

## Caracterização microestrutural de ligas Ta-Si no estado bruto de fusão

### *Microstructural characterization of Ta-Si alloy as cast*

Maria Ismenia Sodero Toledo Faria<sup>1</sup>  
 Rogério da Silva Carolino<sup>2</sup>  
 Antonio Augusto Araújo Pinto da Silva<sup>3</sup>  
 Gilberto Carvalho Coelho<sup>4</sup>  
 Simone Pereira Taguchi Borges<sup>5</sup>

Artigo  
Original

Original  
Paper

#### Palavras-Chave:

Sistema Ta-Si  
 Diagrama de fases  
 Materiais para  
 aplicações em alta  
 temperatura.

#### Resumo

Estudos experimentais envolvendo sistemas contendo metais de transição e silício, revelaram discrepâncias em relação a alguns diagramas de fases até então aceitos. Com isso, o objetivo deste trabalho é reavaliar experimentalmente as reações invariantes envolvendo a fase líquida do binário Ta-Si. Amostras com diversas composições foram fundidas em forno a arco com eletrodo não consumível de tungstênio, em cadinho de cobre refrigerado a água, sob atmosfera de argônio e getter de titânio, utilizando matérias primas de alta pureza (Ta mínimo 99,5% e Si mínimo 99,999%). Cada amostra foi fundida quatro vezes para garantir a homogeneidade microestrutural e composicional. As microestruturas das amostras no estado bruto de fusão foram caracterizadas via microscopia eletrônica de varredura (MEV/EDS) e difração de raios X (DRX). Os resultados dessas análises levaram a uma proposta para o diagrama de fases Ta-Si ligeiramente diferente do indicado no diagrama atualmente aceito.

#### Abstract

*Recent experimental studies involving systems containing transition metals and silicon differed from the phase diagrams currently accepted. The objective of this study is to experimentally re-evaluate the invariant reactions involving the liquid phase of the binary Ta-Si. Samples with different compositions were arc-melted with non-consumable tungsten electrode in a water-cooled, copper crucible under titanium gettered argon atmosphere, using materials of high purity (minimum purity of 99.5% Ta and 99.999% Si). The samples were melted four times to ensure microstructural and compositional homogeneity. The microstructures of the as-cast samples were characterized by scanning electron microscopy (SEM/EDS) and X-ray diffraction (XRD). The results of this analysis led to a proposal for the Ta-Si phase diagram slightly different from the currently accepted diagram.*

#### Key-words:

*Ta-Si System  
 Phase Diagram  
 High Temperature  
 Materials.*

<sup>1</sup> Centro Universitário de Volta Redonda – UniFOA.

<sup>2</sup> Aluno do Mestrado Profissional em Materiais – MEMAT - UNIFOA.

<sup>3</sup> Aluno do Doutorado em Engenharia de Materiais da EEL-USP.

<sup>4</sup> Centro Universitário de Volta Redonda – UniFOA, Escola de Engenharia de Lorena – EEL-USP.

<sup>5</sup> Universidade Federal do Espírito Santo – UFES.

## 1. Introdução

O presente estudo foi realizado com a contribuição do trabalho prático das disciplinas “Caracterização de Materiais” e “Metodologia da Pesquisa” do Mestrado Profissional em Materiais da UNIFOA, que consistiu no acompanhamento da fusão das ligas, na preparação metalográfica e caracterização das amostras.

O interesse no estudo deste sistema consiste no fato de que estudos experimentais recentes, envolvendo sistemas contendo metais de transição e silício<sup>(1-3)</sup>, revelaram discrepâncias em relação aos diagramas de fases até então aceitos.

Desta forma, o trabalho tem dois objetivos:

- envolvimento do aluno do Mestrado Profissional em Materiais na prática de caracterização: confecção de amostras, preparação metalográfica e análise microestrutural das amostras;
- reavaliação experimental das reações invariáveis envolvendo a fase líquida do binário Ta-Si.

O diagrama de fases do sistema binário Ta-Si<sup>(4)</sup> atualmente aceito (Fig. 1) apresenta as seguintes fases estáveis: líquido L, Ta<sub>SS</sub>, Si<sub>SS</sub> (Cúbica-Diamante), Ta<sub>3</sub>Si, Ta<sub>2</sub>Si, αTa<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>, βTa<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> e TaSi<sub>2</sub>.

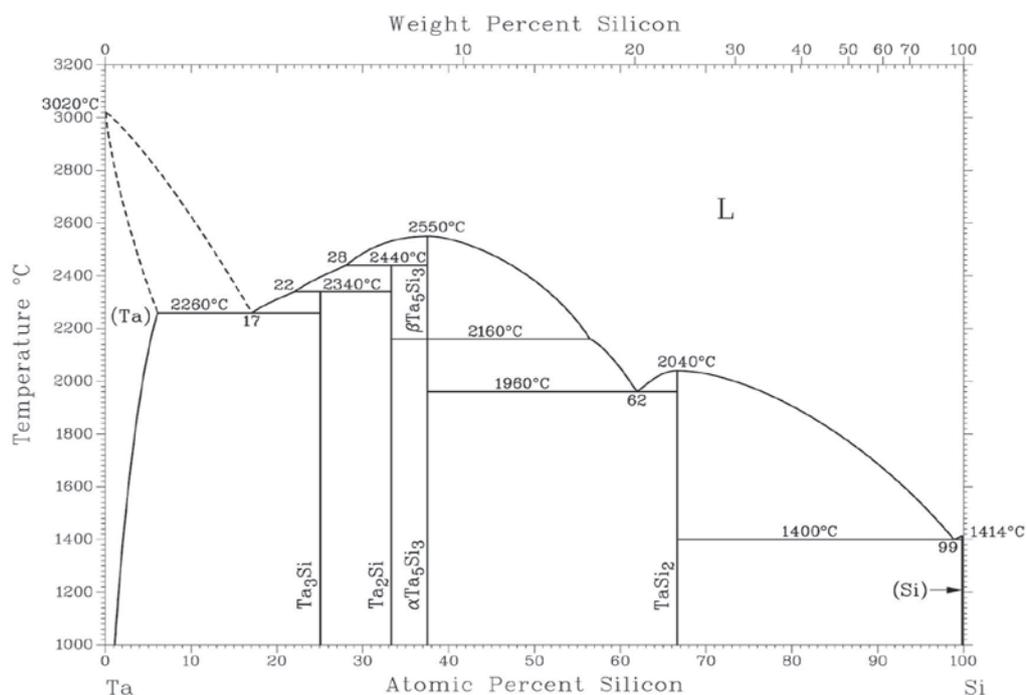


Figura 1 - Diagrama de fases Ta-Si atualmente aceito. Adaptado de SCHLESINGER<sup>(4)</sup>.

Foi alvo do estudo deste trabalho a determinação da composição do líquido peritético na formação peritética da fase Ta<sub>2</sub>Si, cujo valor atualmente aceito é 28 %at. Si, e na transformação eutética envolvendo as fases αTa<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>, TaSi<sub>2</sub> e Líquido.

## 2. Materiais e Métodos

As amostras foram preparadas a partir de Ta em chapas (pureza mínima de 99,9% em peso) e Si em pedaços (pureza mínima de 99,9999% em peso). As matérias-primas foram pesadas em balança analítica com precisão de 0,1 mg, e fundidas em forno a arco

com cadinho de cobre eletrolítico refrigerado a água e eletrodo não consumível de tungstênio, sob atmosfera de argônio. Antes das fusões, foram feitas duas limpezas da câmara do forno (purga) pelo sistema de vácuo primário (~ 2 Pa) e injeção de argônio (~ 90 kPa). Cada liga foi submetida a pelo menos quatro etapas de fusão para garantir que sua composição final fosse homogênea. Antes de cada etapa de fusão, um pedaço de Ti puro (“getter”) foi fundido para a remoção de vapores d’água, oxigênio e nitrogênio residuais do argônio eventualmente presentes na atmosfera do forno. As massas das amostras foram medidas para verificação das possíveis perdas durante as etapas de fusão.

Para análise por microscopia, as amostras seguiram a seguinte rota de preparação metalográfica: embutimento a quente (150°C) com resina fenólica; lixamento gradual com lixas à base de SiC na seqüência granulométrica #600, #1000 e #2000; polimento final com suspensão de sílica coloidal (OP-S); e limpeza das amostras por 10 minutos em ultrassom com água. A técnica de EDS não pôde ser utilizada para a identificação das fases, devido à proximidade dos valores da energia das radiações medidas para os elementos Ta e Si. Com isso a técnica de difratometria de raios X foi utilizada para identificar as fases presentes nas microestruturas. Usando imagens obtidas por elétrons retro-espalhados, as fases foram

identificadas de acordo com os tons de cinza correspondendo ao número atômico médio.

Para os experimentos de difratometria de raios X as ligas foram quebradas em pilão de aço e o pó foi moído em gral de ágata até passar em sua totalidade por uma peneira de abertura 325 MESH (44  $\mu\text{m}$ ). Um imã foi utilizado para retirar do pó as possíveis partículas de ferro provenientes do pilão. Os experimentos foram realizados utilizando radiação  $\text{CuK}\alpha$ , com ângulo variando de 10 a 90°, passo angular de 0,05° e tempo de contagem de 1 segundo por passo. As fases foram identificadas com o auxílio do programa Powder Cell <sup>(5)</sup>, usando as informações cristalográficas reportadas em Villars e Calvert <sup>(6)</sup>.

### 3. Resultados e Discussão

As informações de composição, perda de massa na fusão e fases encontradas por difratometria de raios X são apresentadas na Tabela 1.

**Tabela 1** - Informações das ligas preparadas.

Identificação	%at. Si Planejado	%at. Si Pesada	%at. Si Nominal*	Fases Identificadas por DRX [Fração Volumétrica Aproximada] <sup>(6)</sup>	
Ta31Si	30,00	32,05	31,00	Ta <sub>2</sub> Si [81%]	Ta <sub>3</sub> Si [19%]
Ta32Si	32,00	33,95	32,03	Ta <sub>2</sub> Si [97%]	$\alpha$ Ta <sub>5</sub> Si <sub>3</sub> [03%]
Ta60Si	60,00	60,85	60,00	$\alpha$ Ta <sub>5</sub> Si <sub>3</sub> [22%]	TaSi <sub>2</sub> [78%]
Ta62Si	62,00	62,77	62,25	$\alpha$ Ta <sub>5</sub> Si <sub>3</sub> [14%]	TaSi <sub>2</sub> [86%]
Ta64Si	64,00	64,71	64,33	$\alpha$ Ta <sub>5</sub> Si <sub>3</sub> [06%]	TaSi <sub>2</sub> [94%]

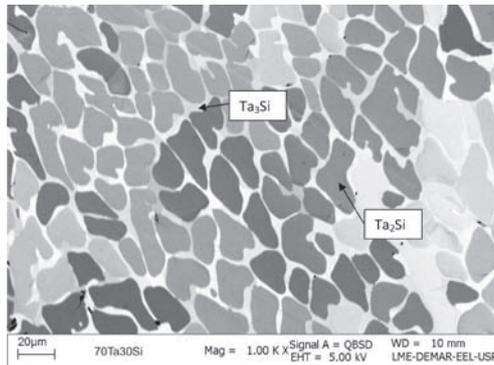
\*Atribuindo toda perda de massa ao silício.

A amostra Ta31Si (Fig. 2) apresenta em sua microestrutura precipitados primários da fase Ta<sub>2</sub>Si (escura) em uma matriz de Ta<sub>3</sub>Si (clara). A presença dessas fases foi determinada utilizando análises de difratometria de raios X. De acordo com o diagrama de fases atualmente aceito, para ligas no estado bruto de fusão com teores atômicos de silício a partir de 28%, espera-se encontrar precipitados primários da fase com estequiometria Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> envolvidos por Ta<sub>2</sub>Si, em uma microestrutura típica de transformação peritética. No entanto, nestas amostras não há evidência da presença da fase de estequiometria Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>, seja a modificação de baixa ( $\alpha$ ) ou de alta temperatura ( $\beta$ ). As amostras durante a solidificação não entraram no

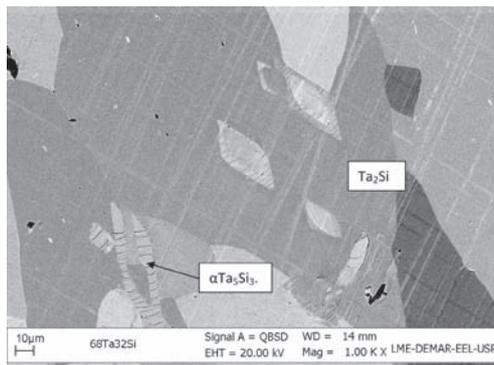
campo L+ $\beta$ Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>. Por outro lado, a microestrutura esperada ser formada na reação peritética é observada na amostra Ta32Si (Fig. 3). Esse resultado indica que a composição do líquido peritético de formação da fase Ta<sub>2</sub>Si está compreendida entre 31 %at. Si e 32 %at. Si.

A amostra Ta60Si (Fig. 4) apresenta em sua microestrutura precipitados primários da fase  $\alpha$ Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> e regiões de microestrutura eutética formada  $\alpha$ Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> e TaSi<sub>2</sub>. Na amostra Ta62Si (Fig. 5) observa-se que a estrutura eutética lamelar é predominante na microestrutura, evidenciando que a composição do líquido eutético deve estar próxima de 62 %at. Si. As pequenas regiões alongadas, isentas de lamelas de  $\alpha$ Ta<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> correspondem aos precipi-

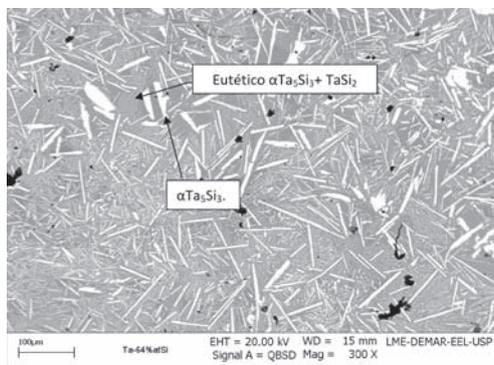
tados primários de  $TaSi_2$ . Na amostra Ta64Si (Fig. 6) observa-se precipitados primários de  $TaSi_2$  (fase escura) e regiões eutéticas lamelares onde a fase lamelar clara corresponde a  $\alpha Ta_5Si_3$ . Pode-se observar também uma diferença de tonalidade entre os precipitados primários. Isso se deve à diferença de orientação cristalográfica entre os grãos do material. Os resultados confirmam a composição do líquido eutético em aproximadamente 62%at. Si.



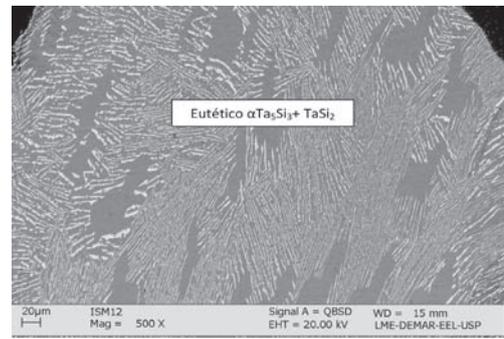
**Figura 2:** Micrografia da liga Ta31Si (composição nominal) obtida via Microscopia Eletrônica de Varredura no modo retroespalhados.



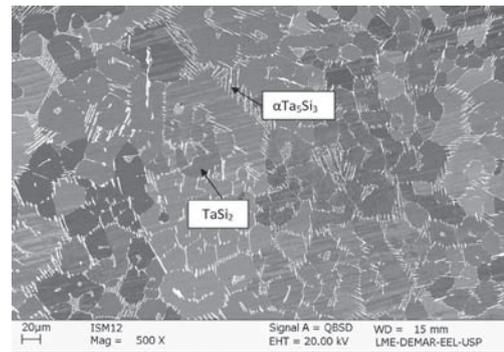
**Figura 3:** Micrografia da liga Ta32Si obtida via Microscopia Eletrônica de Varredura no modo retroespalhados.



**Figura 4:** Micrografia da liga Ta60Si obtida via Microscopia Eletrônica de Varredura no modo retroespalhados.



**Figura 5:** Micrografia da liga Ta62Si obtida via Microscopia Eletrônica de Varredura no modo retroespalhados



**Figura 6:** Micrografia das ligas Ta64Si obtida via Microscopia Eletrônica de Varredura no modo retroespalhados.

## 4. Conclusão

Pode-se concluir que os objetivos propostos no trabalho foram atingidos. O aluno de mestrado foi introduzido às técnicas de preparação das ligas e de caracterização de materiais. As ligas foram confeccionadas e preparadas metalograficamente com sucesso. Os resultados da análise microestrutural das amostras sugerem existir leves divergências entre as microestruturas observadas e aquelas esperadas segundo o diagrama de fases binário do sistema Ta-Si atualmente aceito. As microestruturas das amostras Ta30Si e Ta32Si indicam que o líquido que participa da reação peritética de formação de  $Ta_2Si$  tem sua composição entre 31 %at. Si e 32 %at. Si. A composição do líquido na transformação eutética envolvendo as fases  $\alpha Ta_5Si_3$ ,  $TaSi_2$  e líquido foi confirmada estar próxima de 62%at.

## 5. Agradecimentos

Os autores agradecem ao Centro Universitário de Volta Redonda - UNIFOA e a Escola de Engenharia de Lorena - EEL pela utilização dos laboratórios de suas dependências.

## 6. Referências

1. BALDAN, R.; FARIA, M.I.S.T.; NUNES, C.A.; COELHO, G.C.; CHAD, V.M.; AVILLES, R.R. Microstructural Evidence of  $\beta\text{Co}_2\text{Si}$ -Phase Stability in the Co-Si System. **Journal of Phase Equilibria and Difusion**, v. 29, n.6, p 477-481, 2008.
2. CHAD, V.M.; FARIA, M.I.S.T.; COELHO, G.C.; NUNES, C.A.; SUZUKI, P.A. Microstructural Characterization of As-cast Cr-Si Alloys **Materials Characterization**, v. 59, p 74-78, 2008.
3. NUNES, C.A.; COELHO, G.C.; RAMOS, A.S. On the Invariant Reactions in the Mo-Rich Portion of the Mo-Si System, 2001. **Journal of Phase Equilibria**, v. 22, n. 5, p 556-559, 2001.
4. SCHLESINGER, M. E. The Si-Ta (Silicon-Tantalum) System. **Journal of Phase Equilibria**, v. 15, n.1, p. 90-95, 1994.
5. KRAUS, W.; NOLZE, G. **PowderCell for Windows (version 2.3)**. Berlin, Federal Institute for Materials Research and Testing, 1999.
6. VILLARS, P.; CALVERT, L.D. **Pearson's Handbook of Crystallographic Data for Intermetallic Phases**. 2<sup>a</sup> ed., USA: ASM International, 1991.

---

**Endereço para Correspondência:**

Maria Ismenia Sodero Toledo Faria

*mismenia@uol.com.br*

Centro Universitário de Volta Redonda – UniFOA

Av. Paulo Erlei Alves Abrantes, nº1325

Três Poços - Volta Redonda - RJ

CEP: 27240-560