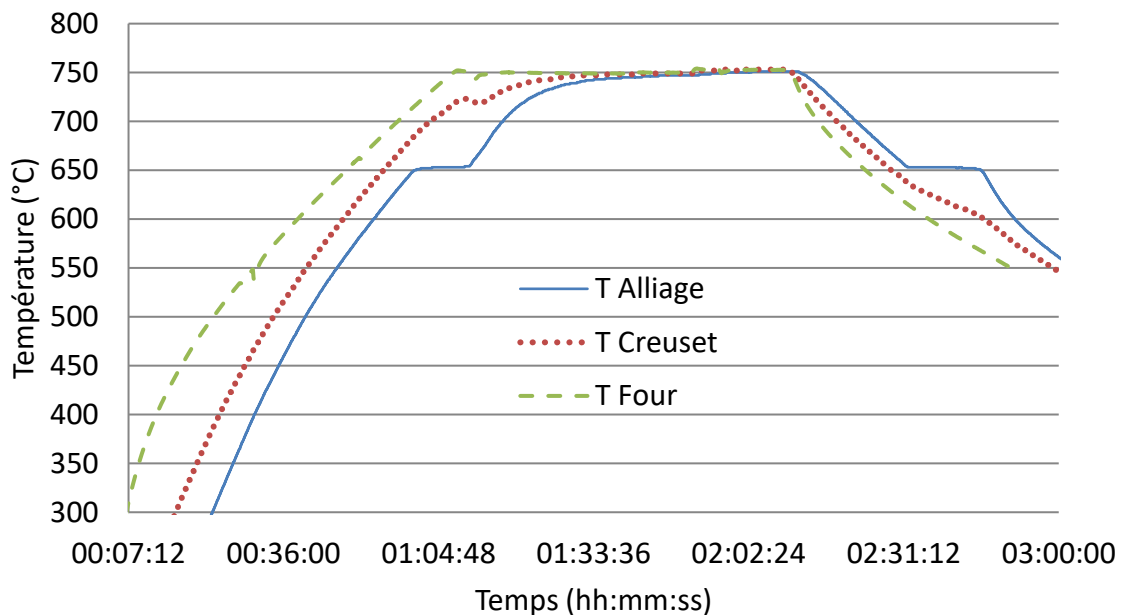


Figure 2-6 : Courbe de température du four, de l'alliage Al-Fe et du creuset lors d'un test de solidification à l'équilibre.

À la suite du préchauffage du système de centrifugation et des échantillons, le four est réglé à sa température d'opération. On note le moment précis où le four atteint sa température d'opération, puis on calcule 45 minutes. En se basant sur les tests préliminaires, on assume qu'à ce moment, la température des échantillons est la même que celle du four. Comme le

montage utilisé ne permet pas d'ouvrir chaque creuset pour mélanger manuellement les alliages, on attend 15 minutes à partir de ce moment pour s'assurer que tous les intermétalliques sont dissouts et que le liquide est homogène. Le système de rotation est activé dès que l'alliage a passé 15 minutes à la température visée, soit 750°C pour Al-Fe et 600°C pour Al-Fe-Si. Cela correspond à une heure après que la température du four s'est stabilisée. La vitesse de rotation du système est réglée à l'aide d'une molette qui contrôle le courant envoyé au moteur. Le système est réglé pour tourner à 303 tours par minute. Cette vitesse est mesurée à l'aide d'un tachymètre manuel et d'un repère collé sur l'arbre de rotation. À chaque passage du repère lors de la rotation de l'arbre, le tachymètre détecte un tour. La vitesse est ajustée au début du test et ne varie pas durant le test. Il n'est jamais nécessaire de la réajuster. La vitesse de rotation désirée est de 300 tours par minute, mais le système ne permet pas les légères modifications, alors l'incrément de vitesse le plus près de celle désirée était de 303 tours par minute.

Une minute après avoir activé la centrifugation, l'alimentation électrique du four est coupée pour l'alliage Al-Fe, mais les différents systèmes d'acquisition de données restent en fonction. Le taux de refroidissement naturel du four éteint à partir de 750°C est idéal pour solidifier l'alliage d'Al-Fe à l'équilibre. Un graphique du taux de refroidissement en fonction de la température pour un test préliminaire est illustré à la Figure 2-5. Pour l'alliage Al-Fe, c'est la partie entre 750°C et 600°C qui nous intéresse. Nous présentons la partie sous 600°C pour montrer que ce taux de refroidissement, bien qu'il soit plus faible, n'est pas approprié pour l'alliage Al-Fe-Si. Pour l'alliage Al-Fe-Si, c'est plutôt un taux de refroidissement contrôlé qui a été utilisé pour permettre au four de se refroidir avec un taux d'exactly 0.5°C/minute. Comme nous l'expliquons dans la section « Composition chimique de l'alliage expérimental Al-Fe-Si », la différence entre le liquidus et l'eutectique n'est que de 15°C pour cet alliage. Il faut donc refroidir le four beaucoup plus lentement. Le taux de refroidissement est alors fixé à 0.5°C/minute pour tenter d'avoir sensiblement la même durée de solidification que pour l'alliage Al-Fe, soit environ 25 minutes. Le système de centrifugation fonctionne alors tout le long de la descente en température et il est arrêté dès que la température de l'échantillon chute de 25°C sous son solidus. Cette température correspond à 630°C pour l'alliage expérimental binaire Al-Fe et 550°C pour l'alliage expérimental ternaire Al-Fe-Si. Lors du premier test, lorsque la température de l'alliage Al-Fe passe sous 630°C, celle des creusets est de 592°C, alors que pour Al-Fe-Si, lorsque la température de l'alliage passe sous 550°C, celle de son creuset est de 536°C. Pour les tests

subséquents qui n'ont pas de thermocouple dans le liquide, il faut se référer à la température des creusets pour déterminer à quel moment il n'y a plus de phases liquides en présence. Après l'atteinte de cette température, le four est légèrement entrouvert pour lui permettre de refroidir plus rapidement jusqu'à température ambiante.

2.4. Techniques d'analyses

Plusieurs techniques ont été utilisées pour caractériser les alliages mères, les alliages expérimentaux et les échantillons ayant subi les tests de sédimentation naturelle et de centrifugation. Les différentes techniques d'analyse utilisées sont les suivantes :

- Préparation métallographique optique et macrographie pour observer la microstructure des alliages.
- Spectroscopie d'émission optique à décharge électrique (OES) pour déterminer la composition chimique globale des échantillons.
- Spectrométrie d'émission atomique au plasma par micro-ondes, (MP-AES) pour déterminer la composition chimique globale des échantillons ne pouvant pas être analysés en OES.
- Cartographie élémentaire en micro-fluorescence de rayons X (micro-XRF) pour voir la position des intermétalliques de fer et de silicium dans les barreaux.
- Microsonde et cartographie élémentaire en diffraction de longueur d'onde en microscopie électronique à balayage (WDS) pour déterminer la composition chimique des intermétalliques et pour observer la microstructure des alliages.
- Test de solidification à pression réduite modifié (TPRM).

2.4.1. Échantillonnage des lingots et barreaux

Pour les analyses chimiques par voie humide, il a été nécessaire de prélever des échantillons représentatifs des pièces d'alliage. Lorsque de tels échantillons étaient nécessaires, des copeaux ont été prélevés sur les spécimens d'alliage à l'aide d'un foret de carbure de tungstène pour minimiser la quantité de fer pouvant se détacher de l'outil et se retrouver dans les copeaux. Pour l'analyse chimique des barreaux sortant du moule, quatre endroits ont été échantillonnés. Un plan de l'échantillonnage dans le moule est présenté à

l'Annexe A - Identification des lieux d'échantillonnage. Pour les lingots, l'échantillonnage a été fait de manière aléatoire en prélevant des copeaux sur toute l'épaisseur du lingot, et ce, à différents endroits sur sa surface. Les copeaux prélevés ont été répartis pour les diverses analyses chimiques à l'aide d'un séparateur à matière granulaire de manière à obtenir l'homogénéité et les masses requises pour chaque test. Lors des coulées des alliages finaux des pions d'analyse ont aussi été préparés pour certaines techniques d'analyse nécessitant un alliage homogène solidifié rapidement sur un bloc de cuivre.

2.4.2. Découpage, sablage et polissage

Les coupes préliminaires pour détacher les barreaux du chemin de coulée et des masselottes ont été effectués à l'aide d'une scie à métal manuelle. Toutes les autres coupes, que ce soit pour séparer un échantillon en plusieurs morceaux ou encore pour créer une face plane destinée à être polie et analysée, sont réalisées à l'aide d'une tronçonneuse à disque abrasif sous liquide de coupe. Chaque trait de coupe a fait perdre environ 2mm d'épaisseur d'échantillon.

Les barreaux destinés à l'imagerie ont été préalablement découpés perpendiculairement à l'axe du cylindre en trois ou quatre morceaux de tailles semblables selon le cas. Ce premier découpage était nécessaire pour permettre le polissage ultérieur et aussi pour permettre une coupe longitudinale, ce qui aurait été difficile avec des barreaux de 10 cm de long. Chaque section a ensuite été identifiée avec une lettre commençant avec « A » pour le morceau du haut et en descendant ainsi jusqu'à « C » ou « D ». La moitié des sections ainsi identifiées ont été polies et les autres conservées telles quelles. Le polissage a été effectué sur des tables de polissage rotatives en utilisant un débit d'eau constant. La base de la table est une plaque de laiton plane sur laquelle sont fixés des papiers abrasifs. La vitesse de rotation de la table et le débit d'eau sont contrôlés. L'eau sert à la fois de lubrifiant et aide aussi à laver les particules arrachées à la surface par le papier abrasif. Le polissage pour l'Al-Fe a été fait sur des papiers abrasifs selon l'ordre de grain suivant : 180, 240, 320, 400, 600 puis finalement 800. La séquence est la même pour le Al-Fe-Si, mais on arrête le polissage au papier abrasif de grain 320. Comme la majorité des échantillons à polir contiennent des pores, il était nécessaire de bien nettoyer ces dernières entre chaque polissage. En effet, il arrivait fréquemment que des particules d'abrasif ou encore d'intermétallique se logeaient dans les pores et ressortent lors d'un polissage subséquent laissant des traces de type « roue de tracteur » à la surface. Ces traces sont laissées par une particule anguleuse ayant roulé à la surface plutôt qu'ayant laissé une égratignure.

L'égratignure conventionnelle laisse une ligne continue de faible profondeur, alors que la « roue de tracteur » laissera une série de petites cavités formant un arrangement récurrent sur une ligne pouvant être assez large par rapport à l'égratignure conventionnelle. Il était donc nécessaire de nettoyer les différents échantillons aux ultra-sons dans un bain d'eau et de savon pour en déloger les particules présentes dans les pores et les intermétalliques pouvant facilement se déloger de la matrice d'aluminium. Chaque échantillon passe donc une minute dans le bain entre chaque étape de polissage. Après le nettoyage aux ultra-sons, les faces et pores sont rincés puis séchés au jet d'air en s'assurant de bien vider chaque cavité. On s'assure ainsi d'avoir sorti le maximum de particules abrasives des pores.

Après le polissage sur papier abrasif, le polissage se poursuit, mais sur tapis de soie à poils longs en utilisant une solution aqueuse contenant des particules de diamant comme abrasif. Le polissage aux particules de 6 microns nécessite un peu plus de temps que les autres, puisqu'il s'agit de la première étape aux particules fines. Pour l'Al-Fe, on passe en moyenne entre 3 et 5 minutes sur cette étape, contre une à deux pour les deux autres étapes subséquentes. Pour le Al-Fe-Si, c'est plutôt 15 minutes qu'il faut passer sur ce tapis avec les particules de 6 microns, parce que le saut depuis le papier abrasif de grain 320 est encore plus grand en termes de taille de particules abrasives. Pour la dernière étape de polissage, il est nécessaire de changer de type de particules; une suspension de silice colloïdale de 0.05 microns (OP-S) a donc été employée. Chaque tapis utilisé pour ces étapes a servi pour une seule taille de particule et pour un seul type d'alliage pour éviter d'entraîner des particules de polissage plus grosses que désirées aux étapes suivantes. Chaque tapis est méticuleusement rincé entre chaque échantillon pour libérer toute particule encore présente. Avant le polissage aux diamants de 6 microns et entre chaque étape subséquente, le nettoyage aux ultra-sons décrit plus haut est utilisé pour aider à vider chaque pore des particules pouvant s'y être logées. Les différents échantillons sont aussi rincés à l'alcool puis séchés au jet d'air à la toute fin du polissage, avant leur observation en imagerie. Cette procédure de découpage et polissage a été utilisée pour toutes les techniques d'analyse nécessitant une surface plane et lisse.

2.4.3. Métallographie

Les différentes métallographies ont été réalisées avec un microscope optique de marque et modèle LECO 300 Metallograph. L'analyse des différentes images a été réalisée via le logiciel de traitement d'image Clemex de la compagnie éponyme. Clemex est une entreprise Canadienne produisant des logiciels de vision numérique. Les métallographies

ont été prises avec un grossissement de 50X et de 400X. Aucune attaque chimique n'a été nécessaire pour observer les phases d'intérêts. Les macrographies ont été réalisées avec un appareil photo numérique de marque CANON-OES 50D de 15 mégapixels et avec un objectif de 85mm. Les réglages de l'appareil photo ont été les suivant : une distance focale de 5.6 ou de 6.3, un objectif de 85 mm, un ISO de 100, un foyer automatique et un temps d'exposition entre 1/10 et 1/20 de seconde. La prise des images a été réalisée sur une table servant à fixer un appareil photo perpendiculairement à la table. Deux ampoules à fil de tungstène incandescent de 60 watts ont été positionnées de chaque côté pour éclairer l'échantillon en lumière oblique avec seulement quelques degrés d'angle. Cette technique permet de mieux percevoir le rebord des pores et d'en révéler les plus petits. L'analyse des macrographies a été effectuée avec le logiciel d'analyse d'image ImageJ.

2.4.4. Analyse d'image

Le logiciel ImageJ a servi pour calculer la proportion de la surface d'un échantillon polie occupée par les pores. Il faut manuellement délimiter et tracer le pourtour de l'échantillon sur une macrographie montrant l'entièreté de l'échantillon, et faire de même pour chaque pore visible sur la macrographie. On peut en extraire le nombre, la taille moyenne, la sphéricité et l'aire totale des pores. C'est principalement le nombre de pores par unité d'aire de métal qui était recherchée. Pour faire ces mesures avec précision, il faut préciser une échelle au programme pour lui permettre de faire la conversion pixel-unité de mesure. L'échelle donnée au programme est simplement la largeur de chaque échantillon, mesurée individuellement à la main à l'aide d'un pied à coulisse.

2.4.5. Spectroscopie d'émission optique par décharge électrique (OES)

Pour obtenir la composition chimique des alliages expérimentaux Al-Fe et Al-Fe-Si, des analyses chimiques en spectroscopie d'émission optique ont été réalisées au Centre de Métallurgie du Québec (CMQ) avec un appareil ARL-3460 de la marque Thermo Scientific. La spectroscopie d'émission optique par étincelle est une technique qui permet de connaître la composition élémentaire des alliages. À cette fin, un arc électrique vaporise une petite quantité de la surface de l'échantillon métallique inconnu dans un plasma d'arc électrique et l'émission lumineuse de ce plasma est ensuite analysée par spectrométrie. L'intensité de chaque raie d'émission sert à calculer la concentration de l'inconnu habituellement en utilisant des spécimens de référence. Le diamètre de l'empreinte causée par l'arc électrique sur la surface de l'échantillon analysé est d'environ 6mm et sa profondeur de 1mm.

Pour obtenir une composition chimique précise, il faut se référer, pour chaque élément, à une courbe d'étalonnage qui provient de spécimens de référence possédant une concentration en élément chimique proche de l'échantillon inconnu et la même matrice. Cela ne pose pas de difficultés pour l'alliage Al-Fe-Si puisque des spécimens de référence aux compositions semblables en fer et en silicium sont disponibles. À l'inverse, l'analyse de l'alliage Al-Fe est plus difficile puisque les spécimens de référence d'aluminium-fer disponibles ne dépassent pas 2% de fer et on tente d'analyser un alliage en contenant environ 3.9%.

Pour réaliser les analyses, on doit obtenir des spécimens dont la composition chimique sur la surface analysée soit uniforme. À cette fin, on utilise un pion coulé dans un moule de cuivre conçu pour solidifier très rapidement le métal qui y est versé. Cette technique de préparation assure que les éléments chimiques se retrouvent finement dispersés dans la matrice et réduit les effets de ségrégation qui surviennent lorsque la solidification est trop lente. Une épaisseur d'environ 2mm est retirée par usinage de la face du pion en contact avec le cuivre pour minimiser les effets de diffusion ayant pu s'opérer à l'interface et aussi pour retirer les inclusions provenant d'un mauvais nettoyage du bloc de cuivre. Cette technique d'analyse fournit une composition chimique moyenne de l'échantillon sans faire de distinction entre les éléments dissouts et ceux sous forme d'intermétalliques.

2.4.6. Spectrométrie d'émission atomique au plasma par micro-ondes (MP-AES)

Pour obtenir la composition des alliages mères Al-Fe et des alliages expérimentaux d'Al-Fe, une autre technique d'analyse de composition chimique a été utilisée. C'est la Spectrométrie d'Émission Atomique par Plasma aux Micro-ondes (MP-AES – Microwave Plasma Atomic Emission Spectrometry). L'appareil utilisé est le MP-AES 4100 de Agilent Technologie du département de génie des mines, de la métallurgie et des matériaux de l'Université Laval. Cette technique d'analyse consiste à échantillonner par copeaux selon la technique d'échantillonnage décrite précédemment et d'en faire une digestion, c'est-à-dire de faire passer les éléments en solution à l'aide d'acides ou de bases, selon les ions en présence. Les solutions peuvent ensuite être dispersées par nébulisation dans un plasma aux micro-ondes et l'émission lumineuse provoquée par le plasma est analysée.

Dans ce projet, une solution d'acide chlorhydrique (HCl) à 10% a été utilisée pour la digestion. Environ 250mg de copeaux d'alliage ont donc été prélevés et précisément pesés

au dixième de milligramme près pour ensuite être dissout dans la solution de digestion dans des béchers de téflon. Ceux-ci ont été chauffés à 100°C et recouverts d'un verre de montre en téflon pour maximiser le pouvoir de dissolution de la solution. Ces solutions ont ensuite été diluées plusieurs fois jusqu'à atteindre la concentration désirée pour ne pas saturer le détecteur de l'appareil. La dernière étape de dissolution a été faite dans une solution tampon de H₃NO₄. Seuls les éléments d'intérêts ont été analysés et l'aluminium a été calculé par différence. Pour chaque élément de chaque échantillon, trois analyses ont été réalisées. C'est cette technique qui a été utilisée pour la caractérisation chimique des alliages mères et des alliages expérimentaux Al-Fe puisqu'il est possible de se créer des spécimens de référence (standards) à plus forte concentration en fer que ceux disponibles pour la spectroscopie d'émission optique à décharge électrique.

2.4.7. Microsonde et cartographie élémentaire en diffraction de longueur d'onde (Wavelength Diffraction Spectrum - WDS)

La technique d'analyse choisie pour observer les particules intermétalliques est la microscopie électronique à balayage (MEB) Cet appareil permet une meilleure profondeur de champ et un plus fort grossissement que la microscopie optique. L'utilisation de la microsonde a permis aussi une analyse chimique précise des particules d'intermétallique par spectrométrie à dispersion de longueur d'ondes. L'appareil utilisé est le SX-100 de marque CAMECA. Cette technique sert majoritairement à identifier les intermétalliques présents dans les alliages expérimentaux Al-Fe et Al-Fe-Si en se basant sur les compositions chimiques données par la microsonde.

2.4.8. Cartographie élémentaire en micro-fluorescence de rayons X (micro-XRF)

La cartographie élémentaire de la surface des spécimens d'alliage a été obtenue par micro-EDS (micro-Energy Dispersive Spectrometry). L'appareil utilisé pour la micro-XRF est le M-4 TORNADO de la compagnie allemande BRUKER. Il utilise une source de rayons-X au rhodium à 50 keV et 300 µA. Deux capteurs de type X-Flash sont utilisés pour capter les photos-électrons émis par la surface lors du bombardement au rayons-X. Les tests ont été réalisés sous un vide partiel de 20 millibars, soit environ 0.02 atmosphère. La largeur de la sonde a été fixée à 25 µm et le temps d'acquisition à 3 millisecondes par point. Comme pour la microsonde, les données de chaque point d'analyse peuvent être recombinaées pour donner une carte des concentrations élémentaires relatives. Les images nous montrent où se situent les différents éléments avec des intensités de couleur proportionnelles à leur

concentration relative. Il devient donc très facile de repérer les intermétalliques à forte concentration en fer ou en silicium nous intéressant dans ce projet. Il est aussi facile de repérer toute autre phase qui différencierait de la matrice ou encore une variation de concentration d'élément d'alliage dissout dans la matrice en question. Il est aussi possible de délimiter des zones et d'en analyser la composition chimique globale en se basant sur le spectre d'émission de chaque point de cette zone. Comme l'intensité des images produites par cette technique d'analyse varie d'un échantillon à l'autre, il est difficile de les comparer en ne se fiant qu'à l'intensité de la couleur. Il est tout de même possible de bien identifier les particules à forte concentration ou encore les zones où il y a plus de particules fines à forte concentration accumulées.

2.4.9. Test de solidification à pression réduite modifié – TPRM

Le test de solidification à pression réduite modifié (TPRM) est une adaptation du test à pression réduite (RPT) présenté au Chapitre 1. La grande différence entre les deux tests est que le RPT est effectué sur des échantillons liquides et prélevés dans un bain de fusion pour en connaître la « qualité ». Le TPRM utilise des échantillons solides qu'il faut fusionner individuellement en les soutenant et solidifier sous un vide partiel. Les échantillons utilisés pour ces tests sont des morceaux de barreaux d'environ 2 cm de haut que l'on fusionne dans un creuset d'alumine ayant la même forme que les échantillons. Lors de sa fusion, le métal se retrouve donc soutenu par le creuset et ne se déforme pas. La déformation des spécimens refondus génère de nouveaux bifilms par le repli du métal liquide sur lui-même. Comme c'est la présence ou l'absence de bifilms qui nous intéresse, il ne faut pas en créer de nouveaux lors de la fusion des échantillons pour le test qui sert à les révéler.

Chaque échantillon évalué par TPRM a été chauffé 2 heures au four à température fixe avant d'en être retiré et déposé sous une cloche d'acier où la pression diminue à environ 0.1 atmosphère jusqu'à solidification complète. Les échantillons reposent chacun dans un creuset d'alumine qui est lui-même déposé dans un creuset de SiO_2 conique plus large au fond duquel du sable est utilisé pour faire une base stable. Ce n'est que le creuset d'alumine et son contenu qui sont transférés. Un second creuset de SiO_2 avec du sable au fond est déjà placé dans l'appareil à TPRM pour recevoir le creuset sortant du four. Il n'est pas possible de brasser les échantillons avant les tests, puisqu'il ne faut pas abîmer la couche d'oxyde enveloppant l'échantillon et ainsi introduire de nouveaux bifilms dans le liquide. La procédure de sortie du four doit prendre moins de 5 secondes et la descente en pression doit, elle aussi, prendre moins de 5 secondes pour éviter que la solidification ne s'opère

avant la chute de pression. Si tel était le cas, les germes solides pourraient entraver le gonflement des bifilms et fausser le test. Les creusets utilisés pour ces tests ont tous suivi les procédures de conditionnement et de séchage décrites plus haut. La procédure pour le découpage et les métallographies des échantillons passés au test de solidification sous pression réduite modifiée est la même que celle décrite dans la section « Découpage, sablage et polissage ».

La température à laquelle on réalise le TPRM est importante, puisque la quantité d'hydrogène qu'il est possible de dissoudre dans l'aluminium est fonction de la température, et c'est cet hydrogène qui est majoritairement responsable du gonflement. Il faut aussi se rappeler que les différents échantillons à passer au TPRM n'ont pas tous exactement la même composition chimique, bien que certains proviennent du même barreau découpé. Ceci est dû au fait qu'il y a sédimentation d'intermétalliques et, donc, de la ségrégation d'éléments chimiques. Comme tous les spécimens d'un même barreau n'ont pas tout à fait la même composition chimique, la température de leur liquidus n'est pas exactement la même. Idéalement il faudrait déterminer la température optimale de fusion pour chaque échantillon. Il a été jugé cependant plus simple d'utiliser une température fixe pour tous les échantillons d'un même alliage. Cette température a été fixée à 100°C de plus que le liquidus théorique de l'échantillon le plus concentré d'un barreau, tel que déterminé par analyse chimique. Il se peut donc qu'on se retrouve parfois à exactement 100°C du liquidus de l'échantillon en question, alors que pour d'autres échantillons moins concentrés en fer et en silicium, mais provenant tout de même du même barreau, la température soit à plus de 150°C de son liquidus. Il a été déterminé qu'il serait plus fiable de travailler ainsi plutôt que d'avoir à estimer des températures de fusion propres à chaque échantillon. En procédant de la sorte, on facilite la comparaison des tests entre eux parce que: la durée des tests est uniforme, le temps passé par chaque échantillon à l'état liquide sous vide est semblable et la concentration d'hydrogène maximale à atteindre est aussi comparable. Dans tous les cas, le choix de la température de fusion n'a pas d'impact sur le nombre de bifilms présents ou encore sur leur propension à gonfler, tant qu'ils restent libres assez longtemps dans le liquide. Donc, de tous les échantillons, celui fusionné à la température la plus proche de son liquidus en était à au moins 100°C, et les autres, à plus de 100°C. À cette température, les bifilms ont assez de temps pour gonfler avant la solidification.

Après le test, les échantillons prennent généralement une forme boursouflée. Ils sont ensuite tous préparés selon la méthode expliquée dans la section « Découpage, sablage et

polissage ». Dans un test conventionnel à pression réduite, c'est le bifilm index qu'on mesure pour déterminer la qualité du bain de fusion. Dans notre cas, ce n'est pas vraiment la qualité du bain de fusion qui nous intéresse, mais le nombre de bifilms présents dans chaque section de barreau. Comme mentionné plus haut, le logiciel ImageJ nous permet d'acquérir ces informations. On obtient donc un nombre de pores par cm^2 de surface de métal poli. Pour un même barreau, centrifugé ou non, nous avons donc plusieurs valeurs de nombre de bifilm/ cm^2 de métal en fonction des différentes sections de « A » à « D ». Un morceau des barreaux tel que coulés de chaque alliage est aussi passé au TPRM, poli et analysé dans ImageJ pour avoir un nombre de pores/ cm^2 de métal de référence pour chaque alliage expérimental.

3. Résultats

3.1. Composition chimique et microstructures des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe

3.1.1. Composition chimique de l'alliage expérimental Al-Fe

Des barreaux ont été moulés en utilisant un alliage expérimental dont la composition cible était de Al-3,9%Fe. Deux coulées ont été nécessaires afin d'obtenir la quantité suffisante d'alliage. La composition chimique de spécimens obtenus lors de ces coulées de l'alliage expérimental Al-Fe a été obtenue à l'aide de la spectroscopie d'émission atomique par plasma aux microsondes (MP-AES). La composition chimique des alliages expérimentaux Al-Fe est présentée au Tableau 3-1. Comme deux coulées ont été nécessaires, et que chacune a donné lieu à des échantillonnages en différents endroits, on se retrouvait donc avec plusieurs résultats d'analyse. Les copeaux de chaque lieu d'échantillonnage ont été séparés en deux groupes et analysés séparément, d'où le chiffre suivant le nom des échantillons. Les pions sont des échantillons qui viennent de la masse liquide dans le creuset. Ils sont représentatifs de la composition globale de chacun des alliages liquides. Les analyses moyenne-haut et moyenne-bas concernent les échantillons provenant du haut et du bas de barreaux moulés. Les analyses « moyenne 1^{ère} coulée » et « moyenne 2^e coulée » concernent la moyenne des valeurs de la 1^{ère} et la seconde coulée.

Tableau 3-1: Composition chimique des échantillons prélevés sur l'alliage expérimental Al-Fe, en spectroscopie d'émission atomique par plasma aux micro-ondes (MP-AES)

Échantillons	Nombre d'analyses	Composition chimique (% massique)	
		Fe	Écart type
Cible de composition		3,91	-
Pion-1 ^{ère} coulée		3,84	0,09
Pion-2 ^e coulée		3,93	0,01
Moyenne-Bas	4	3,83	0,16
Moyenne-Haut	4	3,58	0,21
Moyenne 1 ^{ère} coulée	4	3,86	0,11
Moyenne 2 ^e coulée	4	3,55	0,20
Moyenne totale	10	3,74	0,21

La lecture du Tableau 3-1 montre que l'alliage expérimental Al-Fe est moins concentré en fer que la concentration cible (3,91% en masse). Il existe également une différence de concentration en fer entre le haut et le bas de chaque barreau. Le bas des barreaux est un

peu plus concentré en fer, d'environ 0.25%. Cette différence est expliquée par une ségrégation partielle de certains intermétalliques plus denses. Si, bien que la solidification s'opère assez rapidement, certains intermétalliques ont le temps de germer et de commencer à sédimenter, il est possible d'en retrouver plus dans le bas des barreaux. On constate aussi une légère différence de concentration en fer entre la première et la deuxième coulée. La deuxième coulée est moins concentrée en fer de 0.31%. Si les intermétalliques avaient commencé à germer et à sédimenter prématurément dans le creuset avant la coulée, on en aurait retrouvé plus dans la deuxième coulée que dans la première, et donc une concentration en fer plus élevée dans la deuxième coulée que dans la première. On confirme ainsi que la germination ne s'est vraisemblablement pas amorcée dans le creuset, mais bien dans les moules.

Puisque la composition des alliages Al-Fe coulés était un peu différente de la composition visée, il a été nécessaire de recalculer la séquence de solidification en utilisant le logiciel Thermocalc. La solidification débute à 733°C avec la cristallisation d'Al₃Fe comme phase primaire, qui se termine avec la réaction eutectique à 654°C. Ces calculs confirment que, malgré cette différence de composition, l'alliage Al-Fe possède les caractéristiques recherchées. La Figure 3-1 montre les températures de début de germination et celle de l'eutectique ternaire, alors que le Tableau 3-2 présente les fractions volumiques des phases solides qui germent pendant la solidification.

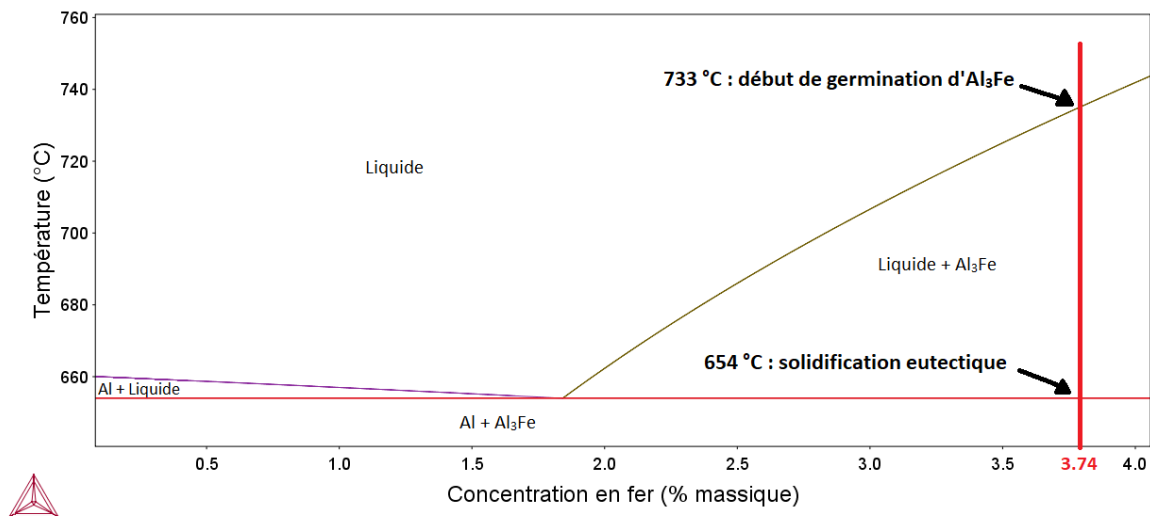


Figure 3-1 : Portion du diagramme de phases du binaire Al-Fe. La ligne rouge représente la concentration en fer de l'alliage Al-3.74Fe. [55]

Après analyse de la séquence de solidification de l'alliage Al-Fe, on se rend compte que la modification de la composition chimique par rapport à la composition visée n'engendre qu'une légère diminution de la fraction volumique d'intermétallique tout juste avant la solidification eutectique, passant de 3.3% pour l'alliage cible à 3.0% pour l'alliage produit. La séquence de solidification ne s'en trouve en rien modifiée, hormis une légère diminution de la température du liquidus de l'alliage de 739°C à 733°C, une diminution de l'intervalle de solidification de 6°C. On peut donc aussi s'attendre à avoir une légère diminution du temps de solidification. On confirme aussi que lors d'une solidification lente proche de l'équilibre, aucun autre intermétallique ne devrait germer dans cet alliage.

Tableau 3-2 : Fractions volumiques d'intermétallique et température de germination des phases de l'alliage Al-Fe cible et final.

Alliages	Composition chimique (% massique)		% d'Al ₃ Fe avant la solidification eutectique (% volumique)	% d'Al ₃ Fe après solidification (% volumique)	T liquidus (°C)	T eutectique (°C)
	Al	Fe				
Al-Fe cible	bal.	3.91	3.3	6.7	739	654
Al-Fe final	bal.	3.74	3.0	6.4	733	654

On doit maintenant se rapporter aux conditions définies à la section 2.1 pour vérifier si les alliages sont adéquats. Rappelons ici ces conditions :

- Avoir les compositions chimiques nécessaires pour avoir la germination d'Al₃Fe ou Al₅FeSi-β en premier,
- S'assurer de ne pas dépasser 5% volumique de solide tout juste avant la solidification eutectique finale,
- Et s'assurer que l'écart de température entre le liquidus et l'eutectique soit suffisant pour laisser le temps aux intermétalliques riches en fer de sédimenter.

Pour l'alliage Al-Fe, les trois conditions sont bien remplies : Al₃Fe germe en premier, le pourcentage volumique de solide avant la solidification eutectique est de 3.0 % et la différence de température entre le liquidus et l'eutectique est de 79 °C. Par rapport aux prévisions initiales, compte tenu du taux de refroidissement moyen de la Figure 2-5, ces légères différences de composition entraînent aussi une légère diminution du temps pendant lequel les germes sont libres dans le liquide.

3.1.2. Microstructure des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe

La vérification de la nature et la composition des phases formées dans la microstructure de l'alliage expérimental Al-Fe a été effectuée sur un spécimen solidifié lentement au four dans des conditions qui permettent une sédimentation naturelle des phases formées, en présence de gravité terrestre. Le taux de refroidissement utilisé est du même ordre que celui qui prévaut pendant les essais de centrifugation. Un échantillon de barreau d'environ 20 grammes a été solidifié dans les mêmes conditions de refroidissement que les spécimens centrifugés, et dans le même four qui a été utilisé pour l'analyse des intermétalliques en microsonde. La microstructure de cet alliage permet d'identifier la plupart des phases formées pendant un lent refroidissement. La microsonde a permis de caractériser la nature et la composition des intermétalliques. Les Figure 3-2 et Figure 3-3 présentent une macrographie optique et une micrographie électronique en électron rétrodiffusés de l'échantillon d'Al-Fe refroidi lentement au four avec les indications des différents points d'analyse par dispersion de longueur d'onde (WDS).



Figure 3-2 : Macrographie de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié lentement et sédimenté naturellement. L'encadré en rouge présente le lieu approximatif de la Figure 3-3.

Ces analyses nous ont permis de confirmer la composition des différents intermétalliques observés, ainsi que celle de la matrice d'aluminium en différents endroits. Comme l'échantillon a été solidifié lentement, les intermétalliques ont eu le temps de sédimenter.

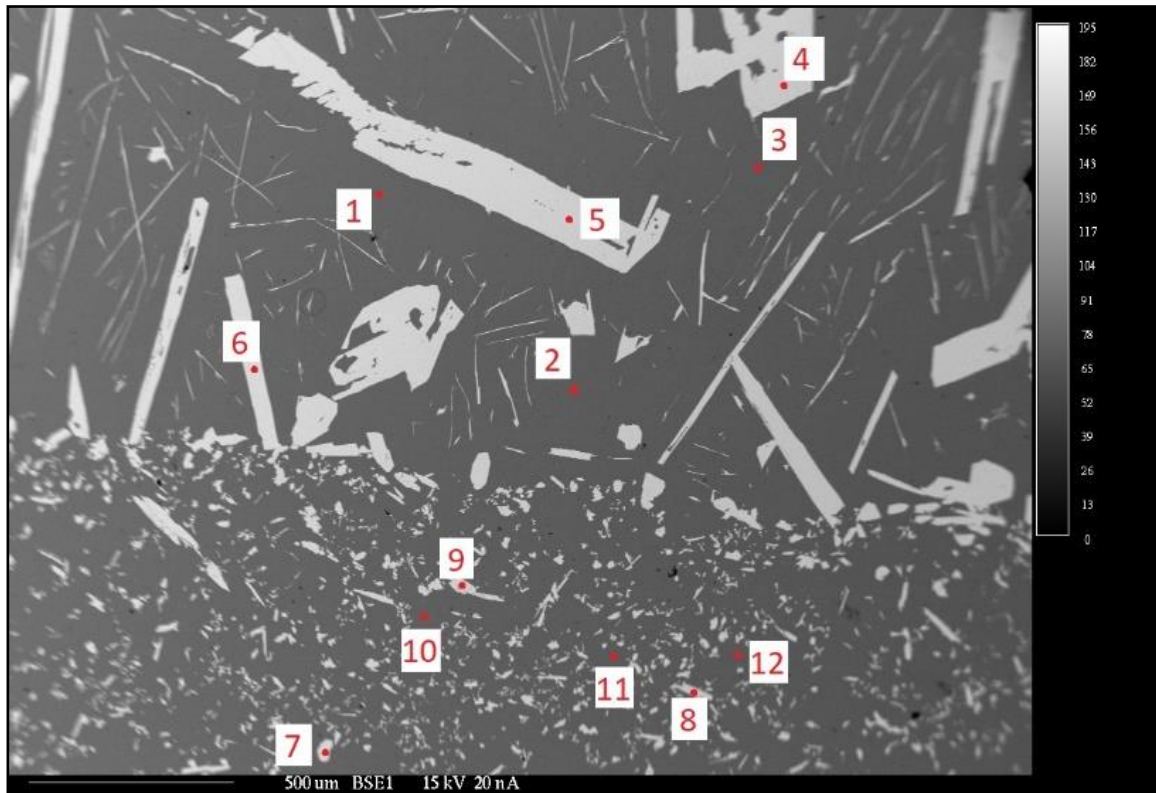


Figure 3-3 : Image en électrons rétrodiffusés de l'alliage Al-Fe refroidi lentement au four à partir de l'état liquide et emplacement des différents points d'analyses du Tableau 3-3.

Les résultats des analyses chimiques présentés au Tableau 3-3 montrent que tous les intermétalliques présents sont de type Al_3Fe . La concentration en fer de ces particules se situe entre 39.1 % et 40.3. % alors que la composition chimique théorique d' Al_3Fe varie entre 38.9% et 39.5% [56].

On constate aussi que la concentration en fer dans l'aluminium de la matrice varie entre 0.1 % et 0.2 % avec un minimum analysé à 0.07% selon les zones, ce qui est proche des prévisions effectuées avec ThermoCalc. On sait qu'en fonction des taux de refroidissement appliqués, il est possible de retrouver des différences marquées entre les observations et les prédictions provenant des diagrammes de phases, ce qui ne semble pas le cas ici. Les conditions de solidification utilisées dans ce cas peuvent être considérées comme assez proches de l'équilibre.

Tableau 3-3: Compositions chimiques aux endroits identifiés sur la microstructure de l'échantillon de l'alliage expérimental Al-Fe (voir Figure 3-3). Mesures effectuées par microsonde à diffraction de longueur d'ondes

Point	Emplacement	Concentration (% massique)		
		Fe	Si	Al
1	Al matriciel à la frontière	0,1	0,07	99,3
2	Al matriciel à la frontière	0,5	0,07	98,9
3	Al matriciel à la frontière	0,1	0,07	99,2
4	Gros intermétallique à la frontière	39,9	0,03	59,6
5	Gros intermétallique à la frontière	40,3	0,05	59,3
6	Gros intermétallique à la frontière	40,2	0,05	59,3
7	Intermétallique sous la frontière	40,1	0,05	59,3
8	Intermétallique sous la frontière	39,1	0,39	59,0
9	Intermétallique sous la frontière	39,9	0,04	59,6
10	Al matriciel sous frontière	0,2	0,04	99,2
11	Al matriciel sous frontière	0,1	0,06	99,2
12	Al matriciel sous frontière	0,2	0,05	99,0
13	Al matriciel, zone du haut, hors champ	0,1	0,13	99,1
14	Al matriciel, zone du haut, hors champ	0,1	0,08	99,2
15	Al matriciel, zone du haut, hors champ	0,1	0,09	99,2

La Figure 3-4 montre différentes microstructures de barreaux d'Al-Fe tels que refroidis dans le moule à barreaux. Rappelons que ces barreaux sont destinés à être refondus dans le four centrifuge. Il était donc souhaitable d'obtenir un taux de refroidissement assez rapide pendant la solidification des barreaux puisqu'il était crucial d'éviter la sédimentation et la production de spécimens dont la composition aurait été différente dans le haut et dans le bas des barreaux. La microstructure de ces barreaux montre que les phases formées sous ces conditions, qui sont nettement hors équilibre, ont fait apparaître des microstructures particulières (voir cercle en pointillé rouge sur la figure) surtout dans les zones proches des parois du moule. Le contact du métal liquide avec le moule « froid », a provoqué un refroidissement rapide de sorte que des microstructures typiquement hors équilibre se sont formées. Ces microstructures particulières ne se retrouvent nulle part ailleurs dans les échantillons sédimentés et centrifugés. Ces microstructures sont formées dans des alliages refroidis rapidement et ne permettant pas une diffusion suffisante des éléments d'alliage, ce qui favorise la germination de phases alternatives [58], [61]. Les microstructures des spécimens qui refroidissent dans des conditions nettement hors équilibre ne peuvent pas être adéquatement prévues par les modèles thermodynamiques de ThermoCalc.

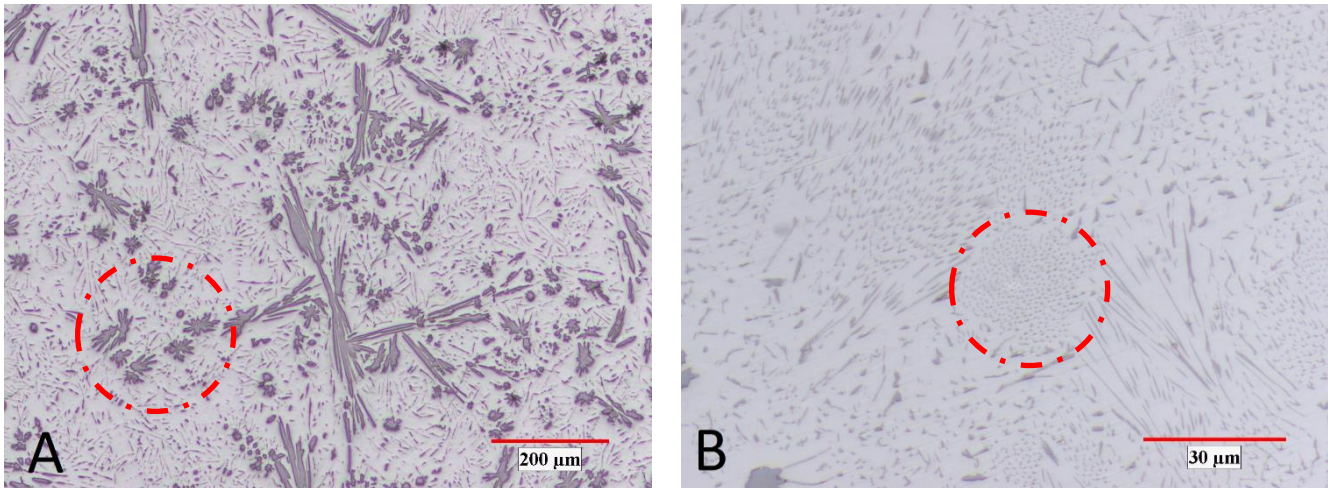


Figure 3-4 : Micrographie optique de l'alliage expérimental Al-Fe lors d'un refroidissement dans le moule a barreaux, loin des conditions d'équilibre A) intermétallique Al_3Fe en forme d'étoile à 10 branches; B) eutectique dissocié Al- Al_6Fe

3.2. Composition chimique et microstructures des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe-Si

3.2.1. Composition chimique de l'alliage expérimental Al-Fe-Si

Pour l'alliage Al-Fe-Si, deux coulées ont également été nécessaires pour produire la quantité suffisante d'alliage nécessaire aux essais de sédimentation. Des barreaux qui ont été moulés ont servi à préparer les échantillons destinés à être refondus et solidifiés lentement sous sédimentation naturelle ou avec centrifugation.

Le Tableau 3-4 présente les moyennes de composition des différentes séries d'échantillons provenant des deux coulées des barreaux d'alliage expérimental Al-Fe-Si. Les différentes analyses ont été réalisées sur des sections de barreaux découpées après les coulées dans le haut et le bas de chaque pièce. L'analyse est réalisée sur la face coupée de l'échantillon après avoir été sablée au zircon pour ne pas contaminer la surface avec du silicium qui pourrait provenir de papier abrasif au SiO_2 .

La composition chimique de l'alliage Al-Fe-Si est beaucoup plus près de la composition cible. On n'observe qu'une très faible différence de concentration de fer tant entre la première et la deuxième coulée qu'entre le haut et le bas des pièces. Même pour le silicium, la seule différence est que la première coulée est 0.09% massique plus concentrée en silicium que la deuxième, ce qui est très peu sur une composition globale de 13.5% silicium.

Tableau 3-4 : Composition chimique des échantillons prélevés sur l'alliage Al-Fe-Si expérimental, en spectroscopie d'émission optique à source étincelle (ES-OES)

Échantillons	Nombre d'analyses	Composition chimique (% massique)			
		Fe	Écart-type	Si	Écart-type
Cible de composition		1,10		12,55	
Moyenne-1 ^{ère} coulée	2	1,15	0,02	13,55	0,12
Moyenne-2 ^e coulée	2	1,18	0,01	13,46	0,14
Moyenne-Bas	2	1,16	0,03	13,49	0,17
Moyenne-Haut	2	1,17	0,00	13,51	0,08
Moyenne-Total	4	1,16	0,03	13,50	0,13

Dans le cas de l'alliage Al-Fe-Si, il a été nécessaire de recalculer avec ThermoCalc la séquence de solidification. Elle a été tracée sur la Figure 3-5. La ligne rouge verticale correspond à la composition chimique moyenne de l'alliage coulé en laboratoire.

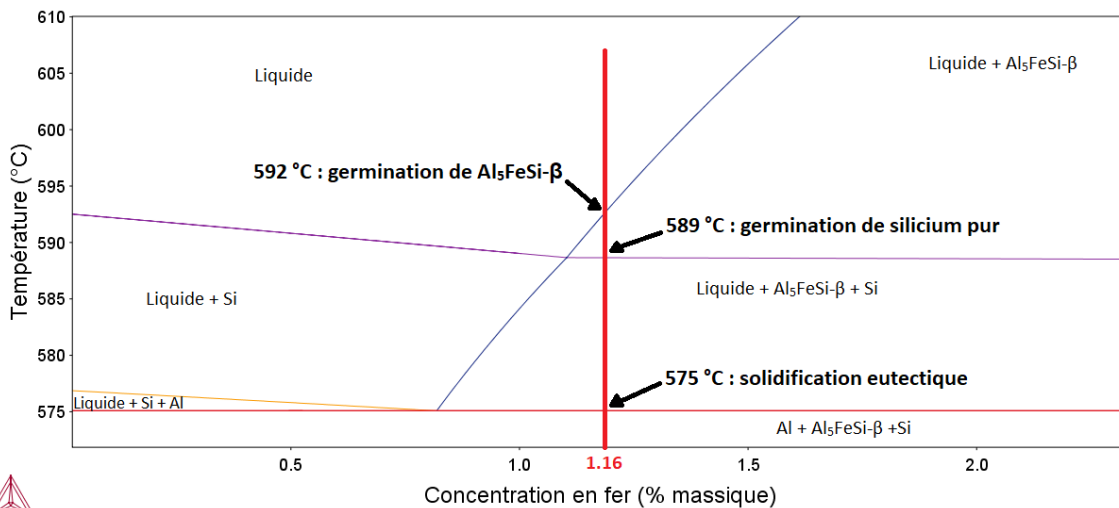


Figure 3-5 : Portion du diagramme de phases de l'alliage produit, Al-13.5Si-XFe qui montre pour la concentration en fer de l'alliage Al-13.5Si-1.16Fe et les températures des événements de solidification [55].

On remarque rapidement la différence entre les diagrammes de la Figure 1-8 et celui de la Figure 3-5 : une phase qui n'était pas présente dans l'alliage cible germe dans l'alliage Al-Fe-Si expérimental produit en laboratoire. En effet, des germes de silicium pur se forment presque à la même température que les germes de la phase Al₅FeSi-β. Selon la séquence de solidification de cet alliage, à 592 °C, l'intermétallique Al₅FeSi-β germe en premier et est suivi par les germes de silicium à 589 °C, puis par la réaction eutectique à 575 °C. Au

moment de la solidification eutectique, les fractions volumiques de $Al_5FeSi-\beta$ et de silicium sont respectivement de 0.9% et de 1.0%. On retrouve les proportions volumiques prévues des différentes phases solides à différents moments de la solidification au Tableau 3-5. Ces calculs ont été réalisés à l'aide du logiciel ThermoCalc.

Tableau 3-5 : Proportions volumiques de particules d'intermétalliques $Al_5FeSi-\beta$ et de silicium dans la microstructure des barreaux de l'alliage Al-Fe-Si expérimental à différentes températures lors la solidification.

Moment de la solidification	% volumique d' $Al_5FeSi-\beta$	% volumique de silicium
À 592°C (avant liquidus)	0.0	0.0
À 589°C	0.2	0.0
À 575°C (avant eutectique)	0.9	1.0
Sous 575°C	13.3	3.3

Pour l'alliage Al-Fe-Si, les trois conditions sont aussi remplies : $Al_5FeSi-\beta$ germe en premier, le pourcentage volumique de solide avant la solidification eutectique est de 1.9 % et la différence de température entre le liquidus et l'eutectique est de 17 °C. Cette différence, bien qu'elle soit plus petite que celle de l'alliage expérimental Al-Fe, est assez grande pour nous permettre de ralentir le refroidissement dans le but d'augmenter la durée de la solidification. Ce faisant, on pourra avoir sensiblement les mêmes durées de solidification chez les deux alliages expérimentaux Al-Fe et Al-Fe-Si et, donc, les mêmes durées allouées pour la sédimentation. Il faut aussi remarquer que les germes de siliciums, bien qu'ils ne représentent que 1% du volume, vont interagir avec la sédimentation des intermétalliques. Cependant, dans leur cas, ils devraient flotter puisque leur masse volumique de 2.33 g/cm³ [56] est plus faible que celle de la masse de l'alliage d'aluminium liquide qui les entoure et qui contient environ 12.6% de silicium avec une masse volumique de 2.4 g/cm³ [56] (composition eutectique). On se retrouvera donc théoriquement avec des particules ascendantes et d'autres descendantes dans cet intervalle de température entre le liquidus et le solidus.

3.2.2. Microstructure des barreaux de l'alliage expérimental Al-Fe-Si

La microstructure et la composition des phases de l'alliage expérimental Al-Fe-Si ont été examinées sur un spécimen solidifié lentement au four dans des conditions qui

permettent une sédimentation naturelle des phases formées, en présence de gravité terrestre (1g). La durée du passage du liquidus au solidus est approximativement la même que pour l'alliage expérimental Al-Fe. Le taux de refroidissement utilisé est donc de 0.5 °C/minute, soit plus bas que celui qui prévaut si on laisse le four refroidir de lui-même (comme pour l'alliage expérimental Al-Fe). La microstructure de cet alliage permet d'identifier la plupart des phases formées pendant un lent refroidissement. La microsonde a permis de caractériser la nature et la composition des intermétalliques. La Figure 3-6 présente une macrographie optique de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si refroidi lentement au four avec une indication de la position approximative de la Figure 3-7.



Figure 3-6 : Macrographie de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement et sédimenté naturellement. L'encadré en rouge présente le lieu approximatif de la Figure 3-7.

La Figure 3-7 présente une image de la microstructure en électron rétrodiffusés de l'échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si refroidi lentement ainsi que les indications des différents points d'analyse par dispersion de longueur d'onde (WDS) du Tableau 3-6.

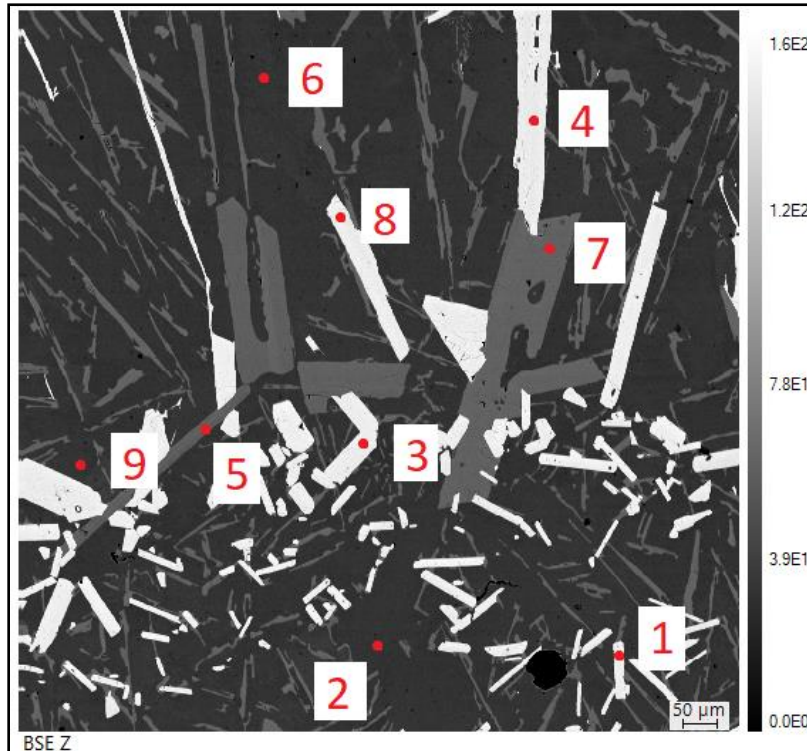


Figure 3-7 : Image en électrons rétrodiffusés de l'alliage Al-Fe-Si refroidi lentement au four à partir de l'état liquide et emplacement des différents points d'analyses du Tableau 3-6.

Le Tableau 3-6 présente les compositions chimiques mesurés en différents endroits identifiés sur la Figure 3-7, ainsi qu'une description physique du lieu d'analyse. Les particules intermétalliques identifiées #1, #3, #4 et #8 sont toutes composées d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, comme le montre leur composition en fer et en silicium, qui varie entre 28.5 % et 28.9 % pour le fer, et entre 16.1 % et 16.3 % pour le silicium. Ces valeurs se situent très près des valeurs théoriques de composition pour $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ formé à l'équilibre, soit 14% à 16% massique de silicium et 25% à 28% massique de fer [77]. Il est aussi possible d'observer des particules de silicium avec des traces d'aluminium sur les points #5 et #7. Aux autres endroits identifiés #2, #6, #9 et #10, on retrouve de l'aluminium avec un peu de silicium et des traces de fer en solution. Bien que les compositions chimiques retrouvées dans les constituant microstructuraux de l'alliage ne correspondent pas à leur valeur théorique, nous pouvons assumer que les différentes phases présentes sont l'intermétallique $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, des particules de silicium et une matrice d'aluminium. Pour expliquer les quelques différences avec les compositions chimiques théoriques, on évoque la forte probabilité que le faisceau d'analyse interagisse avec plus de matière que désiré. En effet, si la particule à analyser est très mince ou irrégulière en épaisseur, il est possible que la « poire » d'interaction du faisceau d'électrons englobe des phases cachées sous la surface dans son volume

d'analyse. On se retrouve donc à analyser majoritairement une phase, mais aussi une partie d'une ou de plusieurs autres.

Tableau 3-6 : Compositions chimiques aux endroits identifiés sur la microstructure de l'échantillon de l'alliage expérimental Al-Fe-Si (voir Figure 3-7). Mesures effectuées par microsonde à diffraction de longueur d'ondes.

Point	Emplacement	Composition chimique (% massique)		
		Fe	Si	Al
1	Plaquette massive d'Al ₅ FeSi-β sous frontière	28,5	16,1	55,0
2	Al matriciel sous la frontière	0,1	0,8	98,7
3	Plaquette d'Al ₅ FeSi-β à la frontière	28,8	16,2	54,6
4	Plaquette massive d'Al ₅ FeSi-β au-dessus de la frontière	28,6	16,3	54,8
5	Phase fine de Si dans l'eutectique	0,0	98,2	1,5
6	Al matriciel au-dessus de la frontière	0,1	0,5	99,0
7	Phases massives de Si	0,0	98,4	1,2
8	Plaquette massive d'Al ₅ FeSi-β au-dessus de la frontière	28,9	16,2	54,6
9	Al matriciel dans la frontière	0,0	1,0	98,6
10	Al dans une dendrite massive hors champ	0,0	1,3	98,3

3.3. Observation de bifilms

En parcourant les différents échantillons polis d'alliages expérimentaux d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si, il a été possible de repérer plusieurs bifilms de différentes tailles et épaisseurs. Ces alliages sont parfois des alliages mères, et parfois des alliages finaux. Les échantillons de la Figure 3-8 sont des échantillons d'alliages expérimentaux ayant subis plusieurs manipulations. Lorsque l'on observe des bifilms, on constate aussi systématiquement que des intermétalliques ou des cristaux de silicium qui s'y rattachent. En effet, tout le long de chaque bifilm, on retrouve des germes se terminant abruptement, et ce, de chaque côté des bifilms.

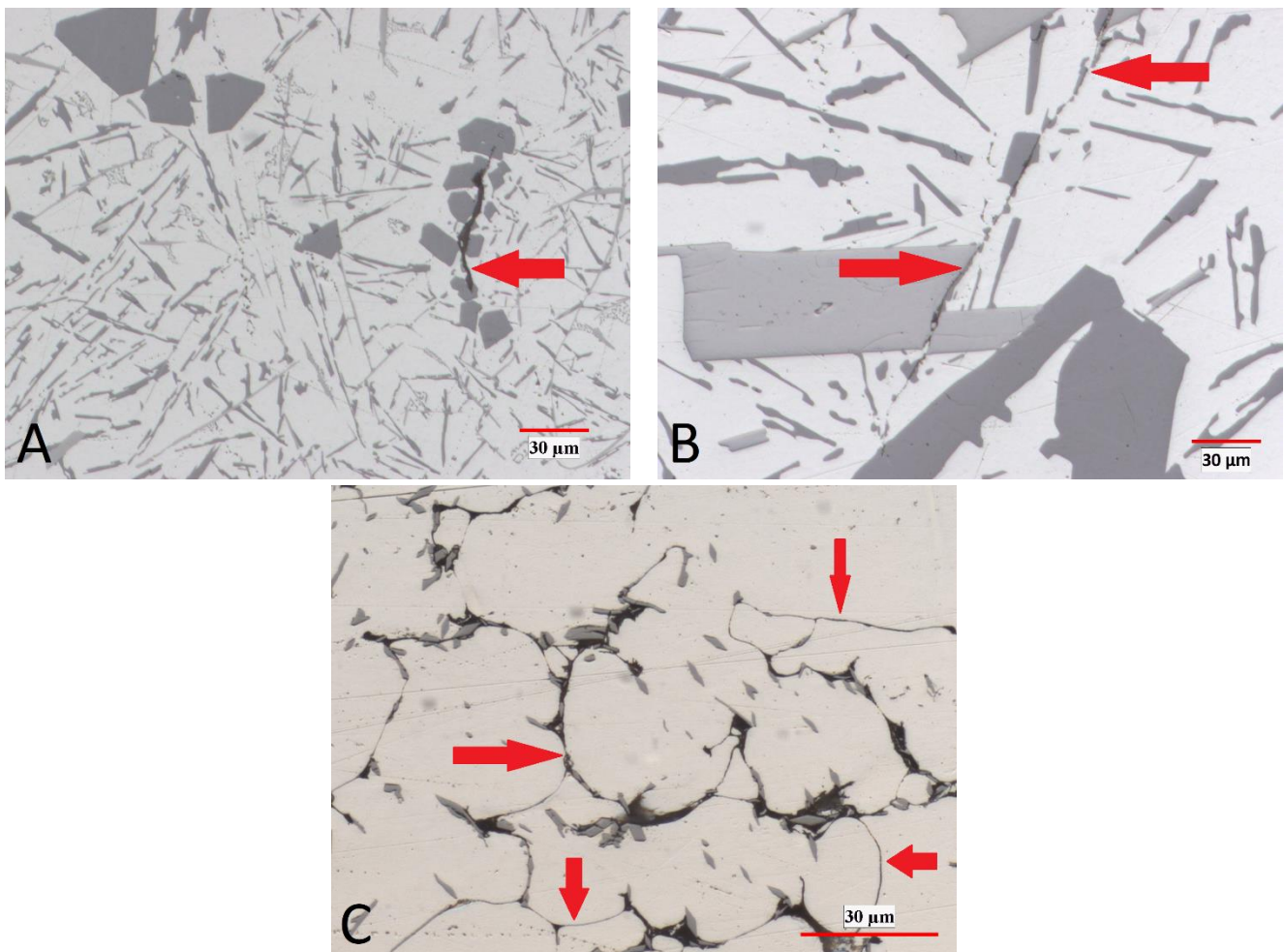


Figure 3-8 : Métallographie optique de bifilms et leur intermétalliques associés dans des alliages Al-Fe-Si et Al-Fe. Les flèches rouges indiquent les bifilms. A) et B) Alliage expérimental Al-Fe-Si tel que coulé dans le moule à barreaux, C) Partie centrale d'un alliage expérimental d'Al-Fe centrifugé lors de sa solidification lente.

On peut observer quelques exemples de bifilms et de particules y ayant germé à la Figure 3-8 A, B et C. La discontinuité des particules ayant germé sur les bifilms est évidente. La majorité des particules ont une forme assez régulière, sauf à l'interface avec le bifilm, où la particule semble plus épouser le bifilm que l'inverse. On renforce ici encore nos observations selon lesquelles les particules d' Al_3Fe , d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ et de silicium germent sur les oxydes d'aluminium [14], [19]–[21], [41]. On peut aussi en conclure qu'il sera toujours possible de retrouver des films d'oxydes dans nos échantillons.

3.4. Résultats des essais de centrifugation et de sédimentation naturelle des barreaux

3.4.1. La microstructure des spécimens de l'alliage expérimental Al-Fe après solidification en sédimentation naturelle et en centrifugation

Pour présenter les microstructures des spécimens de l'alliage expérimental d'Al-Fe après solidification avec une sédimentation naturelle ou sous centrifugation, on se réfère d'abord aux cartographies élémentaires du fer obtenues par XRF. En examinant la cartographie du fer, il est possible de visualiser la taille et la position des différentes particules intermétalliques d' Al_3Fe présentes. La Figure 3-9 montre la distribution du fer dans la section longitudinale de deux échantillons d'alliage expérimental d'Al-Fe. Les points rouges représentent les endroits où on retrouve du fer. Un des spécimens est solidifié sous sédimentation naturelle et l'autre sous centrifugation à environ 20G. Les deux échantillons ont passé une heure dans un four à 750°C et se sont solidifiés en suivant le taux de refroidissement montré à la Figure 2-5. Ces spécimens mesuraient 105 mm de haut après la solidification. Ces images sont des reconstitutions de barreau complet; elles n'ont donc pas toute la même luminosité absolue.

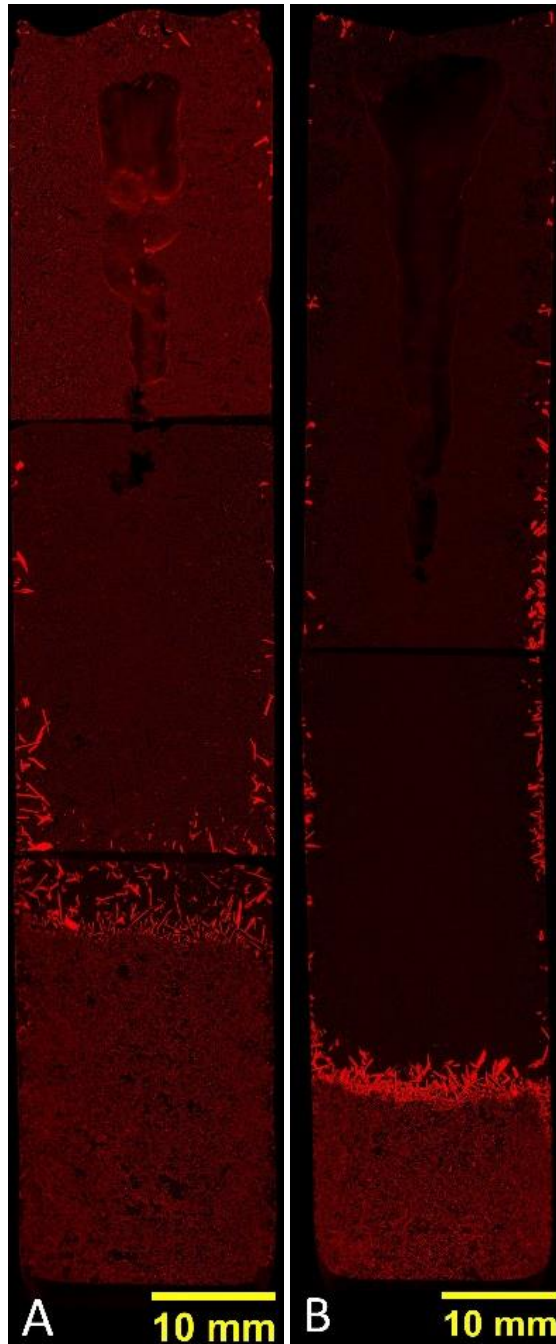


Figure 3-9 : Distribution du fer dans une coupe longitudinale d'un barreau d'alliage expérimental Al-Fe réalisée par fluorescence des rayons X. Le rouge représente la distribution du fer. A) échantillon solidifié sous sédimentation naturelle, B) échantillon solidifié sous centrifugation

Sur la Figure 3-9 A et la Figure 3-9 B on constate que les particules intermétalliques riches en fer se retrouvent surtout dans le bas de chacun de ces échantillons, tant pour celui centrifugé que celui sédimenté naturellement. On distingue trois zones dans les échantillons: une zone presque exempte d'intermétalliques, une zone frontière où se

trouvent des particules intermétalliques massives, et une région sous la frontière où les particules intermétalliques sont beaucoup plus petites et accumulées les unes sur les autres (au bas de l'échantillon). La zone frontière sépare les deux autres. Cette zone frontière se trouve à environ 28 mm du bas de l'échantillon sédimenté naturellement, et à environ 16 mm du bas pour l'échantillon centrifugé. La zone frontière est beaucoup plus nette chez l'échantillon centrifugé, mais dans les deux cas, elle fait quelques millimètres de large. Dans les deux cas, l'échantillon mesurait 105 mm de haut avant d'être découpé. Quelques autres particules d'intermétalliques massives se retrouvent aussi le long de la paroi latérale, mais seulement en haut de la zone frontière. On peut aussi faire cette observation pour la paroi supérieure, tout en haut des échantillons. Aucune particule d'intermétallique massive ne se retrouve sous la frontière, et ce pour les deux échantillons. On constate donc que la sédimentation des intermétalliques s'est bien produite, et qu'il n'en reste aucun libre dans la matrice [31], [33], [50], [78].

La Figure 3-10 présente une cartographie élémentaire du fer dans la section transversale d'un échantillon de 20 grammes de l'alliage d'Al-Fe solidifié sous sédimentation naturelle. On y observe une microstructure très semblable à celle observée à la Figure 3-9 A. Pour cet échantillon de 20 g, la frontière se situe à environ 5 mm du bas de l'échantillon ce qui correspond à 24% de sa hauteur totale (hauteur totale du spécimen solidifié = 21 mm). Pour l'échantillon de 90 grammes de la Figure 3-9, la frontière se situe plutôt à 27% de sa hauteur totale (hauteur totale du spécimen solidifié = 105mm). La hauteur de la frontière est donc proportionnelle à la hauteur de l'échantillon lui-même. On peut aussi observer des intermétalliques ayant germé le long des parois et quelques-uns dans le haut, comme pour les échantillons de 90 grammes de la Figure 3-9. Il est intéressant de remarquer que les intermétalliques de la frontière et des parois de l'échantillon de 20 grammes sont, en général, beaucoup moins massifs que ceux de l'échantillon de 90 grammes. Une explication de ce phénomène est apportée à la fin de cette section (3.4.1).

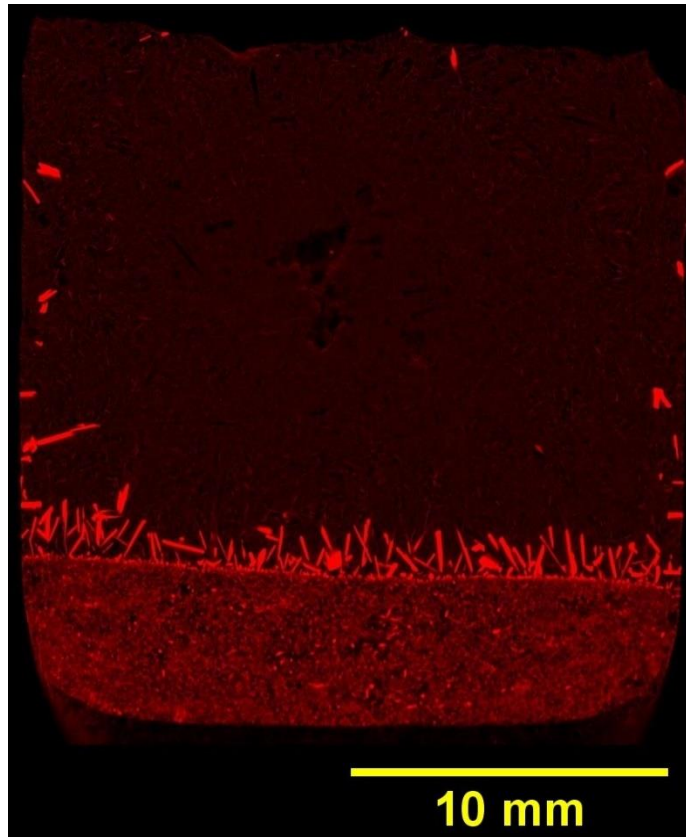
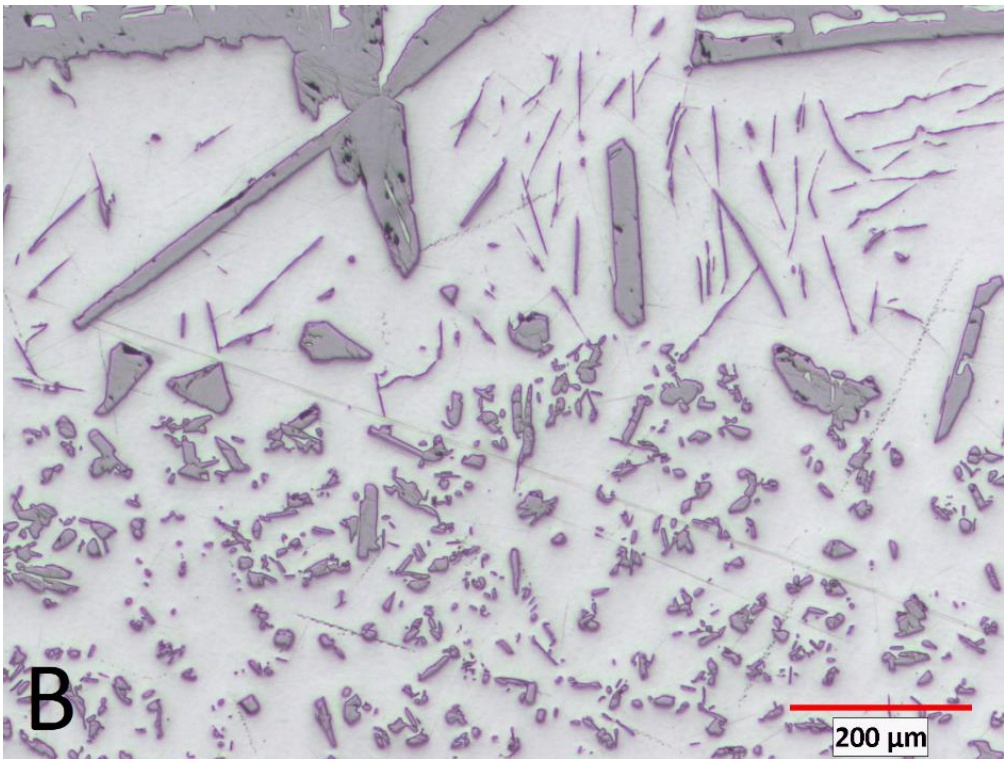
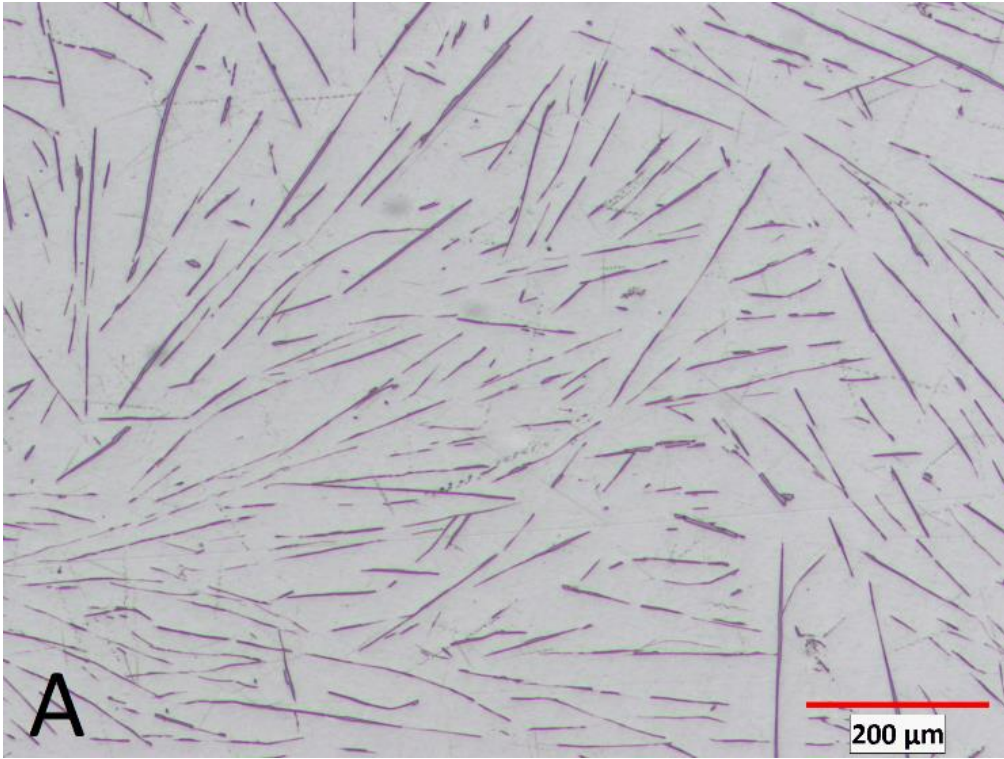


Figure 3-10 : Distribution du fer en fluorescence des rayons X pour un échantillon de 20 grammes d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié en sédimentation naturelle. L'entièreté de l'échantillon est présentée.

Les micrographies optiques nous permettent quelques autres observations. Les micrographies de la Figure 3-11 A à C montrent les différentes microstructures présentes dans le spécimen d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié lentement sous sédimentation naturelle. On peut y voir une microstructure dite « eutectique » au-dessus de la frontière en A, une zone frontière riche en particules massives en B, et une zone uniforme de particules accumulées sous la frontière en C. Dans la zone eutectique (Figure 3-11 A), on observe un constituant eutectique comportant de longues et minces plaquettes de particules de Al_3Fe (elles apparaissent sous forme de longues aiguilles en coupe métallographique) dans une matrice d'aluminium [58], [61].



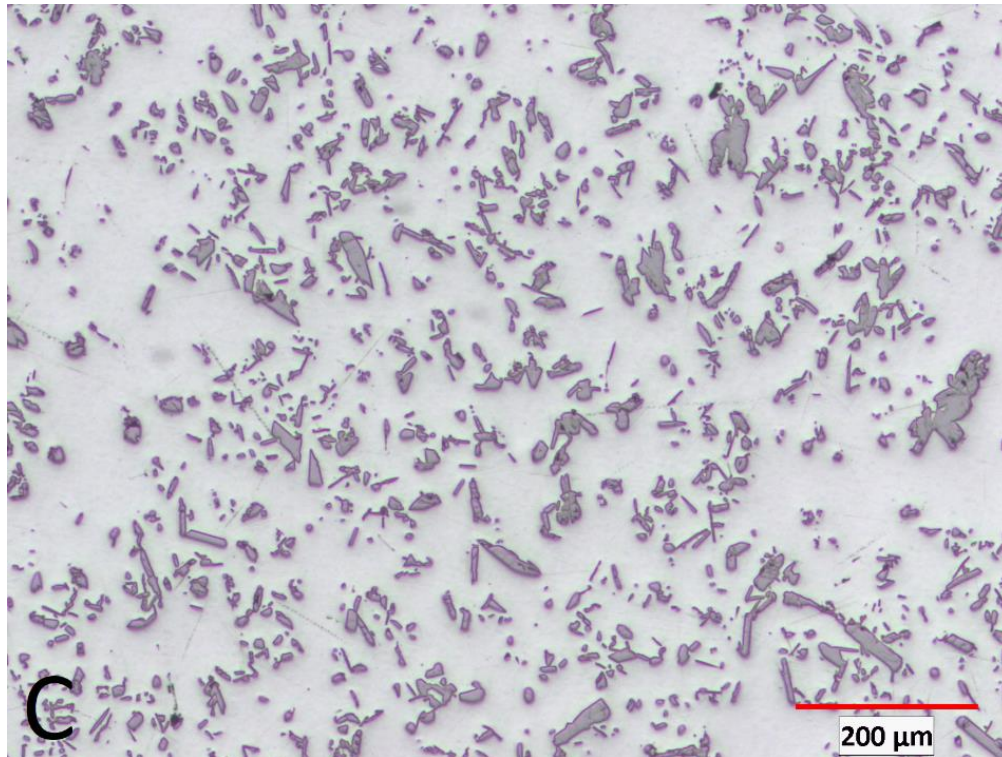


Figure 3-11 : Métallographie optique à 50X d'échantillons solidifiés lentement sous sédimentation naturelle - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone sous la frontière.

La frontière elle-même fait entre 1 et 5 mm de large (Figure 3-11 B) et est composée de plaquettes massives de Al_3Fe entourées d'un constituant eutectique (aiguilles minces d' Al_3Fe et matrice d' Al). On ne retrouve jamais de particules d'intermétalliques plus massives sous la frontière, et elles sont très rares au-dessus de celle-ci. Les seuls autres endroits où l'on en retrouve se situent le long des parois du cylindre et tout en haut, collées sur la couche d'oxyde de surface. On retrouve à la Figure 3-12 une photographie d'une section de barreau dont la surface a été usinée sur une profondeur d'environ 0.5 mm. Le fait d'avoir retiré la couche d'oxyde de surface nous permet d'observer les particules intermétalliques massives ayant germé le long des parois, mais vues de l'extérieur.

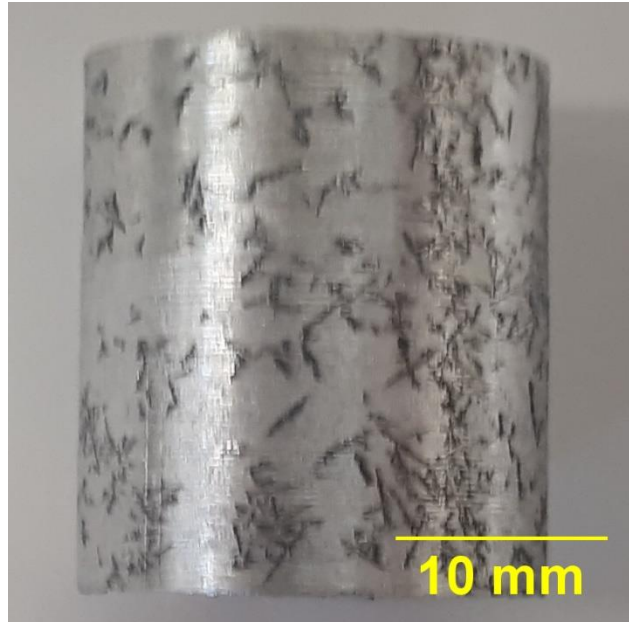


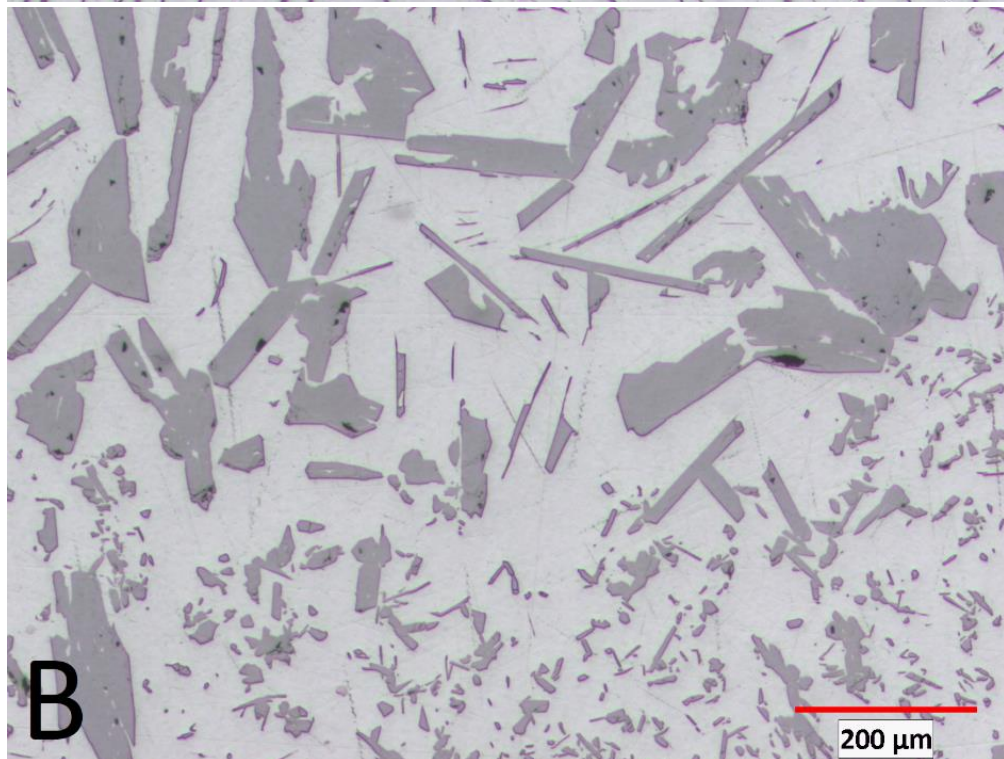
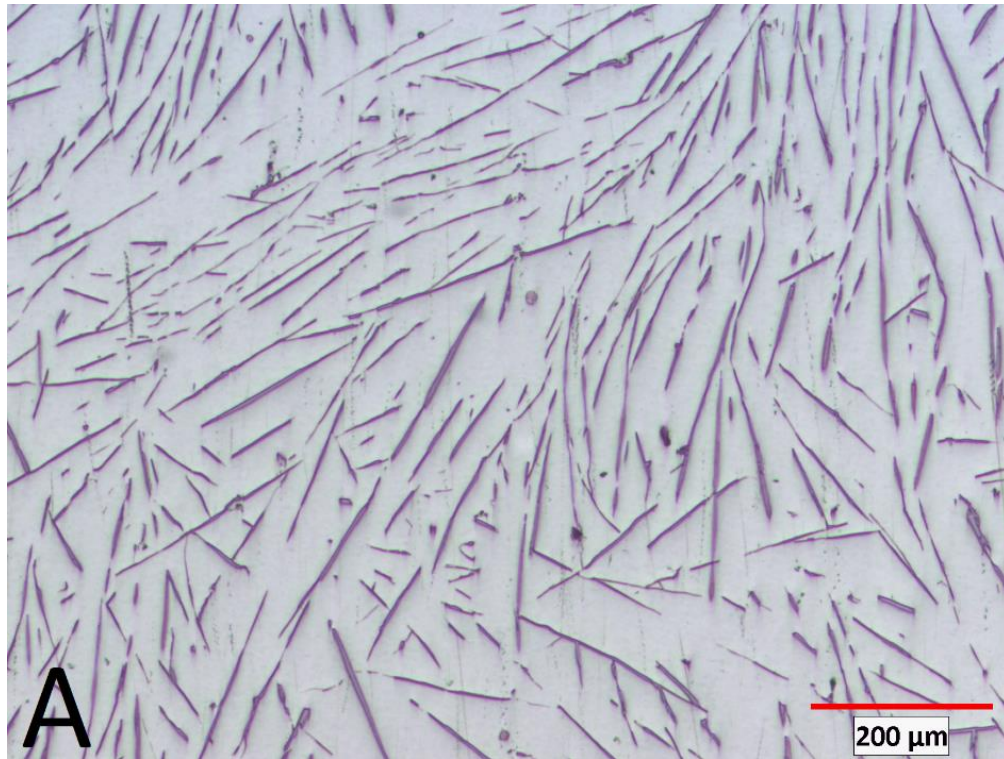
Figure 3-12 : Portion de barreau d'alliage d'Al-Fe tel que coulé. L'échantillon a été usiné sur sa circonférence révélant les intermétalliques ayant germés sur les parois.

La microstructure est très uniforme dans la zone de particules accumulées. On y observe des particules d'intermétalliques irrégulières et de formes et tailles comparables à celles que l'on peut voir au bas de la Figure 3-11 B et de la Figure 3-11 C. Entre la frontière et le bas des échantillons sédimentés, il n'y a pas de changement perceptible de taille, de forme ou encore de nombre de ces particules. On peut voir une métallographie de cette zone de particules sédimentées à la Figure 3-11 C. La matrice entourant les particules d' Al_3Fe est composée d'aluminium dans les trois zones.

La Figure 3-13 présente les différentes microstructures présentes dans le spécimen d'alliage expérimental d'Al-Fe solidifié lentement sous centrifugation. On peut y voir une métallographie de la zone eutectique au-dessus de la frontière en A, une zone frontière riche en particules massives en B, et une zone uniforme de particules sédimentées sous la frontière en C. Dans la zone eutectique, on observe un constituant eutectique comportant de longues et minces plaquettes d' Al_3Fe dans une matrice d'aluminium. Les trois zones sont très semblables à celles de l'alliage d'Al-Fe solidifié sous sédimentation naturelle. La plus grande différence observable est la taille des particules accumulées au bas des échantillons (Figure 3-11 C et Figure 3-13 C). Chez l'échantillon centrifugé, les particules semblent plus nombreuses et plus petites. Comme la zone de particules sédimentées est plus mince chez l'échantillon centrifugé, les particules seront donc compactées plus densément dans cette zone, ce qui donne l'impression qu'il y en a plus que pour l'échantillon sédimenté

naturellement. On en perçoit donc plus sur des métallographies de même superficie. Pour ce qui est de la taille, cette différence vient du fait que les particules de l'échantillon solidifié sous centrifugation sédimentent plus rapidement que celles sous sédimentation naturelle; leur vitesse de chute finale est environ 15 fois supérieure pour un même taux de refroidissement. Elle se retrouveront donc plus rapidement entassées au bas de l'échantillon et ont donc moins de temps pour croître avant de se retrouver dans une zone où le fer ne peut plus diffuser jusqu'à eux pour les faire grossir. À ce moment, les lieux de diffusion possible pour le fer sont les intermétalliques ayant germé sur les parois et ceux de la frontière. Comme les particules d' Al_3Fe ayant germé et sédimenté sont toutes compactées au fond, le fer devrait diffuser sur plusieurs millimètres pour les atteindre et les faire croître. Ce ne sont donc que les premières particules de cette couche de particules sédimentées (la frontière elle-même) qui recevront ce fer et pourront ainsi croître. C'est ce qui explique pourquoi tous les intermétalliques plus massifs que ceux se trouvant dans la zone de sédimentation du bas sont à la frontière, le long de la paroi latérale et en haut complètement.

Une autre indication du comportement du fer à la suite de la sédimentation des particules est la différence de taille des intermétalliques massifs de la frontière de l'échantillon sédimenté de 90 grammes et de celui de 20 grammes (90g - Figure 3-9 et 20g - Figure 3-10). En effet, comme la masse de métal liquide est plus de quatre fois supérieure pour l'échantillon de 90 grammes, il y a donc environ quatre fois plus de fer à précipiter pour une même surface de coupe de barreau et, donc, la même « surface » de zone frontière. L'échantillon de 90 grammes possède proportionnellement plus de parois latérales que l'échantillon de 20 grammes. Les échantillons de 90 et de 20 grammes en possèdent la même superficie de frontière, c'est-à-dire l'aire de coupe de l'échantillon. On en conclut donc que, si plus de fer doit précipiter et que les sites de germination possibles sont moins nombreux, les intermétalliques résultants seront plus massifs. C'est exactement ce que l'on constate en observant la Figure 3-9 et la Figure 3-10.



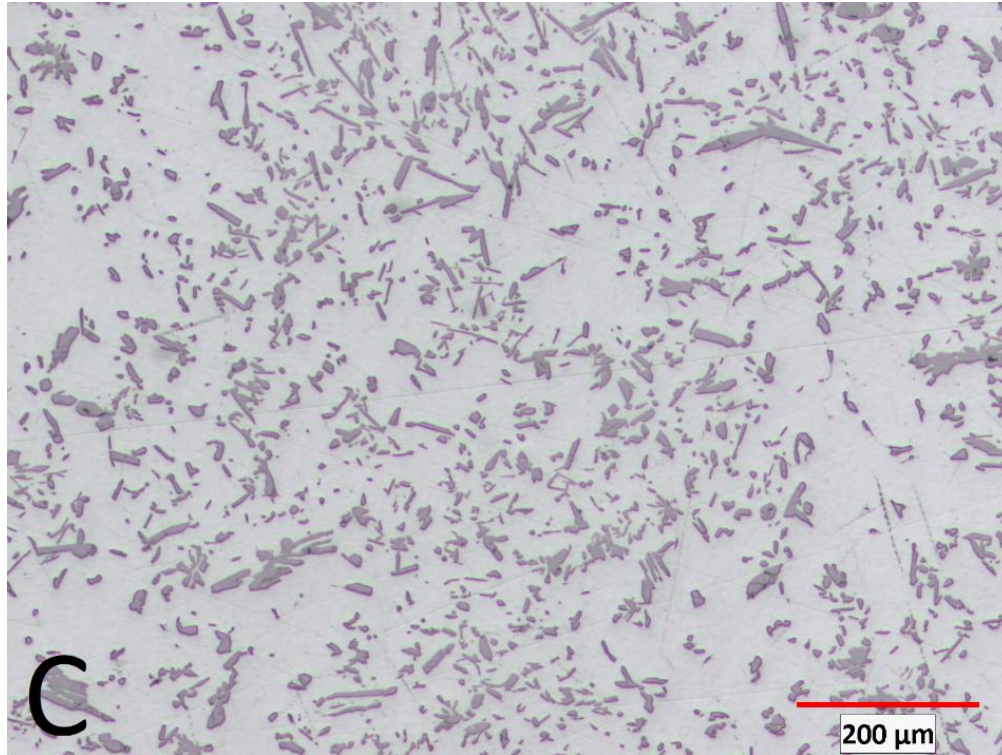


Figure 3-13 : Métallographie optique à 50X d'échantillons solidifiés lentement sous centrifugation - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone sous la frontière.

3.4.2. Microstructure des spécimens de l'alliage expérimental Al-Fe-Si après solidification en sédimentation naturelle et en centrifugation

La Figure 3-14 A et B présentent les cartographies élémentaires du fer et du silicium des barreaux solidifiés avec sédimentation naturelle et solidifiés sous centrifugation respectivement. Les échantillons ont passé une heure au four à 600°C et se refroidissaient à un taux de 0.5°C/minute. L'échantillon soumis à la centrifugation tournait à 305 tours par minute lors du test, ce qui engendre un coefficient d'accélération gravitationnelle d'environ 20G. La distribution du fer est en rouge et celle du silicium en vert.

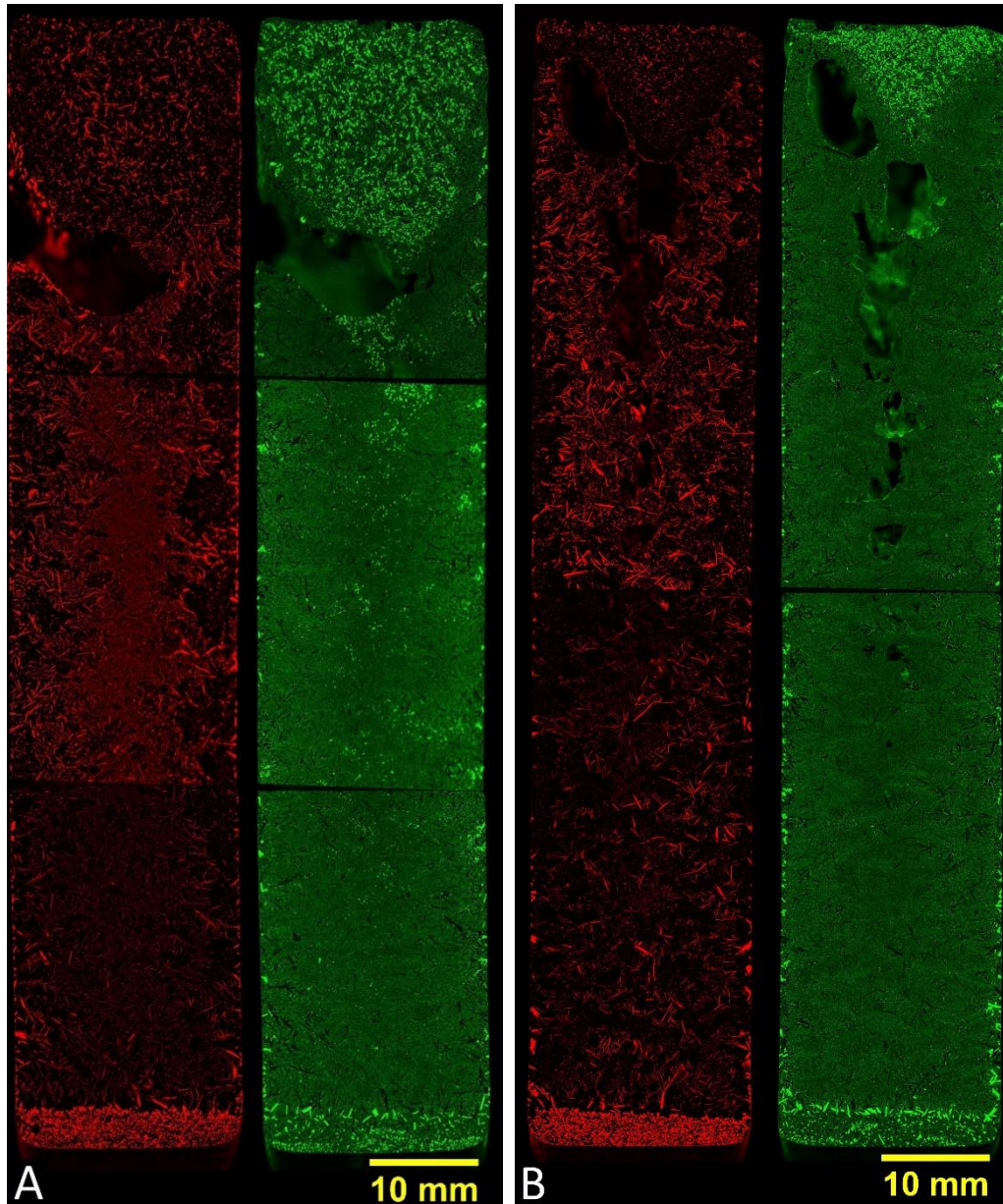


Figure 3-14 : Cartographie élémentaire le long d'une coupe longitudinale d'un barreau d'alliage expérimental Al-Fe-Si réalisée en fluorescence des rayons X. La distribution du fer est en rouge et celle du silicium est en vert. A) barreau sédimenté, B) barreau centrifugé.

La concentration en silicium dans les particules d'intermétalliques d' $\text{Al}_5\text{FeSi}-\beta$ que l'on retrouve dans la microstructure est beaucoup plus faible que celle du silicium pur. On remarque aussi que là où l'on observe des particules très massives sur la cartographie du fer (particules d' $\text{Al}_5\text{FeSi}-\beta$), on observe une « ombre » de la forme de la particule sur la cartographie du silicium. Nous sommes donc en présence de deux phases différentes dans une matrice d'aluminium: $\text{Al}_5\text{FeSi}-\beta$ et Si pur. La cartographie du fer nous indique la position des intermétalliques d' $\text{Al}_5\text{FeSi}-\beta$ et la cartographie du silicium nous indique la position des

particules de silicium. Il avait déjà été remarqué qu'avec cet alliage expérimental d'Al-Fe-Si, il serait possible de retrouver jusqu'à 1% volumique de particules de silicium (Tableau 3-2).

Comme pour les échantillons de l'alliage expérimental d'Al-Fe, on remarque trois zones distinctes : Une zone dont la microstructure est assez uniforme au-dessus de la frontière, une zone frontière bien plus fine que pour l'alliage d'Al-Fe composée de particules d'intermétalliques $Al_5FeSi-\beta$ plus massives et une zone de particules d'intermétalliques $Al_5FeSi-\beta$ accumulées en dessous de la zone frontière. On observe une zone au bas de l'échantillon où il y a accumulation de petites particules d'intermétalliques $Al_5FeSi-\beta$, et le seul autre endroit où l'on retrouve cet intermétallique est le long des parois latérales. Cette zone de particules accumulés sous la frontière est bien plus petite que pour le barreau d'alliage expérimental d'Al-Fe, ce qui est bien normal puisque le pourcentage volumique d'intermétalliques avant solidification eutectique n'est que de 0,9% d' $Al_5FeSi-\beta$ contre 3.0% d' Al_3Fe pour l'alliage expérimental d'Al-Fe. Dans la Figure 3-14 A, il semble y avoir une petite zone plus concentrée en intermétalliques dans le centre-gauche, vers le haut de l'échantillon. Il s'agit en réalité de la paroi extérieure qui s'est déformée vers l'intérieur à cause de la pression engendrée par la variation de volume associé au changement de phase liquide à solide. À cet endroit, on observe donc la paroi extérieure non polie au travers de laquelle on peut voir la signature élémentaire des particules d'intermétalliques y ayant germé [31], [33], [50], [78].

Pour ce qui est des germes de silicium, on les retrouve au même endroit que les intermétalliques, soit accumulés au bas de l'échantillon et le long des parois. Cependant, en plus de ces deux zones, on retrouve aussi une zone d'accumulation au haut des échantillons, que l'on ne retrouvait pas pour les barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe. Il s'agit d'une petite zone en forme de triangle pointant vers le bas, composé de particules de silicium accumulées au haut de l'échantillon. Ces zones sont beaucoup plus faciles à observer sur les Figure 3-14 A et B, mais on en retrouve aussi une métallographie à faible grossissement à la Figure 3-15. On constate aussi que cette zone d'accumulation au haut des échantillons est plus compacte pour le barreau centrifugé que pour le barreau sédimenté. Il s'agit donc de particules de silicium ayant flotté vers la surface à cause de leur densité plus faible que celle du métal liquide lors de la solidification, que ce soit avec ou sans centrifugation [79].

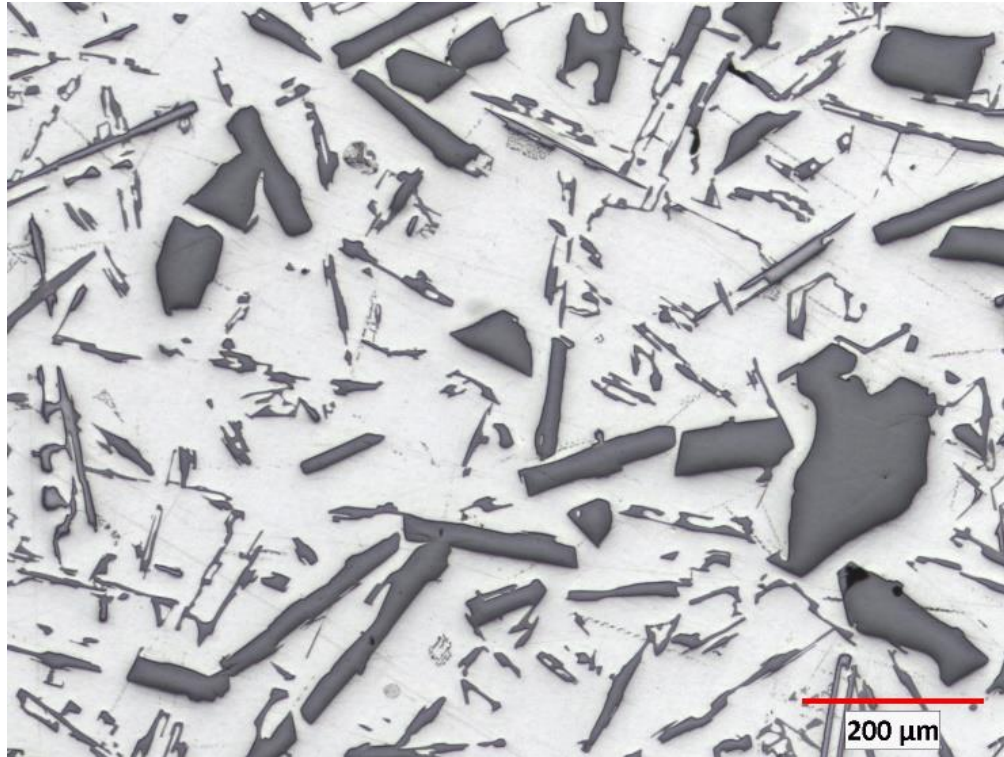
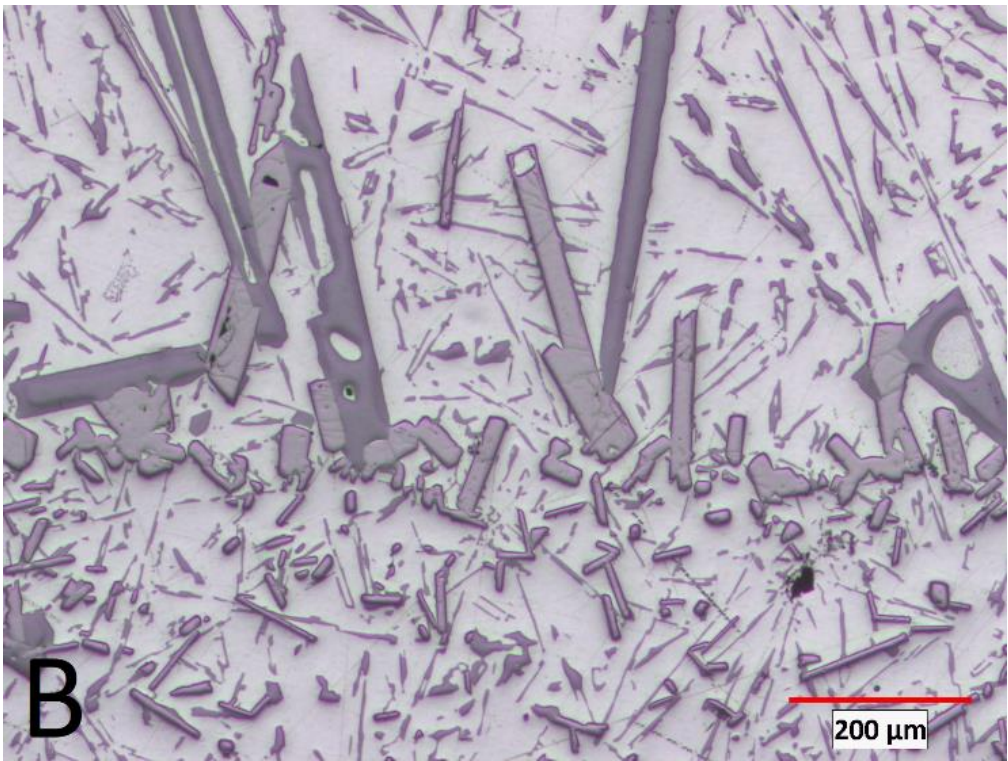
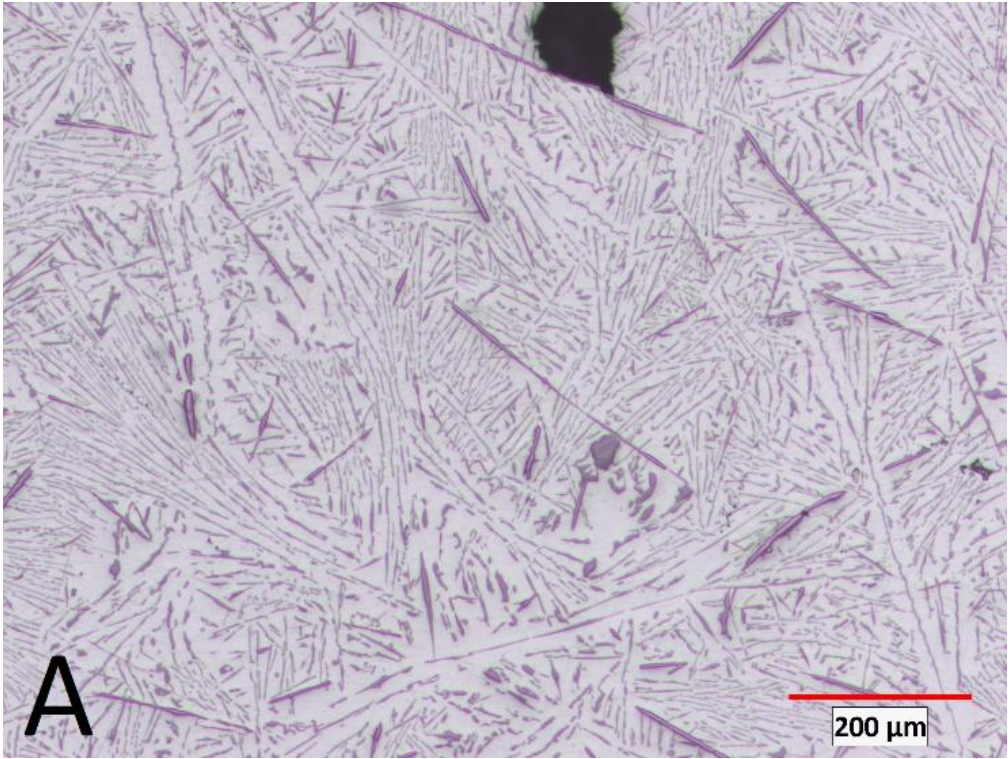


Figure 3-15 : Métallographie optique à 50X de la zone d'accumulation de particules du haut complètement d'un échantillon d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement en sédimentation naturelle.

On peut observer, aux Figure 3-16 A à C, les microstructures dans un barreau d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si après une solidification lente en sédimentation naturelle. On peut y voir une métallographie de la zone dite « eutectique » au-dessus de la frontière en A, une autre de la frontière elle-même en B, et une dernière de la zone d'accumulation de particules sous la frontière en C. Dans les zones eutectiques, on observe une grande quantité de petites plaquettes ou aiguilles qu'on retrouve, avec sensiblement le même arrangement que les plaquettes d' Al_3Fe pour les barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe, mais avec des particules plus fines d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$.



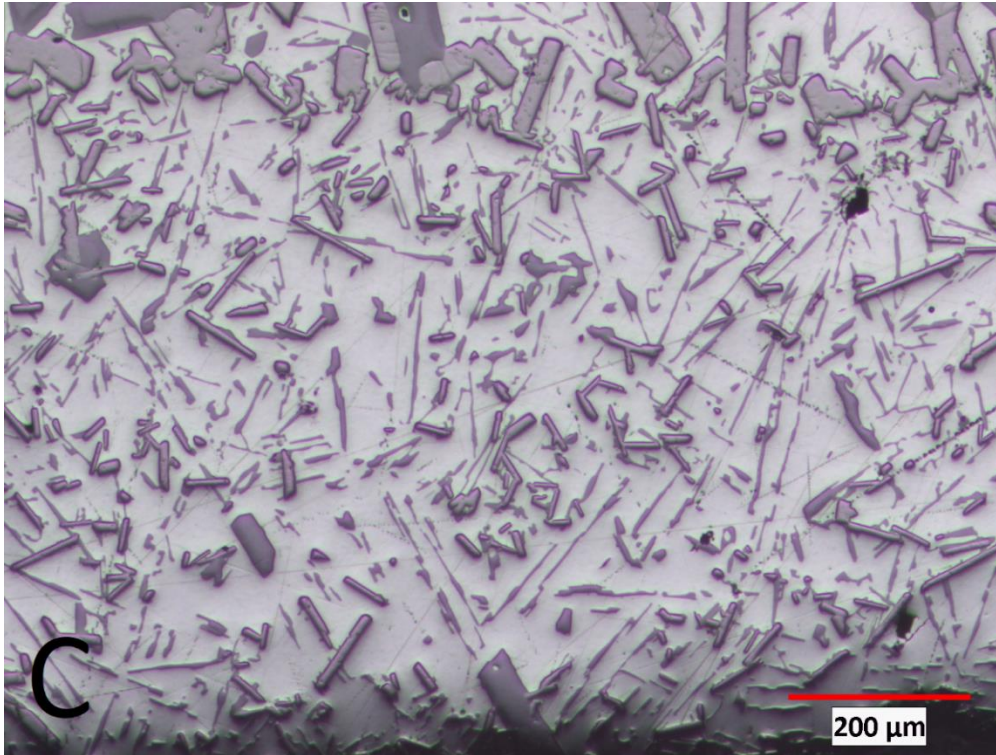
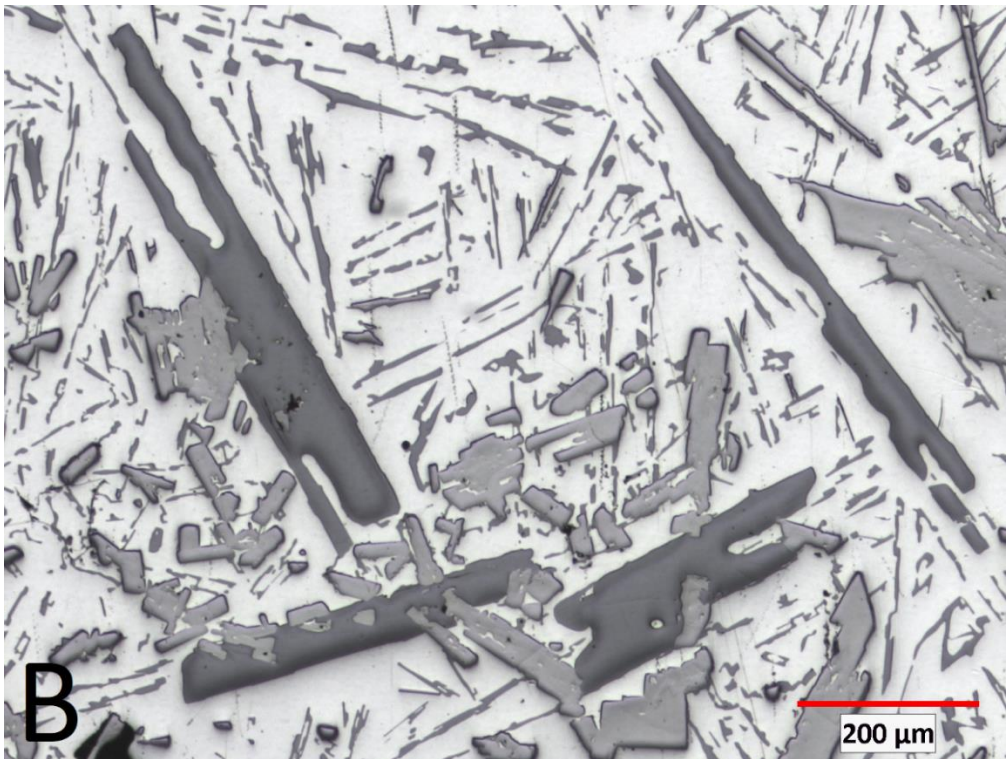
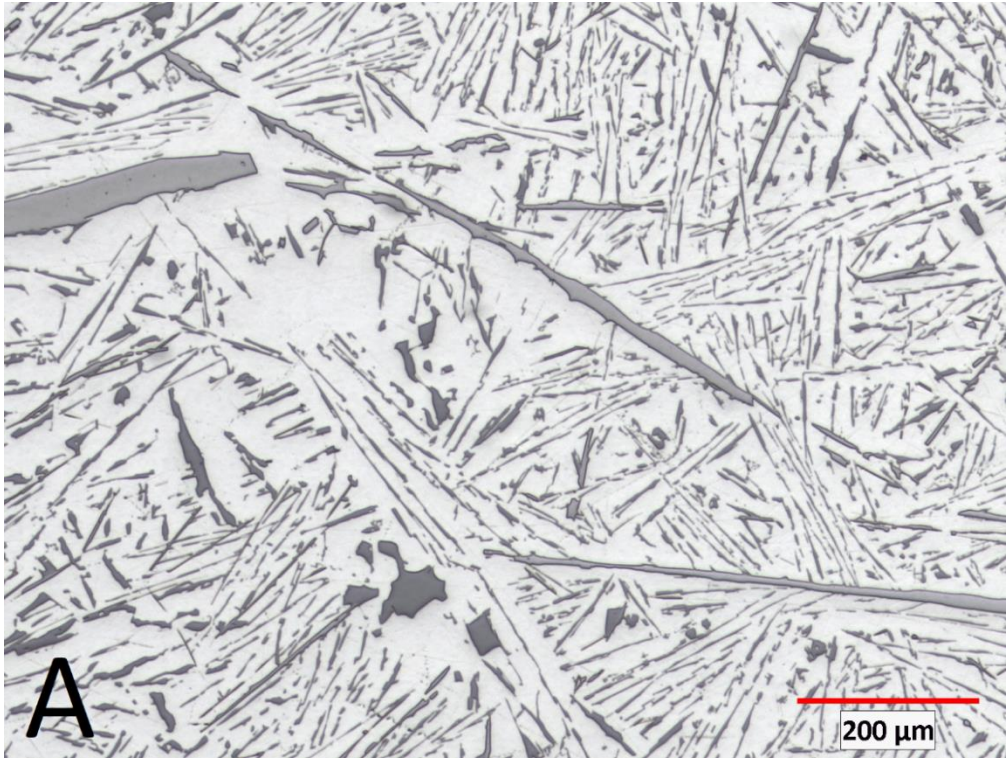


Figure 3-16 : Métallographie optique à 50X de barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement sous sédimentation naturelle - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone de particules accumulées sous la frontière (on y voit aussi une partie de la zone frontière).

Pour ce qui est des zones frontières, elles sont assez semblables chez les deux alliages. La frontière elle-même est composée d'intermétallique massifs d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ et de quelques particules massives de silicium. Encore une fois, les seuls autres endroits où l'on retrouve des particules d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ aussi massives que celles de la frontière sont le long des parois du cylindre et tout en haut, collé sur la couche d'oxyde de surface. Les particules les plus foncées visibles dans les microstructures des métallographies de la Figure 3-16 et de la Figure 3-15 sont des particules de silicium.

La Figure 3-17 A, B et C présente les microstructures dans un barreau d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si après une solidification lente avec centrifugation. On peut y voir une métallographie de la zone eutectique au-dessus de la frontière en A, une autre de la frontière elle-même en B, et une dernière de la zone d'accumulation de particules sous la frontière en C.



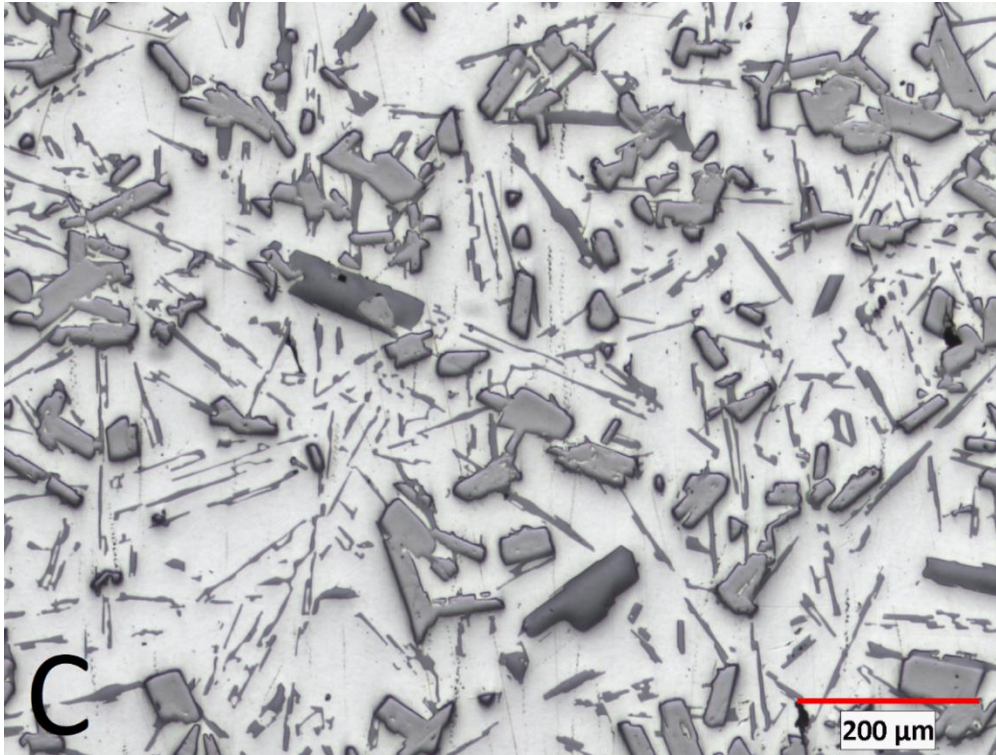


Figure 3-17 : Métallographie optique à 50X de barreaux d'alliage expérimental d'Al-Fe-Si solidifié lentement sous centrifugation - A) Zone eutectique au-dessus de la frontière, B) Zone frontière, C) Zone de particules accumulées sous la frontière.

On peut y faire les mêmes observations que pour la Figure 3-16. Chacune des trois zones est composée des mêmes constituants et arrangée de manière semblable. On y retrouve majoritairement des particules massives d'intermétallique d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ qui composent la zone de particules accumulées et la majorité des particules de la frontière. Les autres particules, apparaissant plus foncées sur les métallographies, sont des particules de silicium pur. On remarque, tant pour l'échantillon centrifugé que pour celui non-centrifugé, que certaines petites particules de silicium se retrouvent sous la frontière et certaines autres plus massives, à la frontière. La majorité des particules de silicium se retrouvent aussi au haut de l'échantillon, bien visible sur la Figure 3-14. Les particules de silicium auraient toutes dû se retrouver au haut de l'échantillon puisque leur masse volumique au cours de la solidification est plus faible que celle du liquide les entourant. C'est le phénomène inverse de celui se produisant avec les particules d'intermétalliques ayant une masse volumique plus élevée que le liquide et qui sédimentent lors de la solidification. Cependant, le lieu de germination de ces deux phases est le même; les bifilms. Il est donc possible qu'un bifilm soit à l'origine de la germination d'une particule de silicium et d'un intermétallique $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ en même temps. On se retrouve donc avec une particule mixte dont la masse volumique

est fonction de sa proportion de silicium, d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, d' Al_2O_3 (le bifilm lui-même) et de gaz (contenu dans le bifilm lors de la solidification). On peut observer certaines de ces particules à la Figure 3-16 B et à la Figure 3-17 B. Cette particule mixte peut donc se retrouver à sédimer ou à flotter selon sa masse volumique finale. Tout au long de la solidification, cette masse volumique résultante variera puisque les proportions de ces différents composants varieront aussi avec la croissance des germes et la diffusion des gaz vers le bifilm. Il n'est donc pas surprenant de se retrouver avec quelques particules de silicium qui n'ont pas flotté et quelques particules d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ au-dessus de la frontière. Certaines particules d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ peuvent aussi avoir germé directement sur la paroi d' Al_2O_3 , comme pour les particules d' Al_3Fe dans l'alliage expérimental d'Al-Fe. Les particules de silicium pur visibles à la frontière et sous cette frontière sont presque systématiquement liées à une particule d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, ce qui confirme cette observation.

L'inverse semble plus rare : on ne retrouve que peu de particules mixte (silicium pur et $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$) dans la zone de particules accumulées au haut de l'échantillon. Une des explications possibles de ce comportement est le fait que les particules d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ ont commencé à germer avant celles de silicium, et ont donc commencé à sédimenter avant même qu'il y ait des germes de silicium. Il est donc plus probable que la masse volumique finale de la particule mixte tende plus vers la masse volumique de l'intermétallique $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ plutôt que vers celle du silicium. Cette particule mixte tendra donc à sédimenter plus qu'à flotter. Une autre explication possible est la différence entre les masses volumiques de ces deux particules. En se rapportant à la séquence de solidification, on voit que les germes d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ apparaissent avant ceux de silicium. Les particules présentes au moment où le silicium commence à germer devraient donc déjà être en partie composées d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, ce qui donne un « avantage » à la sédimentation face à la flottation de ces dernières. C'est la différence de masse volumique entre la particule et le liquide qui détermine la propension d'une particule à flotter ou à sédimenter, il faut donc aussi s'attarder à cette différence. Sans tomber dans les détails, si on considère une température de 600°C , l'alliage d'Al-Fe-Si liquide possède une masse volumique d'environ 2.4 g/cm^3 , le silicium d'environ 2.3 g/cm^3 et l'intermétallique $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ d'environ 3.3 g/cm^3 [56]. On constate vite que la différence de masses volumiques entre le liquide et les deux types de particule est grande. Dans le cas de liquide-silicium, c'est environ 0.1 g/cm^3 inférieur et pour liquide- $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, c'est plutôt d'environ 1.0 g/cm^3 supérieur. Cela veut dire que pour un même volume de germe sur un film d'oxide, l'intermétalliques d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ sera beaucoup plus influent dans le calcul de la

vitesse de la particule, et donc aussi dans la détermination de sa direction (flottation ou sédimentation). Cela nous amène aussi à voir que la force générée par cette différence de masse volumique est celle qui pousse les particules les unes contre les autres au haut et au bas des échantillons. Cela explique, en partie, la différence apparente de densité de particules entre la zone du haut et celle du bas des échantillons d'alliage expérimental Al-Fe-Si. Les particules de silicium semblent moins densément accumulées que celles d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, que ce soit chez l'échantillon centrifugé ou chez celui sédimenté naturellement.

Il est aussi possible de faire les mêmes observations quant à la taille des intermétalliques d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ de la zone de particules sédimentées et de la zone frontière que pour l'alliage expérimental Al-Fe et ses particules d'intermétalliques d' Al_3Fe . C'est la même explication qui est apportée pour expliquer la différence de taille entre les particules de la zone d'accumulation de particules et celles de la frontière.

Bien qu'ils soient présents en très grand nombre, surtout dans les sections sous la frontière des échantillons des deux alliages expérimentaux, les bifilms ne sont pas visibles sur les différentes métallographies présentées dans cette section. Les conditions menant à leur déchiffonnement et à leur gonflement ne sont pas réunies dans nos conditions expérimentales. Ils sont donc présents, mais complètement recroquevillés sur eux-mêmes, et les intermétalliques Al_3Fe et $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ ont pu y germer et les englober complètement. Les bifilms ayant une très petite épaisseur, il est plus facile de les observer avec des plus grands grossissements, comme à la Figure 3-8 : Métallographie optique de bifilms et leur intermétalliques associés dans des alliages Al-Fe-Si et Al-Fe. Les flèches rouges indiquent les bifilms. A) et B) Alliage expérimental Al-Fe-Si tel que coulé dans le moule à barreaux, C) Partie centrale d'un alliage expérimental d'Al-Fe centrifugé lors de sa solidification lente. Figure 3-8.

3.5. Résultats des tests de TPRM de barreaux centrifugés et sédimentés d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si

La Figure 3-18 présente des exemples de photographies en lumière rasante pour mieux discerner les rebords des porosités. Ce sont ces photographies qui sont utilisées pour le calcul du nombre de pores par cm^2 de métal poli. On peut voir, en A, la section « B » et en B, la section « D » d'un barreau centrifugé de l'alliage expérimental d'Al-Fe. Comme mentionné dans le Chapitre 3, les sections sont nommées de « A » à « D » de haut en bas. Comme on peut le voir, même les plus petits pores de moins d'un millimètre de diamètre

sont facilement observables sur ces images. On peut aussi aisément remarquer que la section « D » possède beaucoup plus de pores que la Section « B ». Il faut cependant se rappeler que ce n'est pas le nombre de pores qui nous intéresse, mais le nombre de pores par unité de surface de métal poli. En comparant ces « nombres de pores/cm² », on se retrouve à rendre comparables des échantillons de masse ou de volume différents, on peut donc comparer tous les échantillons les uns avec les autres.

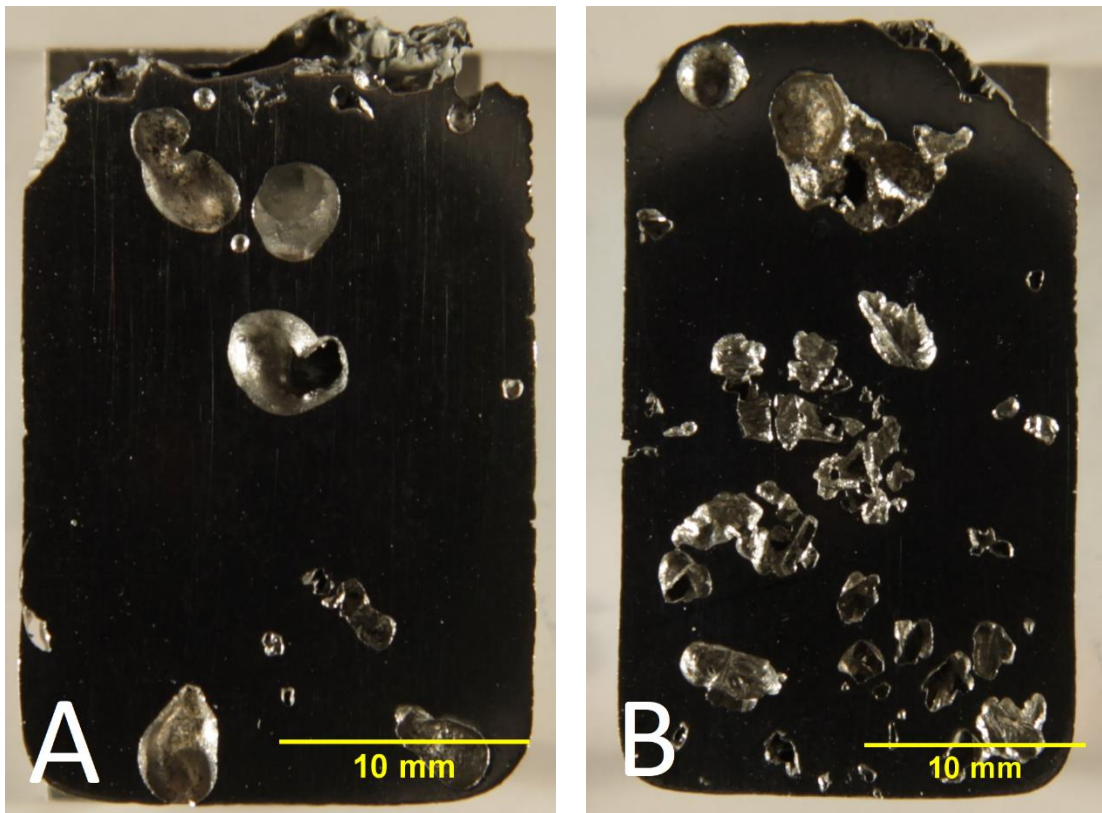


Figure 3-18 : Macrographies des barreaux d'alliage expérimental Al-Fe après centrifugation, découpe, TPRM et polissage. A) Section "B" du barreau, B) Section "D" du barreau.

La Figure 3-19 présente les résultats compilés des tests de TPRM réalisés sur les barreaux sédimentés naturellement, centrifugés et sur un morceau tel que coulé dans le moule à barreaux (référence) pour l'alliage expérimental Al-Fe. La barre orange représente la valeur du test de TPRM de l'échantillon tel que coulé (référence avant sédimentation ou centrifugation). On y retrouve aussi la cartographie du fer en XRF d'un des barreaux centrifugés à fins de situer les différentes sections de « A » à « D » dans les barreaux par rapport aux différentes zones. On y observe des sections avec substantiellement plus de pores/cm² que l'échantillon de référence et d'autres avec bien moins de pores/cm² que cet

échantillon. Les sections « D » de chaque barre sont celles ayant le plus grand nombre de pores par cm^2 de métal poli.

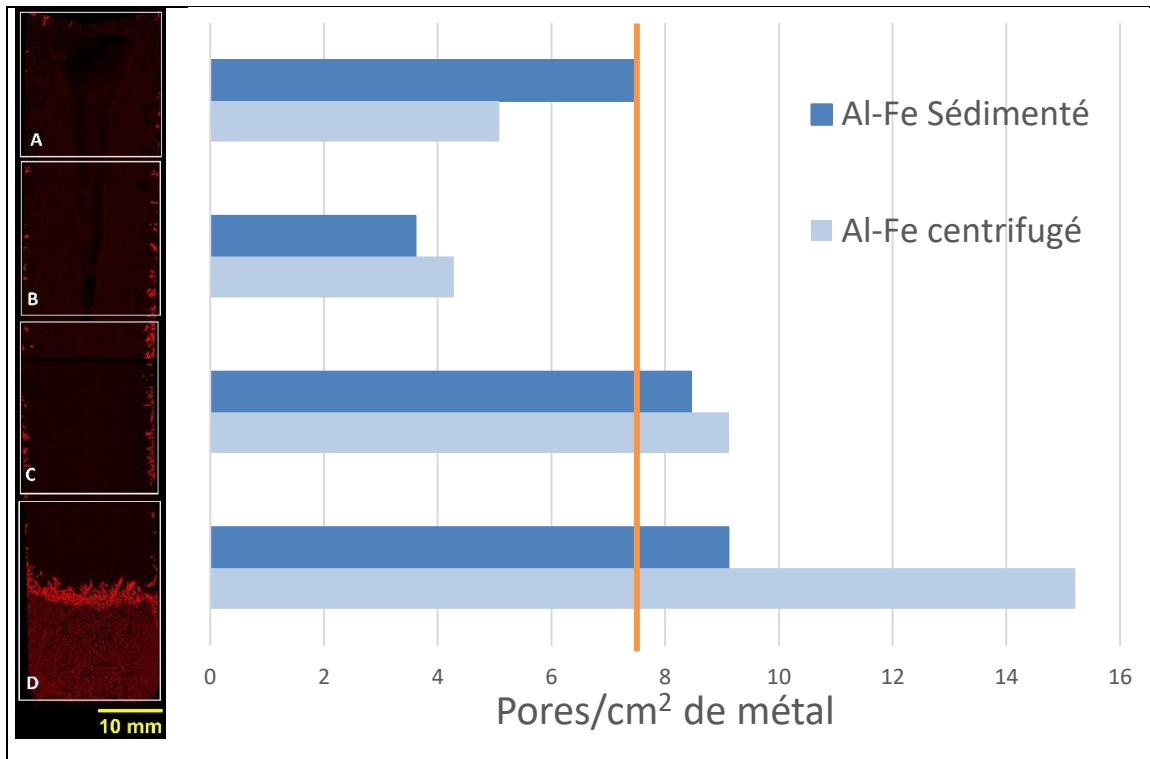


Figure 3-19 : Nombres de pores par cm^2 de métal polis de barreaux de l'alliage d'Al-Fe. La cartographie élémentaire du fer de gauche sert à positionner les différentes sections le long d'un barreau. La ligne orange représente le nombre de pores par cm^2 de métal d'un TPRM réalisé sur un barreau tel que coulé.

La Figure 3-20 présente les résultats compilés des tests de TPRM réalisés sur les barreaux sédimentés naturellement, centrifugés et sur un morceau tel que coulé dans le moule à barreaux pour l'alliage expérimental Al-Fe-Si. La barre orange représente la valeur du TPRM de l'échantillon tel que coulé (référence avant sédimentation). On peut y faire sensiblement les mêmes observations que pour la Figure 3-19.

L'effet le plus marqué est sans doute l'appauvrissement des sections « B » en pores qui varient entre $\frac{1}{2}$ et $\frac{1}{3}$ du nombre de pores/ cm^2 des échantillons de référence. Comme les pores décelés dans ce test représentent des bifilms gonflés, on peut conclure que cette section se retrouve « nettoyée » d'une partie de ses bifilms. On peut faire l'observation inverse pour les sections « D ». Ces sections présentent systématiquement plus de pores/ cm^2 que leurs échantillons de référence respectif. On peut donc en conclure que ces zones se retrouvent enrichie en bifilms, mais aussi que c'est la sédimentation des

intermétalliques ayant germé sur ces bifilms qui les ont entraînés avec eux. Ces observations générales sont valides autant pour les barreaux d'alliage expérimental Al-Fe que pour ceux d'Al-Fe-Si [14], [19]–[21], [41].

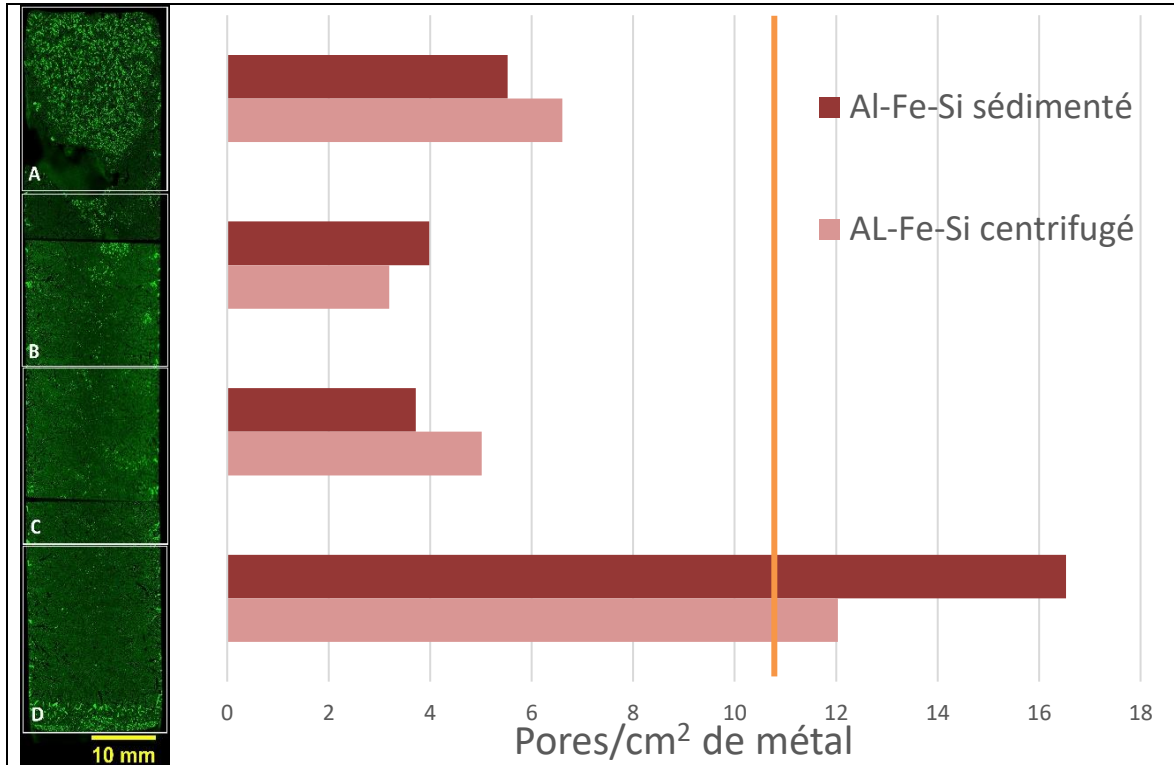


Figure 3-20 : Nombres de pores par cm^2 de métal polis de barreaux de l'alliage d'Al-Fe-Si. La cartographie élémentaire du silicium présentée à gauche sert à positionner les différentes sections le long d'un barreau. La ligne orange représente le nombre de pores par cm^2 de métal d'un TPRM réalisé sur un barreau tel que coulé.

Comme la zone de sédimentation des particules de l'alliage d'Al-Fe est plus grande que celle de l'alliage Al-Fe-Si, il est normal que les sections « C » ne se ressemblent pas chez les deux alliages. En effet, il est possible que la section « C » du barreau d'Al-Fe empiète sur cette zone de sédimentation et qu'il y ait donc une partie des bifilms sédimentés qui s'y retrouvent. Il est évident, en regardant la section « C » de la Figure 3-20, que ce n'est pas le cas pour l'alliage expérimental Al-Fe-Si qui possède une zone de sédimentation de particules beaucoup plus mince. Dans ce cas, il semble que les sections « C » et « B » aient été « nettoyées » d'une partie de leur bifilms. Pour ce qui est des sections « A », on se retrouve généralement avec moins de pores que l'échantillon de référence, mais avec quand même plus que chez les sections dites « nettoyées » de leur bifilms. Selon la quantité de gaz déjà présente dans les bifilms, il est possible que certains aient pu flotter malgré la

masse des intermétalliques qui y germaient, et donc se retrouver dans la section « A » avant le TPRM. Dans le cas de l'alliage Al-Fe-Si, ce sont les particules de silicium ayant germé sur des bifilms qui sont responsables de leur accumulation au haut, dans la section « A » [9], [12], [14], [28], [38], [43], [49]. La Figure 3-14 et la Figure 3-15 montrent bien cette zone de particules de silicium accumulées au haut de l'échantillon.

Le Tableau 3-7 présente un résumé des résultats des tests à pression réduite modifié par zone plutôt que par section. On y retrouve aussi le pourcentage de variation de ces différentes zones par rapport à l'échantillon de référence de chaque alliage. Comme mentionné plus haut, les sections « C » des échantillons d'alliage expérimental d'Al-Fe contiennent fort probablement une partie des intermétalliques sédimentés et les bifilms qui y sont associés. Ces sections ne peuvent donc pas être considérées comme « nettoyées » de leurs bifilms. Pour l'alliage expérimental d'Al-Fe, seulement la section « B » est considérée comme nettoyée de ses bifilms. Alors que pour l'alliage expérimental d'Al-Fe-Si, c'est une moyenne des sections « B » et « C » qui est utilisé pour calculer le nombre de pores/cm² de métal des zones dites nettoyées de leur bifilms. Pour ce qui est des zones d'accumulation de particules des échantillons d'Al-Fe, nous avons considéré la section « A » de ces échantillons comme étant celle les ayant accumulés. Bien que les images de cartographie du fer de la Figure 3-9 ne semble pas montrer la présence d'intermétalliques au haut des échantillons, il se peut que certains bifilms aient tout de même migré vers le haut de l'échantillons lors de la solidification et s'y soient accumulées. C'est pourquoi on considère toutes les sections « A » comme des zones d'accumulation de particules potentielles.

Tableau 3-7 : Pourcentage de variation du nombre de pores/cm² de métal par rapport aux échantillons de références des échantillons de TPRM des alliages expérimentaux d'Al-Fe et d'Al-Fe-Si.

	Al-Fe		Al-Fe-Si	
	Sédimenté	Centrifugé	Sédimenté	Centrifugé
Nombre de pores/cm ² de métal des échantillons de référence	7,66		10,3	
Zone d'accumulation de particules du haut	-2,6 %	-34 %	-46 %	-36 %
Zone nettoyée de ses bifilms	-53 %	-44 %	-63 %	-60 %
Zone d'accumulation de particules du bas	+19 %	+99 %	+60 %	+17 %

Il est peut-être plus facile de visualiser l'effet du procédé en regardant les pourcentages de variation du nombre de pores/cm² de métal. Chez tous les échantillons, on retrouve une diminution du nombre de pores/cm² de métal dans les zones nettoyées de leur bifilms. Cette diminution est de plus de 40% chez tous les échantillons de ces zones. En contrepartie, toutes les zones d'accumulations de particules du bas des échantillons voient leur nombre de pores/cm² de métal augmenter, et presque doubler chez l'un d'entre eux. Pour ce qui est des zones d'accumulation de particules du haut des échantillons, bien qu'on y ait accumulé des particules, on retrouve tout de même systématiquement moins de pores/cm² de métal que leur échantillon de référence respectif. Comme les différentes zones (accumulation de particules du haut / du bas et nettoyée) ne coïncident pas nécessairement avec les différentes sections (A, B, C et D), il se peut que notre perception de l'accumulation de bifilms au haut ou au bas de l'échantillon se retrouve diminué par un effet de dilution avec une partie d'une zone nettoyé (on ajoute de la superficie de métal propre sans ajouter de pores ou de bifilms).

3.6. Commentaires

Pour bien comprendre les processus s'opérant lors de la centrifugation des alliages expérimentaux se solidifiant lentement, il faut refaire le parcours de solidification des alliages, en s'attardant au comportement des particules d'intermétalliques, des germes de silicium, des bifilms et, finalement, des germes d'aluminium.

Parcours de solidification de l'alliage expérimental d'Al-Fe lors de solidification lente avec et sans centrifugation à partir de l'état liquide.

1. La température de l'échantillon descend et passe sous le liquidus; les intermétalliques commencent à germer sur les films d'oxyde (bifilms) présents dans le liquide, et entament aussi leur chute vers le bas de l'échantillon dès que la masse volumique de la particule mixte passe au-dessus de celle du liquide. D'autres intermétalliques germent sur la paroi du barreau (aussi composés d'oxydes d'aluminium), mais y reste accrochés.
2. Tout au long de leur descente, les intermétalliques continuent de croître et augmentent de taille. Comme leur taille augmente, leur vitesse finale de sédimentation augmente aussi (Équation 1-12).
3. Une fois arrivés au bas de l'échantillon, les intermétalliques s'empilent les uns sur les autres. À ce moment, l'aluminium liquide les entourant contient encore un peu de fer en

solution qui contribue à la croissance des intermétalliques au fur et à mesure que la température descend. La majorité du fer dissout dans l'aluminium se trouve dans la zone en haut de la frontière nouvellement créée, étant donné que cette zone est plus volumineuse que celle sous la frontière. Cette zone est maintenant presque exempte d'intermétalliques libres dans le liquide. Les seules particules encore présentes dans la zone sont celles ayant une masse volumique totale qui est restée proche de celle du liquide tout au long de la sédimentation ou de la centrifugation.

4. Plus la température descend, moins l'aluminium peut contenir de fer dissout, et comme mentionné dans le Chapitre 1, la germination homogène des intermétalliques d' Al_3Fe en refroidissement lent est très peu probable. Le fer diffuse donc là où il le peut pour faire croître les intermétalliques les plus proches, soit ceux de la frontière et ceux de la paroi. Il est aussi probable que les courants de convection contribuent à cette migration du fer. Il arrive donc un point où les petits intermétalliques accumulés au bas ne reçoivent plus de fer de l'aluminium liquide, puisque celui-ci est consommé par les intermétalliques de la frontière avant de pouvoir se rendre en dessous de cette dernière.
5. Avec le temps, il est possible que certaines particules séjournent longtemps dans le liquide car attachées à des bifilms de masse volumique totale trop proche de la masse volumique du liquide. Ces particules baignent plus longtemps dans un aluminium liquide contenant encore du soluté, contrairement aux particules déjà sédimentées. Elles ont donc pu grossir longtemps avant de finalement être entraînées vers le fond et s'accumuler au-dessus des autres moins massives sur la frontière.
6. Au moment d'arriver à la température du solidus, tout l'aluminium liquide restant ne peut contenir plus que la concentration eutectique de fer. On observe donc une solidification de type eutectique qui produit une matrice d'aluminium et de très fines plaquettes d' Al_3Fe , tant au-dessus de la frontière qu'entre les particules accumulées au bas de celle-ci (Figure 3-13). C'est aussi à ce moment que la solubilité de l'hydrogène chute drastiquement [18]. On peut donc voir apparaître un grand vide en plein centre, puisque c'est aussi là que la que la dépression métallostatique se fait le plus ressentir. On y retrouvera donc une grande porosité provenant de l'ouverture et du déchirement d'un fin bifilm encore présent dans le volume à cette étape.

Les bifilms se retrouveront donc majoritairement dans la zone de particules accumulées au bas des échantillons centrifugés ou sédimentés naturellement. Cette observation est

corroborée par l'analyse des TPRM qui nous montre que les sections du bas (section « D ») des échantillons possèdent plus de porosités que les échantillons de référence. Cet effet est encore plus visible chez l'échantillon centrifugé que chez celui sédimenté naturellement. La section « B » des deux échantillons contient aussi près de la moitié moins de pores/mm² de métal que l'échantillon de référence. Cette section se retrouve « nettoyée » d'une partie de ses bifilms qui se sont retrouvés ailleurs, soit au bas de l'échantillon.

L'impact majeur de la centrifugation par rapport à la sédimentation naturelle sur l'alliage expérimental d'Al-Fe se voit sur le nombre de pores accumulés au bas de l'échantillon. Une explication possible est que la zone d'accumulation de particules de l'échantillon sédimenté naturellement est plus grande que la section découpée sur cet échantillon et qu'une partie des bifilms qui devraient se retrouver au bas se retrouvent dans la section « C » au lieu de la section « D ». Chez l'échantillon centrifugé, cette zone d'accumulation de particules est beaucoup plus petite et compacte, il est donc plus probable que l'entièreté de cette zone (et des particules sédimentés) se retrouve dans la section « D ».

Parcours de solidification de l'alliage expérimental d'Al-Fe-Si lors de solidification lente avec et sans centrifugation à partir de l'état liquide.

1. La température de l'échantillon descend et passe sous le liquidus; les intermétalliques d'Al₅FeSi-β commencent à germer sur les films d'oxyde présents dans le liquide, et entament aussi leur chute vers le bas de l'échantillon dès que la masse volumique de la particule mixte (oxyde l'aluminium et Al₅FeSi-β) passe au-dessus de celle du liquide. D'autres intermétalliques d'Al₅FeSi-β germent sur la paroi du barreau (aussi composés d'oxydes d'aluminium), mais y restent accrochés.
2. La température continue de descendre et le silicium commence à germer sur les films d'oxyde encore présents dans le liquide. À ce moment, les particules d'Al₅FeSi-β continuent de germer et de croître. C'est donc la masse volumique totale de la particule mixte (oxyde l'aluminium, silicium et/ou Al₅FeSi-β) qui déterminera si cette particule sédimente ou flotte. D'autres germes de silicium apparaissent aussi sur la paroi du barreau, mais y restent accrochés. Il est donc possible qu'une particule qui avait entamé une sédimentation se retrouve à remonter à cause du silicium qui y germe.
3. Tout au long du refroidissement du liquide, la masse volumique totale des particules de composition mixte continuera aussi de varier. Comme leur masse volumique varie, leur

vitesse finale de sédimentation ou de flottation varie aussi (Équation 1-12). Les particules majoritairement composées de silicium flotteront donc et celles majoritairement composées d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ sédimentent comme pour les particules d' Al_3Fe de l'alliage Al-Fe. Comme il y a beaucoup de particules de composition mixte, il est possible de retrouver des germes de silicium sous la frontière et des germes d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ parmi les germes de silicium au haut des échantillons (Figure 3-14).

4. Une fois arrivées au bas ou au haut de l'échantillon, les particules à composition mixte se compactent les unes sur les autres. À ce moment l'aluminium liquide les entourant contient encore un peu de fer et de silicium en solution qui contribue à la croissance des germes au fur et à mesure que la température descend. La majorité du fer et du silicium dissouts dans l'aluminium se trouvent au centre, entre les deux zones d'accumulation de particules du bas et du haut. Cette zone est maintenant presque exempte d'intermétalliques libres dans le liquide. Les seules particules encore présentes dans la zone sont celles ayant une masse volumique totale qui est restée proche de celle du liquide tout au long de la sédimentation ou de la centrifugation.
5. Plus la température descend, moins l'aluminium peut contenir de fer et de silicium dissouts, et comme mentionné dans le Chapitre 1, la germination homogène des intermétalliques d' Al_3Fe en refroidissement lent est très peu probable [19], [41], [47], [48], [62], tout comme celle de germes de silicium [79]. Le fer migre donc là où il le peut pour faire croître les intermétalliques les plus proches, soit ceux de la frontière et ceux de la paroi. Il arrive donc un point où les petits intermétalliques accumulés au bas ne reçoivent plus de fer de l'aluminium liquide, puisque celui-ci est consommé par les intermétalliques de la frontière avant de pouvoir se rendre en dessous de cette dernière. Il en va de même pour le silicium et ses germes.
6. Avec le temps, il est possible que certaines particules séjournent longtemps dans le liquide car attachées à des bifilms de masse volumique totale trop proche de la masse volumique du liquide. Ces particules baignent plus longtemps dans un aluminium liquide contenant encore du soluté (Fe et/ou Si), contrairement aux particules déjà sédimentées ou ayant déjà flotté qui sont entassées les unes contre les autres. Elles ont donc pu grossir longtemps avant de finalement être entraînées vers le fond et s'accumuler au-dessus des autres moins massives sur la frontière, ou encore de flotter vers le haut des barreaux, s'il s'agit d'une particule de silicium.

7. Au moment d'arriver à la température du solidus, tout l'aluminium liquide restant ne peut contenir plus que la concentration eutectique de fer et de silicium. On observe donc une solidification de type eutectique qui produit une matrice d'aluminium, de fines plaquettes d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$ et d'aiguilles de silicium, tant au-dessus de la frontière qu'entre les particules accumulées au bas de celle-ci (Figure 3-17). C'est aussi à ce moment que la solubilité de l'hydrogène chute d'environ 90% [18]. Comme pour l'alliage d'Al-Fe, on y retrouvera aussi une grande porosité provenant de l'ouverture et du déchirement d'un fin bifilm sous l'effet de la pression d'hydrogène.

Comme pour l'alliage expérimental d'Al-Fe, les bifilms se retrouveront majoritairement dans la zone de particules accumulées au bas des échantillons centrifugés ou sédimentés naturellement. Cette observation est aussi corroborée par l'analyse des TPRM qui nous montre que les sections « D » des échantillons possèdent plus de pores/cm² que les échantillons de référence. Les sections « D » des échantillons, tant centrifugés que sédimentés naturellement, présentent aussi plus de pores/cm² de métal que les trois autres sections des mêmes barreaux. Il est donc clair que les bifilms de cet alliage se sont majoritairement accumulés au bas de ces échantillons. Cet effet est encore plus remarquable si on compare le nombre de pores/cm² de métal des sections « A », « B » et « C » à l'échantillon de référence. Ces sections comptent près de la moitié moins de pores/cm² de métal que l'échantillon de référence. On peut aussi remarquer que la section « A » possède plus de pores/cm² de métal que les sections « B » et « C » des mêmes barreaux, que ce soit pour l'échantillon centrifugé ou sédimenté naturellement. Cette observation nous indique que certains bifilms ont flotté vers le haut, probablement entraînés par les germes de silicium, mais dans une moins grande mesure que ceux entraînés vers le bas par les germes d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$. Cette observation est intéressante puisque sur les cartographies élémentaires de la Figure 3-14, on voit un plus grand volume de particules de silicium que d' $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$, ce qui laisserait à penser que si les deux germent sur les bifilms, le silicium aurait pu en entraîner plus avec lui, mais c'est l'inverse qui est observé. Les sections « B » et « C » sont celles ayant été nettoyées de leur bifilms et les sections « A » et « D » sont celles les ayant accumulées, mais dans des proportions différentes.

La grande différence entre les échantillons des alliages expérimentaux en sédimentation naturelle et en centrifugation est le temps alloué aux particules pour croître et pour prendre de la vitesse, et la force qui pousse les particules les unes contre les autres dans les zones d'accumulation de particules. Bien que les échantillons centrifugés et sédimentés aient le

même temps de solidification, les particules se formant chez l'échantillon centrifugé atteignent la zone de particules sédimentées plus rapidement. Ils ont donc moins de temps pour croître, puisqu'ils entament leur mouvement dès que la masse volumique de la particule mixte diffère de celle du liquide. Les germes (Si ou $\text{Al}_5\text{FeSi-}\beta$) ont donc moins de temps pour croître en centrifugation qu'en sédimentation naturelle. Les particules se retrouvent aussi compactées les unes contre les autres plus densément chez les échantillons centrifugés que chez ceux sédimentés naturellement. L'explication vient simplement du fait que, comme mentionné plus haut, la force qui pousse les particules à monter ou à descendre est générée par la différence de densité entre les particules et le liquide, et comme le montre l'Équation 1-12, le coefficient d'accélération gravitationnel amplifie cette différence. L'échantillon centrifugé présente donc des zones d'accumulation de particules plus petites, mais contenant autant de particules que chez l'échantillon sédimenté naturellement. La zone « nettoyée » de bifilms des échantillons centrifugés est donc proportionnellement plus grande que celle des échantillons sédimentés naturellement.

Conclusion

Retour sur le travail

- Une technique a été développée pour quantifier et localiser les bifilms dans une pièce coulée et solidifiée (TPRM). Cette technique fait intervenir la solidification sous pression réduite. Il s'agit d'une modification du test à pression réduite (TPR).
- L'augmentation de la force G lors de la solidification d'alliages d'aluminium formant les intermétalliques Al_3Fe et Al_5FeSi restant libres dans le liquide diminue le temps nécessaire à leur séparation par sédimentation. Les germes de silicium se formant lors de la solidification et restant libres dans le liquide se séparent aussi, mais par flottation.
- Il est possible d'utiliser la germination préférentielle des intermétalliques Al_3Fe et $Al_5FeSi-\beta$ pour forcer la sédimentation rapide des bifilms dans l'aluminium lorsque la solidification s'opère sur un temps suffisamment long. Ce temps est fonction de la hauteur du bain de fusion, de la taille des intermétalliques et de la force G appliquée. Les germes de silicium peuvent aussi aider à séparer les bifilms par flottation, mais dans une moins grande mesure que les deux intermétalliques de fer susmentionnés.
- Cette séparation des bifilms crée une zone nettoyée de ses bifilms qui en contient beaucoup moins que l'échantillon d'origine. Cette zone se retrouve au centre de l'échantillon. Proportionnellement, les zones d'accumulation de particules du bas et/ou du haut des échantillons s'enrichissent en bifilms.
- L'utilisation de la centrifugation, tant sur l'alliage d'Al-Fe que sur l'alliage d'Al-Fe-Si, amplifie l'effet de la séparation des bifilms et des intermétalliques. En centrifugation, les zones d'accumulation de particules des échantillons centrifugés sont plus compactes que celle des échantillons sédimentés naturellement. Ceci est vrai tant pour la zone d'accumulation de particules du bas des échantillons que pour celle du haut, lorsque présente. Celle du haut étant composée de particules de silicium, elle est seulement présente chez l'échantillon d'alliage expérimental Al-Fe-Si. La zone nettoyée de ses bifilms sera donc plus grande pour l'échantillon centrifugé que pour celui sédimenté. On peut donc conclure que la centrifugation augmente l'efficacité de séparation des bifilms par sédimentation puisque plus de métal se retrouve nettoyé de ses bifilms.

- La composition chimique des zones nettoyées de leur bifilms est différente de celle de l'alliage de base avant sédimentation ou centrifugation. Comme les intermétalliques contenant une bonne partie des éléments d'alliage sont accumulés au bas et au haut de l'échantillon, on retrouve une concentration en élément d'alliage moindre dans les zones nettoyées. Dans le cas Al-Fe et Al-Fe-Si, la composition chimique de ces zones se rapproche de la composition eutectique.

Travaux futurs

- Tout au long de ce projet, nous n'avons considéré qu'un barreau d'alliage pour faciliter les tests et les observations. Le résultat est un morceau de ce barreau qui se retrouve avec bien moins de bifilms que le barreau d'origine, et posséderait donc potentiellement de meilleures propriétés mécaniques. Il serait intéressant d'évaluer les propriétés mécaniques de cette zone avec des tests de tractions sur des bars usinés à même ces zones de métal nettoyé. Il faudrait comparer les propriétés mécaniques de cette zone nettoyée à celles d'un barreau de même composition chimique solidifié de manière conventionnelle.
- La zone nettoyée de chaque barreau pourrait donc servir à être refondue et coulée en une pièce aux propriétés mécaniques supérieures, puisque possédant beaucoup moins de bifilms.
- Une autre approche pour utiliser cette technique de séparation serait de concevoir un moule pour une pièce spécifique, mais avec des volumes de métal disposés au haut et au bas du moule. En centrifugeant ce moule lors du refroidissement du métal liquide, on obtiendrait une séparation in-situ. Il serait alors possible de concentrer les bifilms dans les zones du haut et du bas du moule, et de détacher ces parties par la suite. Comme on sauve une étape de fusion et de remplissage du moule, on minimise le risque de reformer des bifilms à la suite de leur séparation.
- Pour ce projet, les durées de solidification étaient contrôlées, ce qui fait en sorte que les durées de sédimentation réelles ne sont pas connues. Il serait intéressant de faire des tests avec des durées de solidification bien plus courtes pour voir en combien de temps les intermétalliques Al_3Fe et $Al_5FeSi-\beta$ peuvent sédimenter, sans toutefois trop s'éloigner de l'équilibre.

- Il serait intéressant d'évaluer la propension d'autres intermétalliques à germer de façon préférentielle sur les bifilms. Les intermétalliques couramment retrouvés dans les alliages commerciaux sont sans doute les plus intéressants à étudier puisqu'ils ne nécessitent pas l'ajout d'éléments étrangers à l'alliage initial, mais plutôt une modification de la composition chimique nominale. Comme mentionné plus haut dans la conclusion, il sera possible de retrouver une composition chimique différente dans les zones nettoyées par rapport à l'alliage initial. L'ajout de certains éléments d'alliage pourrait donc être équilibré par la sédimentation (ou la flottation) des intermétalliques de cet élément vers une zone qui sera ultérieurement retirée.
- Les intermétalliques contenant du fer, du silicium, du cuivre et/ou du manganèse devraient être les prochains à être étudiés. Le fer et le manganèse sont déjà présents dans beaucoup d'alliages comme impuretés pour des raisons mentionnées plus haut [19], [33], [47], [48], [64], [80]–[82]. Le cuivre et le silicium sont deux des éléments d'alliages les plus couramment utilisés dans l'industrie de l'aluminium. Les intermétalliques retenus devraient être ceux possédant la plus grande masse volumique et aussi ceux ayant la plus grande propension à germer sur les bifilms. Il faut aussi rejeter tout intermétallique pouvant germer facilement sans substrat.
- Il pourrait être intéressant d'évaluer la possibilité de faire flotter les bifilms sans intermétalliques à l'état liquide à l'aide d'une centrifugation très rapide. Bien que les bifilms aient une masse volumique très proche de celle du liquide, un grand coefficient d'accélération gravitationnel devrait être en mesure de provoquer une vitesse de flottation suffisante pour nettoyer l'aluminium de ses bifilms par flottation en quelques heures. Il serait aussi possible de coupler cette technique avec un sur-gazage à l'hydrogène pour forcer les bifilms à prendre un peu de volume d'hydrogène et ainsi faciliter leur ascension.

Bibliographie

- [1] J. A. S. Green, *Aluminum Recycling and Processing for Energy Conservation and Sustainability*. ASM International, 2007.
- [2] G. Gaustad, E. Olivetti, and R. Kirchain, "Improving aluminum recycling: A survey of sorting and impurity removal technologies," *Resour. Conserv. Recycl.*, vol. 58, pp. 79–87, 2012.
- [3] R. Raiszadeh and W. D. Griffiths, "A Semi-empirical Mathematical Model to Estimate the Duration of the Atmosphere within a Double Oxide Film Defect in Pure Aluminum Alloy," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 39, no. 2, pp. 298–303, Apr. 2008.
- [4] M. A. El-Sayed, "Entrained defects in light metal cast alloys," *J. South. African Inst. Min. Metall.*, vol. 117, no. 7, pp. 656–662, 2017.
- [5] R. Raiszadeh and W. D. Griffiths, "A method to study the history of a double oxide film defect in liquid aluminum alloys," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 37, no. 6, pp. 865–871, Dec. 2006.
- [6] M. A. El-Sayed, H. A. G. Salem, A. Y. Kandeil, and W. D. Griffiths, "Determination of the Lifetime of a Double-Oxide Film in Al Castings," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 45, no. 4, pp. 1398–1406, Aug. 2014.
- [7] R. Raiszadeh and W. D. Griffiths, "The behaviour of double oxide film defects in liquid Al alloys under atmospheric and reduced pressures," *J. Alloys Compd.*, vol. 491, no. 1–2, pp. 575–580, Feb. 2010.
- [8] S. Chegini and R. Raiszadeh, "Effect of dissolved hydrogen on removal of double oxide film defects from Al melt," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 27, no. 6, pp. 349–356, Dec. 2014.
- [9] J. Campbell, "Entrainment defects," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 22, no. 2, pp. 127–145, Feb. 2006.
- [10] M. A. El-Sayed, H. A. G. Salem, A. Y. Kandeil, and W. D. Griffiths, "Effect of Holding Time Before Solidification on Double-Oxide Film Defects and Mechanical Properties of Aluminum Alloys," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 42, no. 6, pp. 1104–1109, Dec. 2011.
- [11] D. Dispinar and J. Campbell, "Porosity, hydrogen and bifilm content in Al alloy castings," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, no. 10–11, pp. 3860–3865, Apr. 2011.
- [12] J. Campbell, "Cavitation in liquid and solid metals: role of bifilms," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 31, no. 5, pp. 565–572, Mar. 2015.
- [13] J. Campbell, "The consolidation of metals: the origin of bifilms," *J. Mater. Sci.*, vol. 51, no. 1, pp. 96–106, Jan. 2016.
- [14] J. Campbell, "An overview of the effects of bifilms on the structure and properties of cast alloys," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 37, no. 6, pp. 857–863, Dec. 2006.
- [15] M. A. El-Sayed, H. Hassanin, and K. Essa, "Bifilm defects and porosity in Al cast alloys," *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*, vol. 86, no. 5–8, pp. 1173–1179, Sep. 2016.
- [16] D. Dispinar and J. Campbell, "Critical assessment of reduced pressure test. Part 2: Quantification," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 17, no. 5, pp. 280–286, Oct. 2004.
- [17] D. Dispinar and J. Campbell, "Critical assessment of reduced pressure test. Part 1: Porosity phenomena," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 17, no. 5, pp. 280–286, Oct. 2004.
- [18] J. Campbell, *Complete Casting Handbook*. Elsevier, 2015.
- [19] X. Cao and J. Campbell, "The nucleation of Fe-Rich phases on oxide films in Al-11.5Si-0.4Mg cast alloys," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 34, no. 7, pp. 1409–1420, Jul. 2003.
- [20] N. Akaberi, R. Taghiabadi, and A. Razaghian, "Effect of Bifilm Oxides on the Dry Sliding Wear Behavior of Fe-Rich Al–Si Alloys," *J. Tribol.*, vol. 139, no. 5, p. 051602,

- Apr. 2016.
- [21] X. Cao, N. Saunders, and J. Campbell, "Effect of iron and manganese contents on convection-free precipitation and sedimentation of primary -Al(FeMn)Si phase in liquid Al-11.5Si-0.4Mg alloy," *J. Mater. Sci.*, vol. 39, no. 7, pp. 2303–2314, Apr. 2004.
- [22] M. Çolak, R. Kayikci, and D. Dispınar, "Melt Cleanliness Comparison of Chlorine Fluxing and Ar Degassing of Secondary Al-4Cu ," *Metall. Mater. Trans. B Process Metall. Mater. Process. Sci.*, vol. 47, no. 5, pp. 2705–2709, Oct. 2016.
- [23] D. Dispınar and J. Campbell, "Effect of casting conditions on aluminium metal quality," *J. Mater. Process. Technol.*, vol. 182, no. 1–3, pp. 405–410, Feb. 2007.
- [24] K. J. Brondyke and P. D. Hess, "Filtering and fluxing processes for aluminum alloys," *JOM*, vol. 17, no. 2, pp. 146–149, 1965.
- [25] S. Akhtar, D. Dispınar, L. Arnberg, and M. Di Sabatino, "Effect of hydrogen content, melt cleanliness and solidification conditions on tensile properties of A356 alloy," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 22, no. 1–4, pp. 22–25, Aug. 2009.
- [26] D. Dispınar, S. Akhtar, A. Nordmark, M. Di Sabatino, and L. Arnberg, "Degassing, hydrogen and porosity phenomena in A356," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 527, no. 16–17, pp. 3719–3725, Jun. 2010.
- [27] A. Ardekhani and R. Raiszadeh, "Removal of Double Oxide Film Defects by Ceramic Foam Filters," *J. Mater. Eng. Perform.*, vol. 21, no. 7, pp. 1352–1362, Jul. 2012.
- [28] J. Campbell, "The Origin of Griffith Cracks," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 42, no. 6, pp. 1091–1097, Dec. 2011.
- [29] J. Campbell, "Sixty Years of Casting Research," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 46, no. 11, pp. 4848–4853, Nov. 2015.
- [30] F.-Y. Hsu, "Bifilm Defect Formation in Hydraulic Jump of Liquid Aluminum," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 47, no. 3, pp. 1634–1648, Jun. 2016.
- [31] G. Song, B. Song, Y. Yang, Z. Yang, and W. Xin, "Separating Behavior of Nonmetallic Inclusions in Molten Aluminum Under Super-Gravity Field," *Metall. Mater. Trans. B*, vol. 46, no. 5, pp. 2190–2197, Oct. 2015.
- [32] J. F. Richardson, J. H. Harker, and J. R. Backhurst, "Fluidisation," in *Chemical Engineering*, vol. 2, Elsevier, 2002, pp. 291–371.
- [33] W. Yang, F. Gao, and S. Ji, "Formation and sedimentation of Fe-rich intermetallics in Al-Si-Cu-Fe alloy," *Trans. Nonferrous Met. Soc. China*, vol. 25, no. 5, pp. 1704–1714, May 2015.
- [34] C. Nyahumwa, N. R. Green, and J. Campbell, "Influence of casting technique and hot isostatic pressing on the fatigue of an Al-7Si-Mg alloy," *Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci.*, vol. 32, no. 2, pp. 349–358, 2001.
- [35] S. Fox and J. Campbell, "Visualisation of oxide film defects during solidification of aluminium alloys," *Scr. Mater.*, vol. 43, no. 10, pp. 881–886, Oct. 2000.
- [36] M. Aryafar, R. Raiszadeh, and A. Shalbazadeh, "Healing of double oxide film defects in A356 aluminium melt," *J. Mater. Sci.*, vol. 45, no. 11, pp. 3041–3051, 2010.
- [37] F. Najafzadeh Bakhtiarani and R. Raiszadeh, "Healing of double-oxide film defects in commercial purity aluminum melt," *Metall. Mater. Trans. B Process Metall. Mater. Process. Sci.*, vol. 42, no. 2, pp. 331–340, 2011.
- [38] J. Knott, "Commentaries on 'Entrainment defects' by J. Campbell," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 22, no. 8, pp. 999–1008, Aug. 2006.
- [39] J. Campbell and G. Byczynski, *Shape Casting: 5th International Symposium 2014*. Cham: Springer International Publishing, 2016.
- [40] A. Shafaei and R. Raiszadeh, "Reduced Pressure Test Verification of Healing of

- Double Oxide Film Defects in Al-Mg Alloys," *Metall. Mater. Trans. B Process Metall. Mater. Process. Sci.*, vol. 45, no. 6, pp. 2486–2494, Dec. 2014.
- [41] A. Bjurenstedt, D. Casari, S. Seifeddine, R. H. Mathiesen, and A. K. Dahle, "In-situ study of morphology and growth of primary α -Al(FeMnCr)Si intermetallics in an Al-Si alloy," *Acta Mater.*, vol. 130, pp. 1–9, 2017.
- [42] X. Cao and J. Campbell, "Morphology of β -Al₅FeSi Phase in Al-Si Cast Alloys," *Mater. Trans.*, vol. 47, no. 5, pp. 1303–1312, 2006.
- [43] L. Zhang, J. Gao, L. N. W. Damoah, and D. G. Robertson, "Removal of Iron From Aluminum: A Review," *Miner. Process. Extr. Metall. Rev.*, vol. 33, no. 2, pp. 99–157, Mar. 2012.
- [44] L. Liu, A. M. A. Mohamed, A. M. Samuel, F. H. Samuel, H. W. Doty, and S. Valtierra, "Precipitation of β -Al₅FeSi Phase Platelets in Al-Si Based Casting Alloys," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 40, no. 10, pp. 2457–2469, Oct. 2009.
- [45] J. A. Taylor, "Iron-containing intermetallic phases in Al-Si based casting alloys," *Procedia Mater. Sci.*, vol. 1, pp. 19–33, 2012.
- [46] P. Ashtari, K. Tetley-Gerard, and K. Sadayappan, "Removal of iron from recycled aluminium alloys," *Can. Metall. Q.*, vol. 51, no. 1, pp. 75–80, Jan. 2012.
- [47] L. Lu and A. K. Dahle, "Iron-rich intermetallic phases and their role in casting defect formation in hypoeutectic Al-Si alloys," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 36, no. 13, pp. 819–835, Mar. 2005.
- [48] W. Khalifa, A. M. Samuel, F. H. Samuel, H. W. Doty, and S. Valtierra, "Metallographic observations of β -AlFeSi phase and its role in porosity formation in Al-7%Si alloys," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 19, no. 3, pp. 156–166, Jun. 2006.
- [49] J. Campbell, "Discussion of Six Papers From May 2013 Issue," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 44, no. 10, pp. 4466–4468, Oct. 2013.
- [50] H. L. de Moraes, J. R. de Oliveira, D. C. R. Espinosa, and J. A. S. Tenorio, "Removal of Iron from Molten Recycled Aluminum through Intermediate Phase Filtration," *Mater. Trans.*, vol. 47, no. 7, pp. 1731–1736, 2006.
- [51] B. Farhoodi, R. Raiszadeh, and M.-H. Ghanaatian, "Role of Double Oxide Film Defects in the Formation of Gas Porosity in Commercial Purity and Sr-containing Al Alloys," *J. Mater. Sci. Technol.*, vol. 30, no. 2, pp. 154–162, Feb. 2014.
- [52] H. Xu, X. Jian, T. T. Meek, and Q. Han, "Degassing of molten aluminum A356 alloy using ultrasonic vibration," *Mater. Lett.*, vol. 58, no. 29, pp. 3669–3673, Nov. 2004.
- [53] E. Tan, a R. Tarakcı, D. Dışpınar, M. Çolak, and R. Kayıkçı, "Reproducibility of Reduced Pressure Test Results in Testing of Liquid Aluminum Gas Levels," *6th Int. Adv. Technol. Symp. (IATS'11), 16-18 May 2011, Elazığ, Turkey*, no. May, pp. 16–18, 2011.
- [54] H. Bartar Esfahani, R. Raiszadeh, and H. Doostmohammadi, "Weibull verification of reduced pressure test as a tool for assessing Al melt quality," *Int. J. Cast Met. Res.*, vol. 30, no. 2, pp. 87–95, Mar. 2017.
- [55] S. B. Andersson J.O., Helander T., Höglund L., Shi P.F., "Thermo-Calc and DICTRA, Computational tools for materials science." p. Calphad, 26, 273-312, 2002.
- [56] L. F. Mondolfo, *Aluminum Alloys: Structure and properties*. 1976.
- [57] X. Li, A. Scherf, M. Heilmaier, and F. Stein, "The Al-Rich Part of the Fe-Al Phase Diagram," *J. Phase Equilibria Diffus.*, vol. 37, no. 2, pp. 162–173, Apr. 2016.
- [58] P. Gilgien, A. Zryd, and W. Kurz, "Microstructure selection maps for Al-Fe alloys," *Acta Metall. Mater.*, vol. 43, no. 9, pp. 3477–3487, Sep. 1995.
- [59] G. Ghosh, "Aluminium – Iron – Silicon," in *Light Metal Systems. Part 2*, 2008, pp. 184–266.
- [60] I. R. Hughes and H. Jones, "Coupled eutectic growth in Al-Fe alloys," *J. Mater. Sci.*, vol. 12, no. 2, pp. 323–333, Feb. 2004.

- [61] D. Liang, P. Korgul, and H. Jones, "Composition and solidification microstructure selection in the interdendritic matrix between primary Al₃Fe dendrites in hypereutectic Al-Fe alloys," *Acta Mater.*, vol. 44, no. 7, pp. 2999–3004, 1996.
- [62] A. Gorny, J. Manickaraj, Z. Cai, and S. Shankar, "Evolution of Fe based intermetallic phases in Al-Si hypoeutectic casting alloys: Influence of the Si and Fe concentrations, and solidification rate," *J. Alloys Compd.*, vol. 577, pp. 103–124, Nov. 2013.
- [63] M. C. J. Marker, B. Skolyszewska-Kühberger, H. S. Effenberger, C. Schmetterer, and K. W. Richter, "Phase equilibria and structural investigations in the system Al-Fe-Si," *Intermetallics*, vol. 19, no. 12, pp. 1919–1929, Dec. 2011.
- [64] N. A. Belov, D. G. Eskin, and A. A. Aksenov, "Alloys of the Al-Fe-Mn-Si System," in *Multicomponent Phase Diagrams*, Elsevier, 2007, pp. 1–46.
- [65] L. Li *et al.*, "Crystallographic features of the primary Al₃Fe phase in as-cast Al-3.31wt% Fe alloy," *J. Appl. Crystallogr.*, vol. 43, no. 5, pp. 1108–1112, 2010.
- [66] K. Bouché, F. Barbier, and A. Coulet, "Intermetallic compound layer growth between solid iron and molten aluminium," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 249, no. 1–2, pp. 167–175, Jun. 1998.
- [67] L. Li *et al.*, "Influence of a high magnetic field on the precipitation behavior of the primary Al₃Fe phase during the solidification of a hypereutectic Al-3.31wt% Fe alloy," *J. Cryst. Growth*, vol. 339, no. 1, pp. 61–69, Jan. 2012.
- [68] L. Arnberg, G. Chai, and L. Backerud, "Determination of dendritic coherency in solidifying melts by rheological measurements," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 173, no. 1–2, pp. 101–103, 1993.
- [69] L. Yuan, C. O'Sullivan, and C. M. Gourlay, "Exploring dendrite coherency with the discrete element method," *Acta Mater.*, vol. 60, no. 3, pp. 1334–1345, 2012.
- [70] I. Gómez, E. Viteri, J. Montero, M. Djurdjevic, and G. Huber, "The Determination of Dendrite Coherency Point Characteristics Using Three New Methods for Aluminum Alloys," *Appl. Sci.*, vol. 8, no. 8, p. 1236, 2018.
- [71] G. Chai, L. BÅckerud, T. RØlland, and L. Arnberg, "Dendrite coherency during equiaxed solidification in binary aluminum alloys," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 26, no. 4, pp. 965–970, 1995.
- [72] R. J. Claxton, "Aluminum Alloy Coherency.," *J Met*, vol. 27, no. 2, pp. 14–16, 1975.
- [73] N. L. M. Veldman, A. K. Dahle, D. H. Stjohn, and L. Arnberg, "Dendrite Coherency of Al-Si-Cu Alloys," *Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci.*, vol. 32, no. 1, pp. 147–155, 2001.
- [74] A. M. Samuel and F. H. Samuel, "The reduced pressure test as a measuring," *Metall. Trans. A*, vol. 24, no. 8, pp. 1857–1868, Aug. 1993.
- [75] American Iron and Steel Institute, "High Temperature Characteristics of Stainless Steel," *A Des. Handb. Ser. No 9004*.
- [76] Conseil canadien des normes, "CAN/CSA-G40.20/G40.21-98 - Exigences générales relatives à l'acier de construction laminé ou soudé/Aciers de construction." 2020.
- [77] V. Stefaniay, A. Griger, and T. Turmezey, "Intermetallic phases in the aluminium-side corner of the AlFeSi-alloy system", *Journal Of Material Science*, vol. 22, pp. 539-546, 1987.
- [78] J. F. Löffler and W. L. Johnson, "Crystallization of Mg-Al and Al-based metallic liquids under ultra-high gravity," *Intermetallics*, vol. 10, no. 11–12, pp. 1167–1175, Nov. 2002.
- [79] J. Li, Z. Guo, H. Tang, Z. Wang, and S. Sun, "Si purification by solidification of Al-Si melt with super gravity," *Trans. Nonferrous Met. Soc. China*, vol. 22, no. 4, pp. 958–963, Apr. 2012.

- [80] L. B. Otani *et al.*, "Predicting the Formation of Intermetallic Phases in the Al-Si-Fe System with Mn Additions," *J. Phase Equilibria Diffus.*, vol. 38, no. 3, pp. 298–304, Jun. 2017.
- [81] A. M. A. Mohamed, A. M. Samuel, F. H. Samuel, and H. W. Doty, "Influence of additives on the microstructure and tensile properties of near-eutectic Al-10.8%Si cast alloy," *Mater. Des.*, vol. 30, pp. 3943–3957, 2009.
- [82] Y. Watanabe, Y. Inaguma, H. Sato, and E. Miura-Fujiwara, "A Novel Fabrication Method for Functionally Graded Materials under Centrifugal Force: The Centrifugal Mixed-Powder Method," *Materials (Basel)*, vol. 2, no. 4, pp. 2510–2525, Dec. 2009.

Annexe A - Identification des lieux d'échantillonnage

Différents lieux d'échantillonnage utilisés pour calculer les compositions chimiques du Tableau 3-1 et du Tableau 3-4 du Chapitre 3.

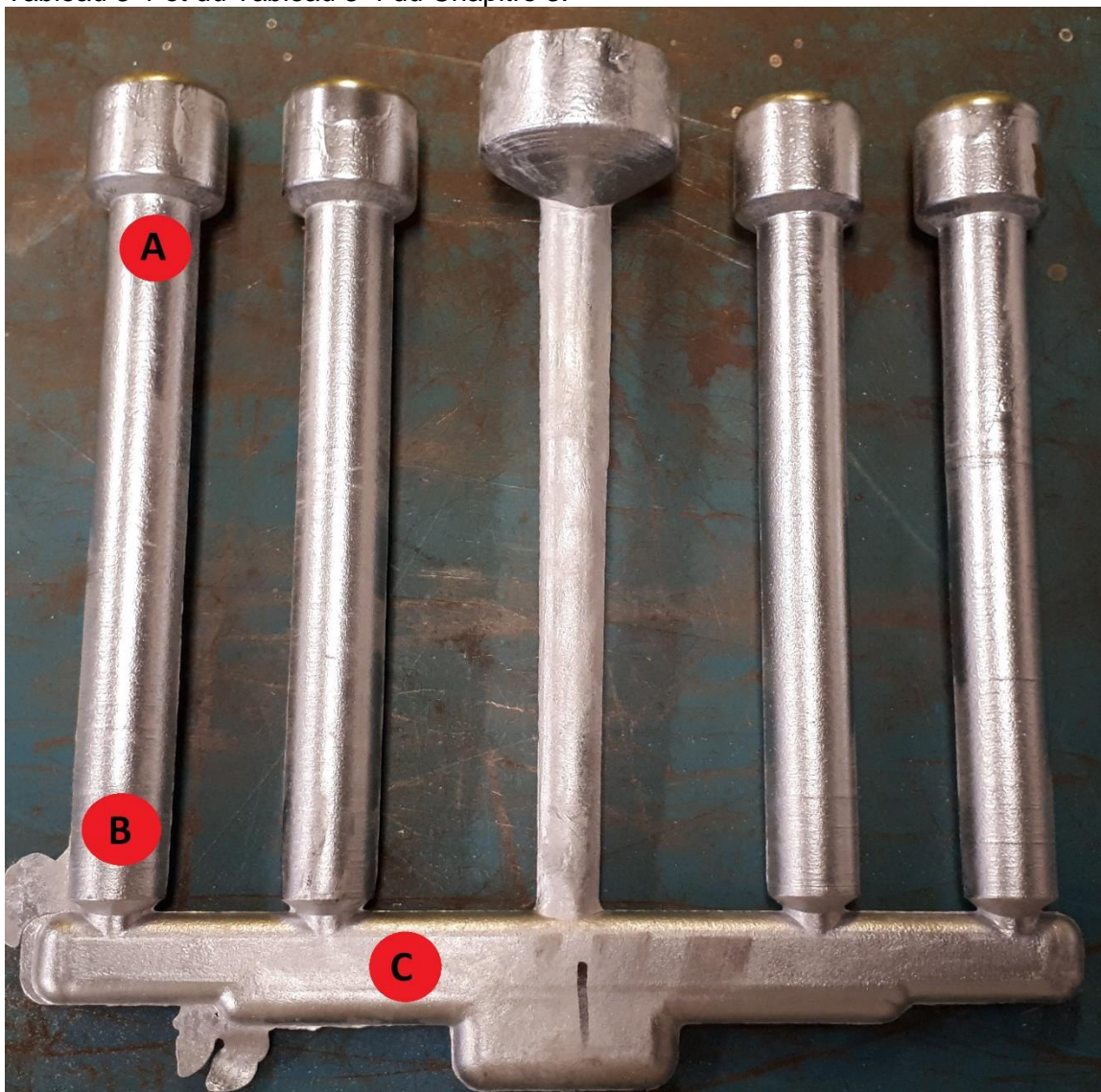


Figure A-1 : Lieux d'échantillonnages des barreaux à leur sortie du moule. En A, le haut du barreau, B, le bas du barreau et C, le chemin de coulée.