



Université BADJI-Mokhtar
Métallurgie et science des matériaux

Aix-Marseille Université
ECOLE DOCTORALE 352

THESE EN COTUTELLE INTERNATIONALE

Présentée par :

Hadjer SOLTANI

Pour obtenir le grade de Docteur :

Spécialité : Ingénierie des matériaux et des surfaces

Université BADJI Mokhtar (Algérie)

&

Spécialité : Matière condensée et nanosciences

Aix-Marseille Université (France)

Analyse in situ par radiographie X du développement de grains dendritiques dans un gradient de température

Soutenue le 17 décembre 2020 devant le jury composé de :

Dr. Kader ZAIDAT	SIMAP, INP-Grenoble France	(Rapporteur)
Pr. Lakhdar HACHANI	Université Amar Telidji, Laghouat, Algérie	(Rapporteur)
Pr. Abdelaziz HIMOUR	Université BADJI-Mokhtar, Annaba, Algérie	(Examineur)
Dr. Myriam DUMONT	ENSAM Lille, France	(Examinatrice)
Pr. Moussa ZAHZOUH	Université BADJI-Mokhtar, Annaba, Algérie	(Encadrant)
Pr. Henri NGUYEN THI	Aix-Marseille Université, France	(Encadrant)
Pr. M. Chérif BENOUDIA	ENSMM, Annaba, Algérie	(Invité)
Dr. Guillaume REINHART	Aix-Marseille Université, France	(Invité)

من لم يتحمل ذل التعلم ساعة بقي في ذل الجهل ابدا.
أصمعي

Ceux qui ne pouvaient pas tolérer l'apprentissage d'une
heure, resteraient dans l'ignorance toute la vie.
Asmaai

Those who could not tolerate learning an hour, would
remain in the dark all the life.
Asmaai

Remerciements

Je remercie en premier mes encadrants en France, Henri NGUYEN THI et Guillaume REINHART, qui ont fait preuve d'une grande disponibilité pendant toute la durée de ce travail de thèse. C'est auprès d'eux que j'ai acquis l'ensemble des connaissances scientifiques et la rigueur nécessaire. Je les remercie pour leur patience et leur gentillesse et surtout pour leur aide considérable lors de la rédaction de mon manuscrit. Tous leurs conseils vont rester gravés dans ma mémoire et je les utiliserai certainement dans la suite de mon parcours scientifique. Ce sont des exemples de «bons chercheurs», que je vais essayer de suivre.

J'adresse mes sincères remerciements aussi à mes encadrants en Algérie, Moussa ZAHZOUH et Mohamed Chérif BENOUDIA, pour leur aide inconditionnelle à l'établissement de la cotutelle entre l'université BADJI Mokhtar et Aix-Marseille Université. Je les remercie pour leur conseils scientifiques et relationnels qui m'ont beaucoup aidée. Ainsi je les remercie énormément pour leur aide considérable pour accomplir la procédure de ma soutenance.

Je voudrais vivement remercier les Dr. Kader ZAIDAT, Pr. Lakhdar HACHANI, Dr. Myriam DUMONT et Pr. Abdelaziz HIMOUR d'avoir accepté deux fois de participer à mon jury de thèse. L'évaluation de mon travail par ces excellents scientifiques du domaine des matériaux est un honneur.

Je remercie l'état Algérien qui m'a donné l'opportunité de faire une thèse en cotutelle et qui a financé la majorité de mon séjour en France avec le programme Algéro-Français Profas B+. Je remercie également l'Université d'Aix-Marseille, ainsi que les professeurs Rachid BOUCHAKOUR et Jean-Luc AUTRAN, directeurs successifs du laboratoire IM2NP qui ont accepté d'établir cette cotutelle et de m'accueillir au sein de leur laboratoire.

Un grand merci à tous les membres de l'équipe MCA pour les moments conviviaux que j'ai vécus avec eux pendant mon séjour en France : Nathalie(s) MANGELINCK-NOËL et BERGEON, Fatima LISBOA-MOTA, Jean marc DEBIERRE, Gabrielle RÉGULA, Maïke BECKER, Samuel QUIRET, Ahmed Kaci BOUKELLAL, Hadjer OUADDAH, et Fabiola NGOMESSE.

Je remercie énormément Lara ABOU KHALIL pour son aide scientifique ainsi qu'humaine au début et durant ma thèse. Je remercie aussi les stagiaires de Master Lucas JULIEN et Thomas NICOLAÏ pour m'avoir aidé à faire des mesures qui se retrouvent dans des parties de cette thèse. Sans oublier les doctorants et les post-docs et les autres stagiaires que j'ai rencontré dans l'équipe : Yuze LI, Jorge PEREDA, Leonardo FERNANDES GOMES, Marcella GAUTE, Serge NEVES DIAS, Maxime TORRESE.

Je remercie les personnels administratifs des laboratoires IM2NP, L3M et LMGM et du département métallurgie d'Annaba pour leur aide et pour les échanges sur les différents sujets que j'ai discutés avec eux.

Enfin je remercie profondément toute ma famille (mes parents, mes sœurs et mes frères) et mes amis qui ont été toujours avec moi, qui m'ont soutenue et qui m'ont encouragée. Et pour finir, je remercie toutes les personnes qui m'ont aidée de près et de loin et que j'ai oublié de citer.

Chapitre I:

Généralités sur la solidification des alliages métalliques et les microstructures dendritiques

Introduction	3
I.1 Contexte et motivation de l'étude.....	4
I.1.1 Importance industrielle de la solidification	4
I.1.2 Solidification d'un alliage binaire dans un gradient de température.....	5
I.1.3 Objectifs de la thèse	6
I.2 Structure dendritique colonnaire	7
I.2.1 Surfusion de constitution	8
I.2.2 Analyse linéaire de Mullins et Sekerka.....	12
I.2.3 Croissance dendritique colonnaire.....	12
I.3 Structure dendritique équiaxe	15
I.3.1 Affinants pour les alliages à base d'aluminium	15
I.3.2 Rappels sur la théorie de la germination	17
I.3.3 Modèle de croissance hémisphérique	21
I.3.4 Interaction entre grains équiaxes.....	26
I.4 La transition colonnaire-équiaxe	28
I.4.1 Intérêt industriel de la transition colonnaire – équiaxe CET	28
I.4.2 Modèles de blocage mécanique.....	29
I.4.3 Modèles de blocage solutale.....	31
Conclusion.....	33
Références	34

Chapitre II:

Caractérisation in situ et en temps réel de la formation des microstructures équiaxes d'alliages métalliques par radiographie X

Introduction	39
II.1 Application de la radiographie X à l'étude de la solidification des alliages métalliques... 40	40
II.1.1 Les premières tentatives de radiographie X en laboratoire.....	40
II.1.2 Radiographie X par rayonnement synchrotron.....	42
II.1.3 Dispositifs de laboratoire modernes	43
II.2 Principe de la radiographie X.....	45
II.2.1 Absorption des rayons X.....	45
II.2.2 Calcul de la transmission à travers un échantillon	46
II.2.3 Calcul du contraste solide-liquide	48
II.3 Dispositif SFINX (<i>Solidification Furnace with IN-situ X-radiography</i>)	49
II.3.1 Échantillon et creuset.....	50
II.3.2 Four à gradient de température.....	52
II.3.3 Système de radiographie X.....	54
II.3.4 Traitement des images	55
II.4 Caractérisation du système d'imagerie.....	59
II.4.1 Grandissement	59
II.4.2 Flux de photons incident	62
II.4.3 Temps d'exposition	63
II.5 Détermination des paramètres de solidification	64
II.5.1 Détermination de la vitesse de déplacement du front de solidification.....	64
II.5.2 Gradient de température G dans l'échantillon	67
II.6 Outils de caractérisation de la structure de grains	68
II.6.1 Taille des grains	68
II.6.2 Mesure de l'allongement d'un grain	72
II.6.3 Mesure de l'orientation des grains par rapport au gradient de température	74
Conclusion.....	76
Références	77

Chapitre III:

Développement de la structure de grain lors de la solidification horizontale de l'alliage Al-20%pdsCu affiné dans un gradient de température.

Introduction	83
III.1 Description des expériences.....	84
III.1.1 Choix de l'alliage.....	84
III.1.2 Orientation du dispositif expérimental (solidification horizontale).....	85
III.1.3 Protocole expérimental.....	86
III.1.4 Plan d'expériences.....	90
III.2 Effet de la vitesse de solidification sur la structure de grains	94
III.2.1 Description de la dynamique de formation des microstructures de solidification.....	94
III.2.2 Effet de V sur la taille de grains	100
III.2.3 Effet de V sur la morphologie de grain.....	102
III.2.4 Discussion sur les effets de la vitesse de solidification sur la microstructure.....	106
III.3 Effet du gradient de température sur la structure de grain.....	112
III.3.1 Comparaison des microstructures pour des gradients de température différents. ...	112
III.3.2 Effet du gradient de température sur la distance de germination	115
III.3.3 Effet de G sur la taille des grains	116
III.3.4 Effet de G sur la morphologie des grains	119
III.3.5 Discussion sur les effets du gradient de température sur la microstructure.....	123
Conclusion.....	129
Références	131

Chapitre IV:

Influence de la gravité sur la dynamique de formation des grains dendritiques lors de la solidification dans un gradient de température

Introduction	135
IV.1 Effets de la gravité sur la formation de la microstructure de solidification	137
IV.1.1 La convection naturelle lors de la solidification verticale	137
IV.1.2 Sédimentation et flottaison du solide	140
IV.1.3 Effets mécaniques	142
IV.1.4 Pression hydrostatique.....	144
IV.2 Description des expériences.....	146
IV.2.1 Orientation du dispositif expérimental	146
IV.2.2 Paramètres de solidification appliqués	147
IV.3 Solidification vers le haut.....	151
IV.3.1 Description de la formation des microstructures de solidification	151
IV.3.2 Effet de la flottaison des grains sur la microstructure équiaxe de solidification	156
IV.3.3 Effet du gradient de température sur la structure de grains	163
IV.4 Solidification vers le bas.....	165
IV.4.1 Description des microstructures de solidification.....	165
IV.4.2 Effet des plumes sur la cinétique de croissance des dendrites.....	167
IV.4.3 Effet de la convection thermosolutale sur la structure des grains	171
Conclusion.....	177
Références	179

Conclusion générale.....	183
---------------------------------	------------

Nomenclature.....	189
--------------------------	------------

Introduction

La découverte des métaux remonte au VIII^{ème} millénaire avant J.C. et ceux-ci ont joué un rôle essentiel dans l'histoire de notre civilisation, de sorte que les anthropologues ont baptisé les périodes importantes par des noms de métaux tels que l'âge du cuivre, l'âge de bronze, etc. (Figure1). Initialement, l'homme a utilisé les métaux « purs », comme l'or, l'argent, le cuivre, mais il a découvert au fil de ses besoins que les alliages, qui sont la combinaison de métaux purs, avaient des propriétés bien plus intéressantes que les métaux dont ils sont constitués. Les premiers alliages qui ont été maîtrisés par l'homme sont le bronze (cuivre–étain) et le laiton (cuivre–zinc). Un alliage peut être aussi une combinaison entre un métal et un non-métal, comme le cas des aciers et des fontes qui sont un mélange de fer avec un pourcentage de carbone variant de 0 à 6,67 %pds. Le passage d'un acier ordinaire, sujet à l'oxydation (formation de rouille), à un acier inoxydable est réalisé simplement par un ajout d'un troisième élément (chrome). L'ajout de nickel et de molybdène améliore ensuite les propriétés mécaniques de l'alliage.

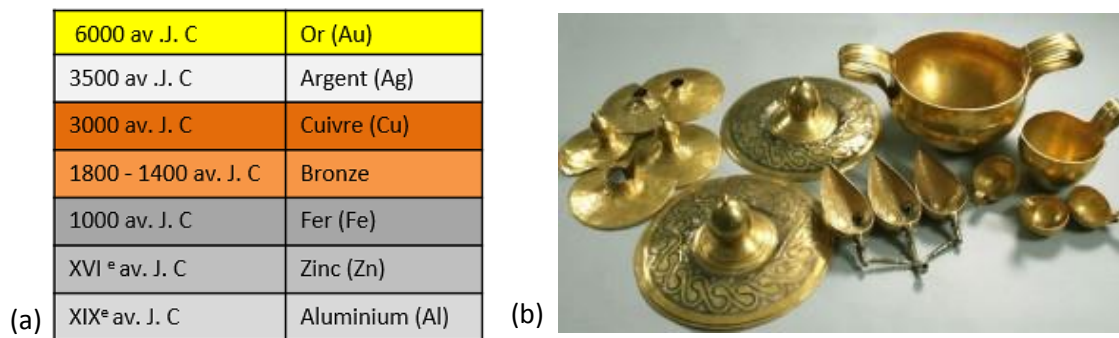


Figure1 : (a) Tableau indiquant les différents âges de la civilisation humaine et (b) Trésor de Varna (Bulgarie), Vème-IVème siècles avant J.C.

De nos jours, l'homme utilise un éventail beaucoup plus riche de matériaux (polymères, céramiques, composites) mais l'usage des métaux est encore prépondérant dans bien des domaines. Les métaux constituent la base de nombreux produits courants de consommation, allant des boîtes de boisson, nos téléphones portables, les moyens de transports (voiture, avion, train) et la grande majorité des appareils et des équipements.

La mise en forme des métaux passe en général par une étape de solidification, qui est la transformation au cours de laquelle le matériau passe d'un état liquide à un état solide. Lors de cette transformation, des microstructures de solidification vont se former spontanément et la distribution de ces microstructures en taille et en forme affecte les propriétés mécaniques, chimiques et électriques du matériau. Par exemple les microstructures qui sont constituées de grains colonnaires (c'est-à-dire orientés suivant une direction privilégiée) donnent des propriétés directionnelles aux matériaux, un critère essentiel pour la fabrication des aubes de turbine (Figure 2a) pour les moteurs d'avion. D'autre part, les microstructures constituées des grains équiaxes (c'est-à-dire croissant dans toutes les directions de l'espace, tels les flocons de neige) donnent des propriétés uniformes et isotropes aux matériaux, ce qui est demandé pour la fabrication des matériaux de structure comme les blocs moteur (Figure 2b). Comprendre le mécanisme de formation des microstructures au cours de la solidification est donc indispensable pour améliorer les propriétés des matériaux ainsi que les performances des pièces élaborées et aussi pour développer et optimiser les processus industriels.

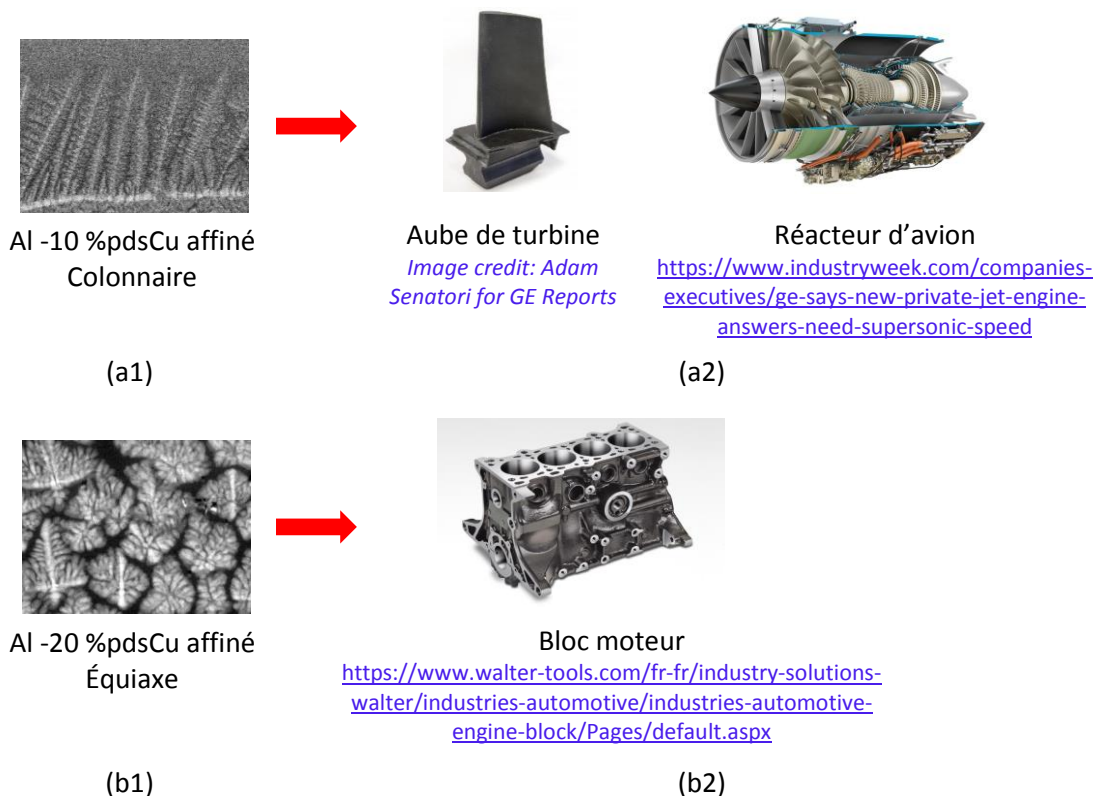


Figure 2: (a1) Microstructure colonnaire ; (a2) Aube de turbine utilisée dans un réacteur d'avion ; (b1) Microstructure équiaxe ; (b2) Bloc moteur

La solidification des alliages est un domaine où beaucoup de questions sont encore ouvertes à cause de la multiplicité des phénomènes qui ont lieu lors de cette transformation, tels que la germination, la croissance des microstructures et le développement de mouvements convectifs. En physique fondamentale la solidification est considérée comme un

exemple de formation spontanée de microstructures dans un système non-linéaire hors équilibre. Pour comprendre les mécanismes physiques mis en jeu lors de la formation des microstructures, la technique de solidification dirigée de type Bridgman est la plus utilisée car elle permet de contrôler indépendamment les principaux paramètres qui contrôlent la solidification : la composition chimique de l'alliage C_0 , le gradient de température G , la vitesse de refroidissement R et par conséquent la vitesse de solidification $V = R/G$. Suivant ces paramètres de contrôle, la microstructure de solidification formée présente différents types de morphologies, comme par exemple une structure cellulaire ou bien dendritique. L'étude de la formation des microstructures de solidification est un sujet qui date des années 1960. Avant les années 2000, la caractérisation des microstructures pour les alliages métalliques se faisait par une analyse métallographique *post-mortem*, sur une structure figée obtenue par une trempe effectuée en cours de solidification. Ce type d'analyse a porté ses fruits, et continue encore d'être utilisé, mais il ne permet pas d'accéder à la dynamique de formation des microstructures pendant laquelle des phénomènes transitoires ont lieu simultanément ou de façon couplée.

L'utilisation d'alliages organiques transparents (tel le succinonitrile) à bas point de fusion et présentant l'avantage d'être transparent à la lumière visible a permis l'observation *in situ* par un simple microscope optique de la formation des microstructures. Cependant l'analogie entre ces matériaux et les alliages métalliques n'est pas parfaite, principalement à cause de leur faible conductivité thermique comparée à celle des métaux. Avec la découverte des rayons X et le développement de détecteurs de plus en plus sensibles, l'étude *in situ* et en temps réel des alliages métalliques est devenu possible. L'observation par radiographie X de la solidification consiste à illuminer l'échantillon lors de sa solidification par un faisceau de rayon X dans une gamme d'énergie choisie en fonction de la composition chimique de l'alliage et l'épaisseur de l'échantillon étudié. Le rayonnement transmis à travers l'échantillon étudié est détecté par une caméra et le contraste dans les images enregistrées est dû à la différence d'absorption entre les différentes zones de l'échantillon, révélant les variations de composition ou les différentes phases de l'échantillon. La technique d'observation par radiographie X, appliquée à l'étude de la solidification de l'alliage Al-20pds%Cu, constitue le cœur de ce travail de thèse.

Ce manuscrit de thèse comporte quatre chapitres :

Le premier chapitre présente des généralités sur la solidification dirigée. Il donne les principales théories qui ont été mises en place pour décrire l'instabilité morphologique de l'interface solide/liquide, la germination et la croissance des microstructures. Dans ce chapitre nous aborderons aussi un phénomène très connu en solidification qui est la transition colonnaire-équiaxe (CET).

Le deuxième chapitre est consacré à la partie expérimentale où nous allons décrire en détail la technique de radiographie X, le dispositif expérimental SFINX (*Solidification Furnace with IN situ X-radiography*) utilisé pour ces travaux de recherche, le traitement des images que nous avons appliqué pour améliorer la visibilité des radiographies brutes, et enfin les méthodes de caractérisation de la microstructure.

Le troisième chapitre porte sur l'analyse de l'effet de deux paramètres de solidification sur la dynamique de formation de la structure de grains au cours de la solidification dirigée : la vitesse de solidification et le gradient de température. Les expériences ont été réalisées en configuration horizontale pour réduire au maximum l'influence de la gravité. Dans ce chapitre, nous montrerons d'abord que, pour un gradient de température fixe, l'augmentation de la vitesse de solidification permet d'obtenir une structure de grains de plus en plus uniforme en taille et en morphologie. Cependant, les résultats montrent un effet toujours présent du gradient de température sur le facteur d'allongement et sur l'orientation des grains.

Ensuite, nous montrerons que pour une vitesse de solidification fixe, l'augmentation du gradient de température rend les grains plus allongés et plus orientés, avec une structure finale plus compacte. Cependant, l'effet du gradient de température sur la taille de grains dépend de la gamme de vitesse de solidification. La taille de grains augmente (respectivement diminue) avec l'augmentation du gradient de température à faible (respectivement grande) vitesse de solidification. Ces observations seront discutées et en partie expliquées sur la base du modèle de croissance dendritique hémisphérique.

Le quatrième et dernier chapitre concerne l'étude des effets de la gravité (convection naturelle et poussée d'Archimède) sur la dynamique de formation des microstructures lors de la solidification en configuration verticale. Afin de mettre en évidence ces effets, nous avons réalisé des expériences de solidification verticale du bas vers le haut, quand la configuration est thermosolutalement stable mais avec un effet fort de la poussée d'Archimède sur les grains équiaxes, et des expériences de solidification verticale du haut vers le bas, quand la configuration est thermosolutalement instable ce qui est à l'origine d'une intense convection naturelle. La comparaison de ces expériences verticales avec les expériences faites avec les mêmes paramètres de solidification mais en configuration horizontale nous a permis de comprendre comment la flottaison des grains en solidification verticale vers le haut et la formation de plumes de soluté due à la convection thermosolutale en solidification verticale vers le bas affectent la structure de grains.

Enfin, une conclusion générale de ces travaux sera présentée et quelques perspectives pour ces travaux seront données.

Chapitre I:

Généralités sur la solidification des alliages métalliques et les microstructures dendritiques

Introduction	3
I.1 Contexte et motivation de l'étude.....	4
I.1.1 Importance industrielle de la solidification	4
I.1.2 Solidification d'un alliage binaire dans un gradient de température.....	5
I.1.3 Objectifs de la thèse	6
I.2 Structure dendritique colonnaire	7
I.2.1 Surfusion de constitution	8
I.2.2 Analyse linéaire de Mullins et Sekerka.....	12
I.2.3 Croissance dendritique colonnaire.....	12
I.3 Structure dendritique équiaxe	15
I.3.1 Affinants pour les alliages à base d'aluminium	15
I.3.2 Rappels sur la théorie de la germination	17
I.3.3 Modèle de croissance hémisphérique	21
I.3.4 Interaction entre grains équiaxes.....	26
I.4 La transition colonnaire-équiaxe	28
I.4.1 Intérêt industriel de la transition colonnaire – équiaxe CET	28
I.4.2 Modèles de blocage mécanique.....	29
I.4.3 Modèles de blocage solutale.....	31
Conclusion.....	33
Références	34

Introduction

La solidification est la transition d'une phase liquide vers une phase solide lorsque celle-ci est refroidie en dessous de sa température de fusion. Durant la solidification, de nombreux mécanismes physiques entrent en jeu, allant du réarrangement atomique jusqu'à la formation des microstructures. D'un point de vue industriel, la compréhension de la formation des microstructures de solidification est d'une importance cruciale pour contrôler les propriétés du matériau élaboré. Par exemple, un matériau présentant une structure de grain de type colonnaire ou allongée donne des propriétés mécaniques anisotropes ou directionnelles. En revanche, un matériau présentant une structure de grain de type équiaxe possède des propriétés mécaniques uniformes et isotropes. En plus de la structure de grain, les morphologies des dendrites déterminent les propriétés mécaniques par leur branchement et les microségrégations des espèces chimiques. Pour toutes ces raisons, la solidification est un sujet très important pour l'industrie.

La compréhension des mécanismes physiques intervenant lors de la solidification est cruciale pour la maîtrise des propriétés finales du matériau élaboré, ce qui a motivé ces travaux de recherche. Dans ce premier chapitre, une étude bibliographique sur le sujet est présentée, qui servira de base à l'analyse et l'interprétation des résultats expérimentaux. Plus précisément, nous présenterons les lois et les théories principales qui décrivent la solidification : instabilité de l'interface solide/liquide, germination et croissance, croissance d'une pointe de dendrite isolée, formation des microstructures colonnaire et équiaxe, et enfin la transition colonnaire – équiaxe ou CET (*Columnar-to-Equiaxed Transition* en anglais).

I.1 Contexte et motivation de l'étude

I.1.1 Importance industrielle de la solidification

La solidification est un phénomène dans lequel une phase liquide se transforme en phase solide. Ce phénomène joue un rôle de premier plan dans de nombreux procédés industriels comme la solidification directionnelle, la soudure (You et al. 2014), et les procédés de solidification rapide tels que l'atomisation (Fuqian et al. 2001). La Figure I-1 illustre quelques-uns des procédés de solidification couramment utilisés en industrie : (a) la coulée en lingot, (b) la coulée semi-continue ou continue, (c) la solidification dirigée et (d) la solidification de pièce dans des moules en sable. Ces procédés impliquent généralement une extraction de chaleur provenant de la phase liquide de façon plus ou moins contrôlée.

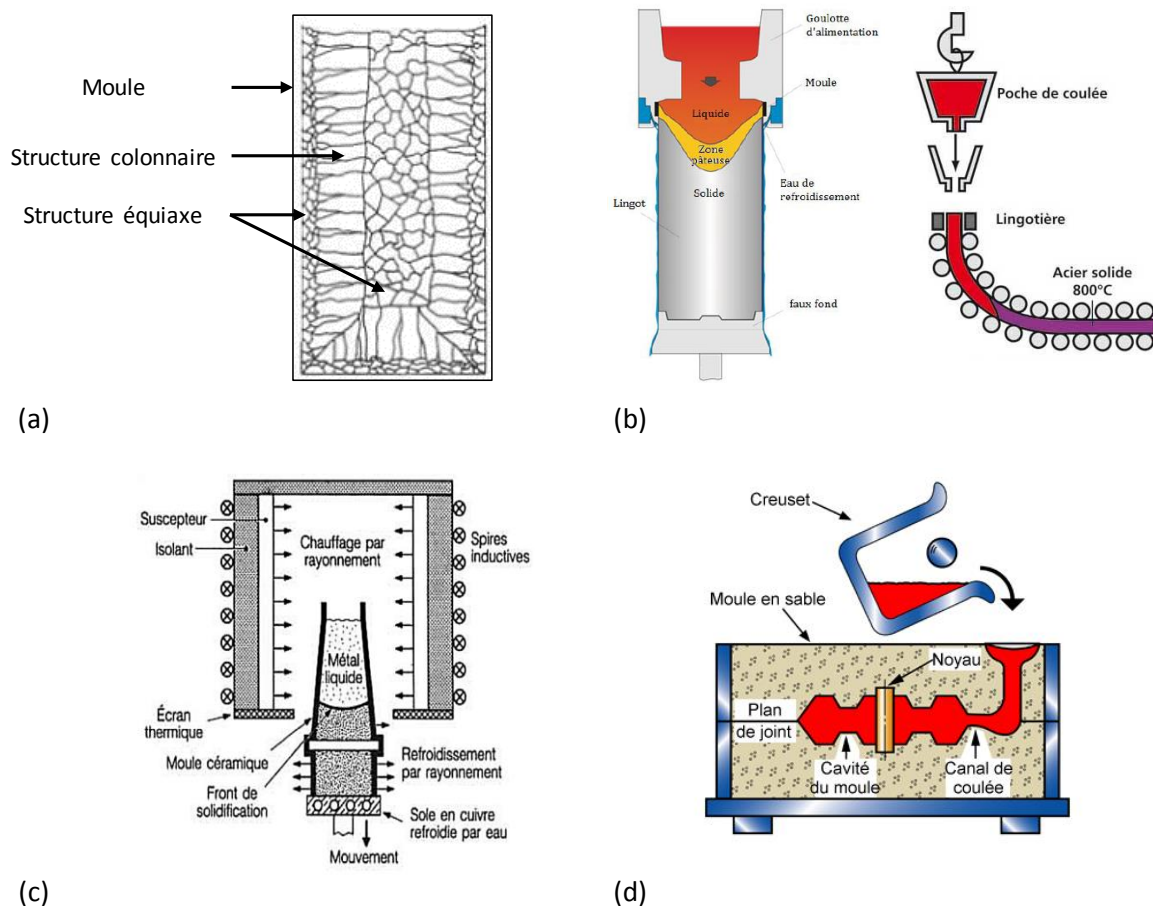


Figure I-1 : Exemples de procédés de solidification. (a) Coulée en lingot. (b) Coulée continue. (c) Solidification directionnelle. (d) Solidification de pièce dans un moule.

Lors de ces procédés de solidification, on distingue généralement deux types de morphologie de base : les structures colonnaires et les structures équiaxes (Figure I-1-a). Pour les structures colonnaires, les grains sont allongés et dirigés suivant la direction du gradient de température. Cette structure donne des propriétés directionnelles aux matériaux ce qui est recherchée dans certains cas comme les aubes de turbine. Pour les structures équiaxes,

les grains croissent sans orientation particulière ce qui donne des propriétés isotropes au matériaux, propriétés recherchées dans le cas des matériaux de structures. Dans la plupart des procédés industriels, aucune direction privilégiée n'est imposée concernant le flux de chaleur, mais localement la situation peut être équivalente à une solidification de type directionnelle due à la présence de gradients de température résiduels. Ceci justifie l'intérêt de réaliser des expériences modèles avec un gradient de température imposé comme dans les dispositifs de croissance de type Bridgman-Stockbarger.

Comprendre les mécanismes physiques mis en jeu lors de la solidification d'une pièce métallique permet de répondre à une double exigence des procédés industriels : améliorer la qualité et la productivité, tout en réduisant les délais de mise au point des prototypes. La solidification des métaux purs et des alliages nécessite la compréhension de nombreux principes fondamentaux issus de la thermodynamique, la cinétique de transformation de phase et les phénomènes de transport de chaleur et de matière. Améliorer l'étape de solidification permet non seulement d'obtenir des propriétés physiques et mécaniques optimales pour le matériau mais aussi de supprimer les défauts inhérents au procédé tels que :

- Macroségrégation et microsegrégation : répartition non homogène de la composition chimique dans la masse de la pièce.
- Porosités : les vides formés dans la masse de la pièce dues à la présence de gaz résiduel comme l'hydrogène dans le cas des alliages d'aluminium et l'oxygène dans le cas des aciers.
- Retassure : les vides formés dans la masse de la pièce dues au retrait du solide lors de la solidification.

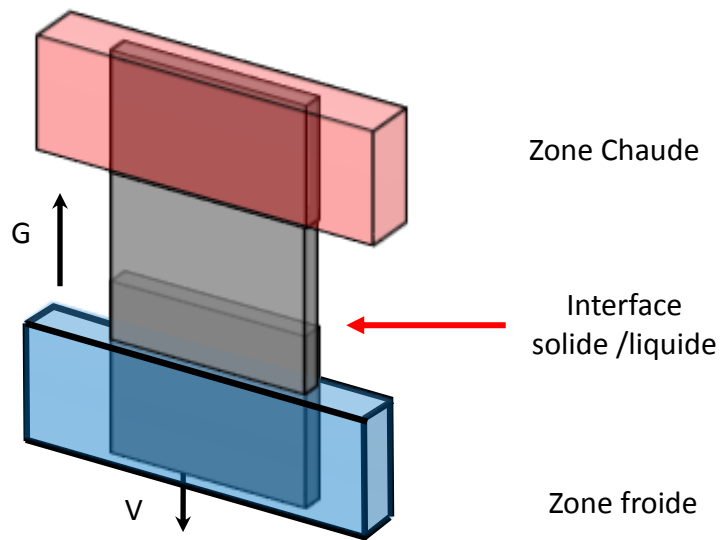
L'origine des défauts est directement liée aux structures qui se forment lors de la solidification.

1.1.2 Solidification d'un alliage binaire dans un gradient de température

Le principe de la solidification dirigée d'un alliage binaire est représenté sur la Figure I-2 : un échantillon de concentration initiale C_0 est placé dans un gradient de température G imposé par un four constitué de deux zones à des températures différentes. L'échantillon est dans l'état liquide à une extrémité et dans l'état solide à l'autre extrémité, avec une interface solide/liquide (s/l) séparant les deux phases. Pour solidifier l'échantillon, il y a deux méthodes possibles :

- La technique « Bridgman », qui consiste à déplacer l'échantillon de la région chaude vers la région froide à une vitesse constante V . Le front de solidification demeure stationnaire dans le gradient de température G .
- La technique « Stockbarger » ou « Power-down », qui consiste à diminuer la température des deux éléments chauffants avec le même taux de refroidissement R , ce qui permet de garder constant le gradient de température. Le front de solidification se déplace alors dans le sens du gradient thermique.

Figure I-2 : Schéma montrant le principe de la solidification dirigée d'un alliage binaire.



La solidification dirigée, indépendamment du procédé, est la technique de choix utilisée pour étudier les microstructures de solidification, parce qu'elle permet de contrôler indépendamment les trois paramètres principaux de croissance qui sont :

- La composition chimique nominale de l'échantillons C_0 ,
- Le gradient de température appliqué G ,
- Le taux de refroidissement R ou la vitesse de solidification V reliés entre eux par la relation : $R = GV$.

I.1.3 Objectifs de la thèse

Compte tenu de l'importance de la solidification des alliages métalliques dans l'industrie, il est indispensable de comprendre l'influence des paramètres de solidification qui affectent l'ensemble des phénomènes physiques mis en jeu au cours de la formation et la croissance sur les microstructures.

Au cours de ce travail de thèse, j'ai focalisé mon travail de recherche sur les points suivants :

- Observer *in situ* et en temps réel par radiographie X la formation et la croissance des microstructures dendritiques d'un alliage métallique à base d'aluminium lors de la solidification dans un gradient de température.
- Étudier indépendamment l'influence de la vitesse de solidification et du gradient de température imposés sur la taille et la morphologie de grains. Les expériences ont été réalisées d'abord avec un four en configuration horizontale. Cette configuration réduit les phénomènes liés à la gravité et permet de se rapprocher d'un régime diffusif.

- Des expériences ont ensuite été réalisées avec le même four en configuration verticale. Pour cette configuration les effets de la gravité tels que la poussée d'Archimède et les mouvements convectifs sont forts et impactent grandement le processus de solidification.
- La comparaison des résultats obtenus pour les deux configurations a permis de mettre en évidence les effets de la gravité sur la dynamique de la formation des microstructures dendritiques.

I.2 Structure dendritique colonnaire

Durant la solidification à très faible vitesse d'un alliage de composition nominale C_0 , dans un gradient de température fixe G , le front de solidification peut être plan (Figure I-3a et Figure I-4a) et la position de l'interface correspond à l'isotherme de solidification. Si on augmente la vitesse V au-delà d'une vitesse critique notée V_c , le front plan de solidification subit une instabilité morphologique et une structuration spatiale de l'interface apparaît de manière spontanée avec la formation de cellules (Figure I-3b et Figure I-4b) et de dendrites (Figure I-3c et Figure I-4c).

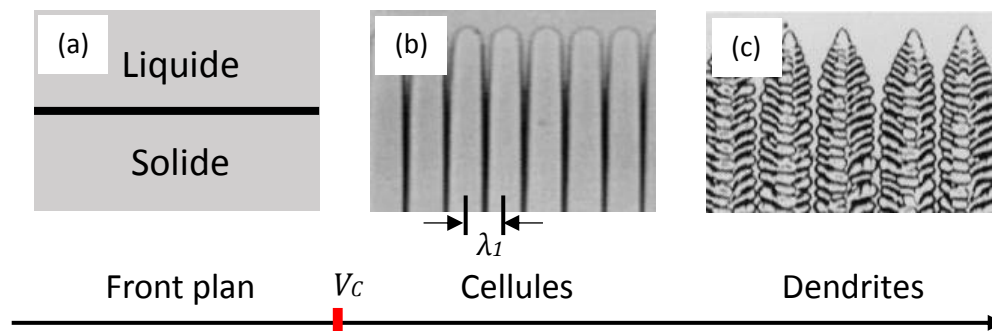


Figure I-3 : Morphologie de l'interface s/l durant la solidification dirigée d'un alliage binaire de succinonitrile et coumarin 152 (Losert, Shi, and Cummins, 1998). De gauche à droite avec l'augmentation de vitesse : (a) Interface plane. (b) Interface cellulaire (cellules profondes). (c) Régime dendritique.

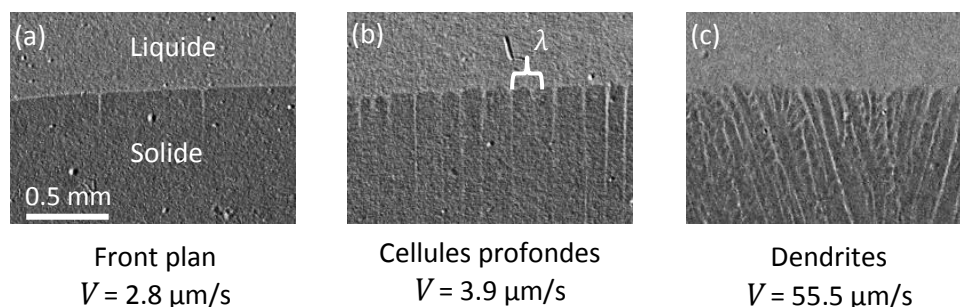


Figure I-4 : Morphologie de l'interface s/l durant la solidification dirigée d'un alliage Al-Zn dans un gradient de température fixe et une vitesse de solidification croissante.

Les cellules sont caractérisées par leur période ou espacement primaire λ_1 , qui est typiquement de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de micromètres. Pour les vitesses les plus élevées, les structures deviennent dendritiques suite à la formation de branches secondaires, caractérisées par un espacement secondaire λ_2 . Ces structures sont les plus couramment observées dans les processus industriels.

I.2.1 Surfusion de constitution

L'instabilité morphologique du front plan peut être expliquée par la notion de surfusion de constitution, qui a été introduite par J. W. Rutter et B. Chalmers (*Rutter and Chalmers, 1953*), sur la base de considérations purement thermodynamiques : le front plan est instable si le liquide adjacent à l'interface est lui-même thermodynamiquement instable, c'est-à-dire si sa température $T_L(z)$ est inférieure à la température d'équilibre $T_{eq}(z)$, qui dépend elle de la concentration du liquide. L'expression analytique, en solidification stationnaire du critère de surfusion de constitution a été établie par W. A. Tiller *et al.* (*Tiller et al. 1953*) et est décrite ci-après.

Dans le cas d'un alliage, la solubilité du solide C_S est généralement différente de celle du liquide C_L . On définit le coefficient de partage de l'alliage k à partir du diagramme de phase (Figure I-5) comme :

$$k = \left(\frac{C_S}{C_L} \right)_{Interface} \quad \text{Eq. I-1}$$

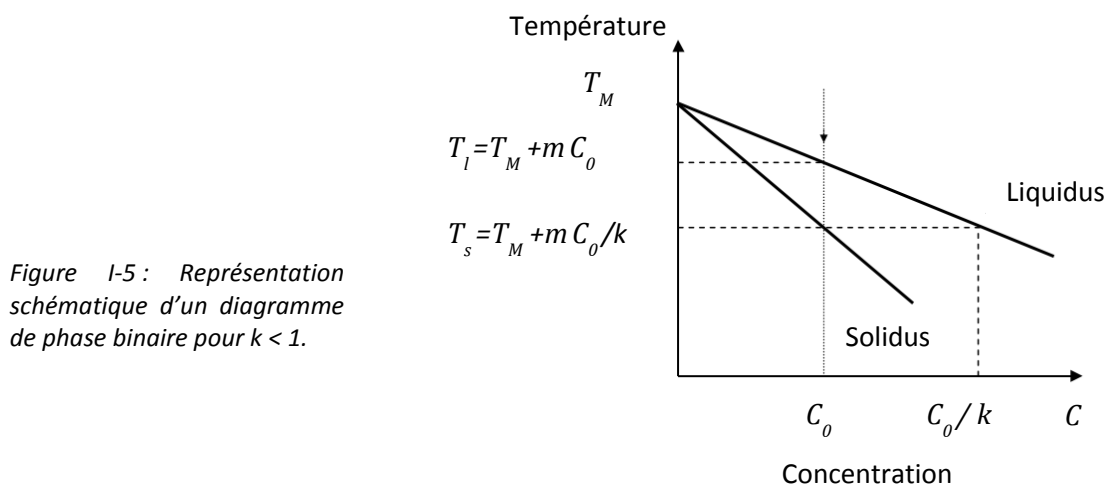


Figure I-5 : Représentation schématique d'un diagramme de phase binaire pour $k < 1$.

Dans les diagrammes de phase réels, les liquidus et solidus ne sont pas des droites comme dans la (Figure I-5). Par conséquent, le coefficient de partage et aussi la pente du liquidus dépendent de la composition de l'alliage. Le Tableau I-1 présente des exemples de valeurs du coefficient de partage pour l'alliage Aluminium-Cuivre hypoeutectique.

Tableau I-1 : Données du diagramme de phase pour trois compositions de l'alliage Al-Cu (T_l : température du liquidus, k : coefficient de partage et m : pente de liquidus).

Alliage	$T_M (C^\circ)$	k	m (K / %pdsCu)
Al-4%pdsCu	650	0.099	-2.66
Al-10%pdsCu	633	0.104	-2.83
Al-20%pdsCu	602	0.118	-3.41

Pour les alliages avec $k < 1$ (Figure I-5), cette différence de solubilité entre les phases liquide et solide implique qu'un excès de soluté va être continuellement rejeté dans le liquide lors du changement de phase. Le soluté en excès rejeté s'accumule devant l'interface pour former une couche appelée « couche solutale », dont le profil de concentration est exponentiel (Figure I-6).

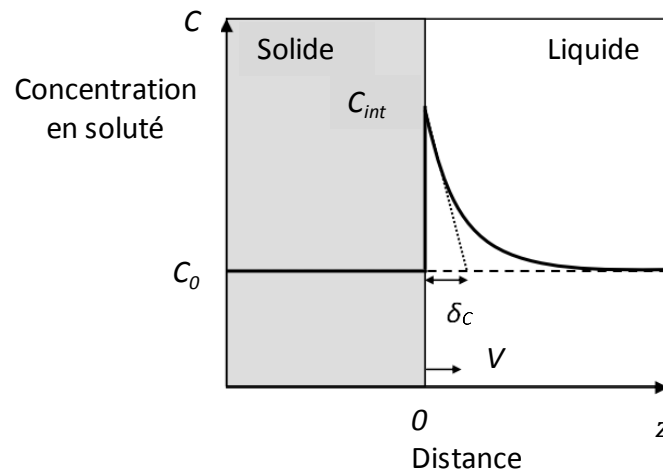


Figure I-6 : Profil de concentration du soluté devant une interface plane.

L'expression analytique du profil de concentration dans la phase liquide s'obtient en résolvant l'équation de diffusion de soluté dans le repère mobile du front de solidification. On montre que la concentration en soluté diminue exponentiellement avec la distance z , de la valeur $C_{int} = C_0/k$, concentration à l'interface, jusqu'à la composition loin de l'interface C_0 :

$$C_L(z) = C_0 \left[1 + \left(\frac{1-k}{k} \right) \exp \left(-\frac{V}{D_L} z \right) \right] \quad \text{Eq. I-2}$$

avec D_L le coefficient de diffusion du soluté dans le liquide et V la vitesse du front de solidification pour un front plan.

L'épaisseur de la couche solutale devant l'interface est caractérisée par la « longueur solutale » δ_c définie par :

$$\delta_c = \frac{D_L}{V} \quad \text{Eq I-3}$$

Typiquement, $D_L \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, $V \sim 10^{-5} \text{ m/s}$, ce qui donne une longueur solutale $\sim 100 \text{ }\mu\text{m}$.

À partir du diagramme de phase (Figure I-5), la température d'équilibre du liquide devant l'interface est décrite par la relation :

$$T_{eq}(z) = T_M + mC_L(z) \quad \text{Eq.I-4}$$

avec T_M la température de fusion du corps pur et m la pente du liquidus.

Dans les métaux, la diffusion thermique est beaucoup plus rapide que la diffusion solutale (typiquement 1 000 fois plus rapide). Par conséquent, le profil de température au voisinage du front est supposé identique au profil de température appliqué qui est linéaire. La température réelle du liquide est donc :

$$T_L(z) = T_M + m \frac{C_0}{k} + G \cdot z \quad \text{Eq. I-5}$$

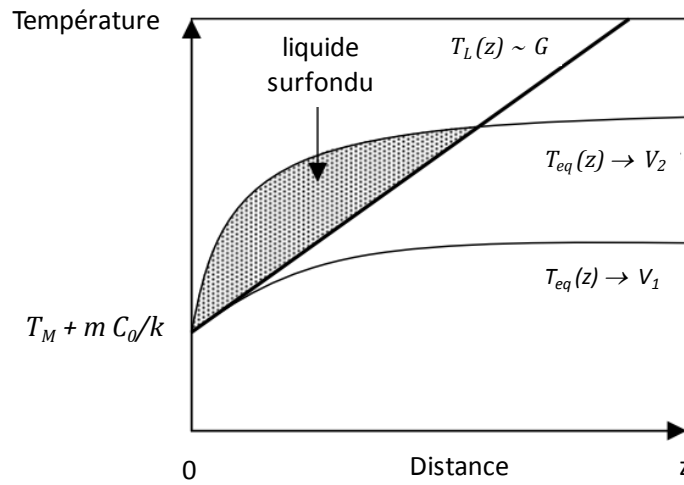


Figure I-7 : Profil de température à l'interface s/l. Le système peut rester dans des conditions stables (V_1) ou se retrouver en surfusion constitutionnelle (V_2).

La comparaison des deux profils de températures, température d'équilibre $T_{eq}(z)$ et température réelle du liquide $T_L(z)$, dans le même graphique (Figure I-7) montre deux cas possibles suivant la valeur de la vitesse de solidification.

- $V_1 < V_C$: La température d'équilibre du liquide $T_{eq}(z)$ est inférieure à la température réelle du liquide $T_L(z)$. Dans ce cas l'interface s/l est plane.
- $V_2 > V_C$: La température d'équilibre du liquide $T_{eq}(z)$ est plus grande que la température réelle du liquide $T_L(z)$. Dans ce cas l'interface s/l est instable.

Pour ce dernier cas, la Figure I-7 montre l'existence d'une zone de liquide surfondu devant l'interface. La comparaison des pentes au niveau de l'interface s'écrit :

$$\left. \frac{\partial T_L}{\partial z} \right|_{z=0} < \left. \frac{\partial T_{eq}}{\partial z} \right|_{z=0} \Rightarrow G < mG_C \quad \text{Eq. I-6}$$

Avec G_C le gradient de concentration dans le liquide à l'interface, qui se déduit aisément de l'équation I-2 :

$$G_C = \frac{VC_0(k-1)}{kD_L} \quad \text{Eq. I-7}$$

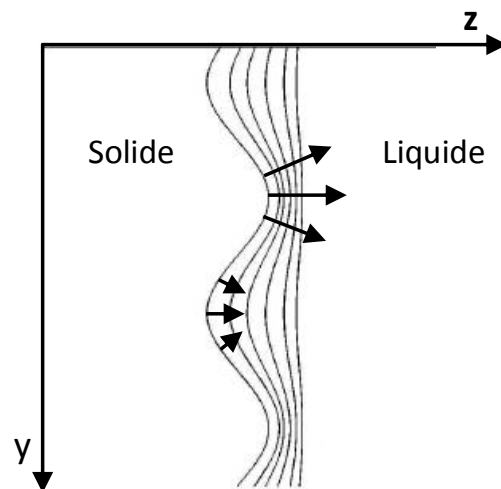
A gradient fixe G , un front plan sera instable pour des vitesses supérieures à une vitesse critique V_C qui a pour expression :

$$V_C = \frac{GD_L k}{mC_0(k-1)} \quad \text{Eq. I-8}$$

Physiquement, on peut expliquer cette instabilité du front plan en considérant le comportement des isoconcentrations au voisinage d'une perturbation du front plan. Devant une protubérance (ou « bosse »), les isoconcentrations se resserrent (Figure I-8) et le gradient de concentration en soluté augmente. Le soluté est donc plus facilement évacué et l'interface va avancer plus vite. L'amplitude de la protubérance augmente et celle-ci va donner naissance à une cellule. Ce raisonnement peut être appliqué pour les zones en retrait (ou « creux ») qui vont de plus en plus reculer.

Figure I-8 : Perturbations le long du front plan et leur effets sur le champ de concentration (compression ou dilatation des isoconcentrations).

Les flèches montrent la direction du flux du soluté.



Bien que le critère de surfusion de constitution soit basé sur un argument purement thermodynamique (condition d'équilibre du liquide devant le front de solidification) et que tout l'aspect dynamique de la solidification soit ignoré, son accord avec l'expérience est généralement satisfaisant.

Cette analyse met en évidence l'effet stabilisant du gradient de température G et l'effet déstabilisant du gradient de concentration G_C . Cependant, la surfusion de constitution ne donne aucune prédiction sur la taille (espacement primaire) ou sur la forme (cellule, dendrite) de la microstructure qui s'établira par la suite. De plus, un ingrédient important n'a pas été pris en compte par ce modèle qui est l'effet de la tension de surface.

I.2.2 Analyse linéaire de Mullins et Sekerka.

L'étude de la stabilité linéaire du front de solidification plan a été réalisée par Mullins et Sekerka (*Mullins and Sekerka, 1964*). Le principe de cette analyse est d'étudier le taux d'amplification $\sigma(\omega)$ d'une perturbation infinitésimale harmonique de vecteur d'onde $\omega = 2\pi/\lambda$ que l'on ajoute à la solution stationnaire. Dans notre cas, la solution stationnaire est donnée par le front plan, avec le profil de concentration $C_L(z)$ et la température d'équilibre $T_{eq}(z)$ donnés par les équations I-2 et I-4. Pour tout nombre d'onde donnée ω , si $\sigma(\omega)$ est positif, la perturbation s'amplifie et le front plan est instable. Si $\sigma(\omega)$ est négatif, la perturbation s'atténue et le front plan est stable.

Dans leur analyse, Mullins et Sekerka introduisent la tension interfaciale par la relation de Gibbs-Thomson, qui donne la température d'équilibre à l'interface T_{int} pour une interface courbe :

$$T_{int} = T_M + mC_L(y, z) - \Gamma\kappa^* \quad \text{Eq. I-9}$$

avec κ^* la courbure locale de l'interface et Γ le coefficient de Gibbs-Thomson :

$$\Gamma = \frac{\gamma T_M}{\rho L} \quad \text{Eq. I-10}$$

avec γ la tension de surface de l'alliage (en J/m²), ρ la masse volumique (en kg/m³) et L la chaleur latente de fusion par unité de masse (en J/kg).

Grace à leur analyse, Mullins et Sekerka affinent le critère de surfusion de constitution. Ils montrent en particulier l'effet stabilisant de la tension de surface. Ils obtiennent en plus la longueur d'onde au seuil d'instabilité.

$$\lambda_i = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{mG_c - G}} \quad \text{Eq. I-11}$$

Cette longueur d'onde servira par la suite dans les modèles décrivant la dynamique d'évolution de la pointe de la dendrite.

I.2.3 Croissance dendritique colonnaire

Les microstructures dendritiques colonnaires sont caractérisées par les longueurs suivantes (Figure I-9) :

- Le rayon de courbure au sommet de la pointe R_t ,
- L'espacement primaire λ_1
- L'espacement secondaire λ_2 .

Ces paramètres caractéristiques du réseau dendritique colonnaire dépendent évidemment de l'alliage, de sa composition C_0 , de la vitesse de croissance V et du gradient de température G . Le contrôle de ces paramètres est crucial parce qu'ils affectent la diffusion thermosolutale dans la zone pâteuse et la répartition de la microségrégation et donc finalement les propriétés mécaniques et chimiques des matériaux (Takaki et al. 2016), tels que la plasticité et la corrosion (Zhang et al. 2016).

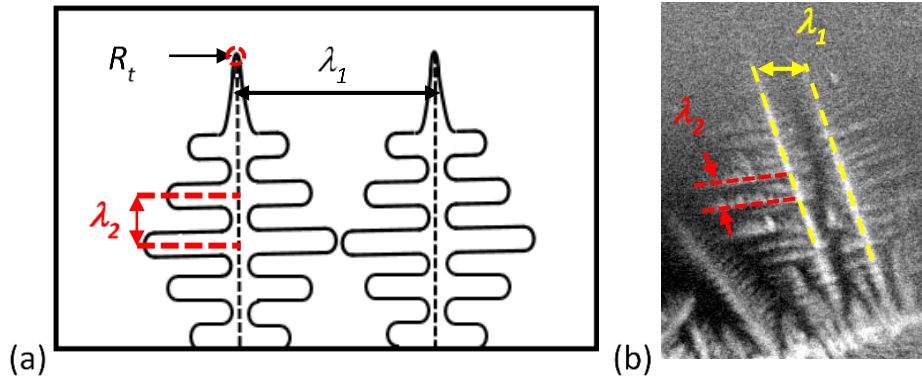


Figure I-9 : (a) Longueurs caractéristiques d'une dendrite colonnaire : R_t le rayon de courbure de la pointe. λ_1 l'espacement primaire et λ_2 l'espacement secondaire. (b) Image d'une structure dendritique colonnaire de l'alliage Al-10%PdsCu affiné ($G = 5.5 \text{ K/mm}$, $R = -0.1 \text{ K/s}$).

a) Rayon de courbure de la pointe

En adaptant les équations de la stabilité marginale au cas de la croissance dirigée, il a été montré que le rayon de courbure de la pointe R_t est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde λ_i d'une perturbation d'un front plan croissant dans les mêmes conditions que la pointe (Trivedi, 1980) (Kurz and Fisher, 1981)(Trivedi, 1984)(Kurz et al. 1986).

$$R_t \sim \lambda_i = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{mG_c - G}} \quad \text{Eq. I-12}$$

b) Espacement primaire λ_1

Pour l'espacement primaire λ_1 , de nombreux modèles ont été développés. Par exemple, le modèle de S. Z. Lu et J. D. Hunt (Lu and Hunt, 1992) (Han and Trivedi, 1994) qui donne λ_1 par la relation:

$$\lambda_1 = 2.83 \left(mD_L \Gamma (k-1) \right)^{1/4} C_0^{1/4} V^{-1/4} G^{-1/2} \quad \text{Eq. I-13}$$

Un autre modèle est celui de W. Kurz et D. J. Fisher (Kurz and Fisher, 1981), avec pour expression de l'espacement primaire donnée par :

$$\lambda_1 = 4.3 \left(\frac{m(k-1)D_L \Gamma}{k^2} \right)^{1/4} C_0^{1/4} V^{-1/4} G^{-1/2} \quad \text{Eq. I-14}$$

Le point important est que les deux modèles donnent des relations qui ont les mêmes exposants pour les trois paramètres de contrôle (C_0 , G et V). Ils permettent ainsi d'expliquer la variation de l'espacement primaire λ_1 en fonction de la composition de l'alliage C_0 , la vitesse de croissance V (l'espacement primaire diminue avec la vitesse, (Figure I-10)) et le gradient de température G (l'espacement primaire augmente quand on diminue le gradient).

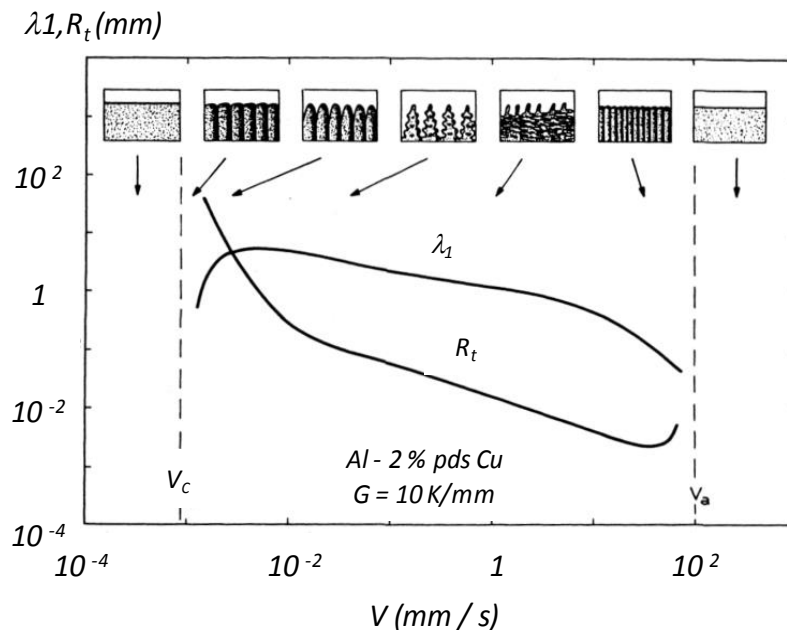


Figure I-10 : Variation du rayon de courbure R_t et de l'espacement primaire λ_1 en fonction de la vitesse de croissance V . V_c et V_a sur le graphe sont la vitesse critique et la vitesse absolue respectivement.

D'autres modèles ont été développés par la suite, en prenant en compte la convection, les effets non-linéaires, l'anisotropie de l'énergie de l'interface, la cinétique d'attachement des atomes, etc... (Dantzig and M.Rappaz, 2009).

c) Espacement secondaire λ_2

Le troisième paramètre caractéristique d'une structure dendritique est l'espacement secondaire λ_2 . Ce paramètre est important pour les applications industrielles parce qu'il a une influence directe sur la microségrégation. L'espacement secondaire λ_2 est affecté par le phénomène de murissement (Sharp and Hellawell, 1971), qui dépend du gradient de température dans la zone pâteuse et du temps local de solidification qui peut être estimé à partir de l'intervalle de solidification $t \sim \Delta T_0 / GV$ avec ΔT_0 la différence entre les températures du liquidus et du solidus.

A partir des travaux de Kattamis et Flemmings, Feurer et Wenderlin (Kurz and Fisher, 1984) ont établi un modèle qui permet de déterminer l'espacement secondaire final pour un alliage binaire.

L'espaceur secondaire varie comme :

$$\lambda_2 = 5.5(Mt)^{1/3} \quad \text{Eq. I-15}$$

avec M , le facteur de maturation, qui est une constante dépendant du système étudié.

D'autres approximations plus compliquées de la fonction de Kattamis et Flemmings ont été développées par exemple par G. B. Salas *et al.* , (Salas *et al.* 1995) et D. Kammer *et al.* (Kammer and Voorhees 2006). Le résultat remarquable de ces modèles est qu'ils ont trouvé le même exposant (1/3), ce qui fait que la relation de λ_2 donnée par Kattamis et Flemmings reste la plus utilisée vu sa simplicité.

I.3 Structure dendritique équiaxe

I.3.1 Affinants pour les alliages à base d'aluminium

La haute performance des pièces requiert des propriétés de résistance mécaniques élevées, ce qui peut être obtenue par l'affinement des microstructures, c'est-à-dire obtenir une structure fine, aux longueurs caractéristiques petites. La relation de Hall-Petch illustre l'augmentation de la résistance mécanique des matériaux en fonction de la taille des grains (Hall, 1951) (Petch, 1953).

$$\sigma_c = \sigma_0 + k'd^{-1/2} \quad \text{Eq. I-16}$$

avec σ_c la limite élastique, σ_0 et k' sont des constantes qui dépendent du matériau et d la taille des grains.

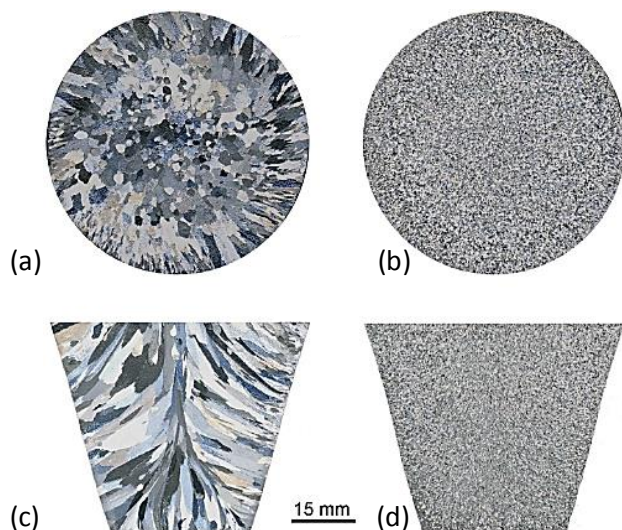
L'affinement de la taille des grains peut se faire par différentes méthodes tels que :

- Le contrôle des paramètres de solidification : vitesse de tirage ou de refroidissement et le gradient de température.
- Un brassage du bain fondu lors de la solidification (brassage mécanique ou par application d'un champ magnétique) : cette méthode permet de fragmenter les branchements primaires et secondaires des dendrites. Les fragments créés peuvent survivre et croître pour donner des nouveaux grains (Liotti *et al.* 2014).
- L'inoculation ou l'ajout de particules affinantes dans le bain fondu : ces affinants ou inoculants vont jouer le rôle de sites préférentiels de germination pour des nouveaux grains. Dans les processus industriels, la tendance actuelle est plutôt à l'inoculation.

Dans l'industrie de l'aluminium, l'ajout des affinants pour affiner la microstructure (Figure I-11) est un procédé très utilisé depuis les années 1930. Les particules affinantes doivent répondre à certaines contraintes tels que :

- Une compatibilité chimique avec le bain fondu.
- Un point de fusion plus élevé que le bain fondu.
- Insensible au phénomène de recalescence lors de la solidification.
- Un pouvoir de germination important à une faible surfusion.
- Dispersion homogène dans le métal liquide.
- Taille et densité compatible avec le bain fondu.
- Un mouillage facile entre l'affinant et le métal fondu.

Figure I-11 : (a) Section transversale d'un lingot d'aluminium de pureté commerciale non affiné. (b) section transversale d'un lingot d'aluminium de pureté commerciale affiné avec 0.2 % de Al-5Ti-1B. (c) section longitudinale d'un lingot d'aluminium de pureté commerciale non affiné. (d) section longitudinale d'un lingot d'aluminium de pureté commerciale affiné avec 0.2 % de Al-5Ti-1B. (Fan et al. 2015).



Les affinants les plus utilisés pour les alliages à base d'Al sont Al-Ti-B avec différents pourcentages de titane Ti et de bore B (Al-5Ti-1B, Al-3Ti-1B, et Al-1Ti-3B) (Greer et al. 2003). La présence de ces inoculants dans le métal en fusion donne lieu à la formation de différents composés comme des borures (TiB_2) et des intermétalliques ($TiAl_3$), qui vont être des centres de germination « faciles » pour des grains lors de la solidification. Il a été montré que la fine couche de $TiAl_3$ qui se forme sur les particules TiB_2 favorise la solidification du métal (Johnsson et al. 1993).

Il existe d'autres types d'affinants pour les alliages d'aluminium comme Al-Ti-C (Al-3Ti-0.15C), qui donne un résultat similaire à Al-Ti-B du point de vue de la taille des grains ; dans ce cas les centres de germinations seront des carbures de types TiC . Néanmoins, cet inoculant est peu utilisé par les industriels parce qu'il se dégrade aux cours du temps (en anglais « *Fading phenomenon* »).

I.3.2 Rappels sur la théorie de la germination

a) Germination homogène

La germination homogène est un modèle qui décrit la formation initiale d'un amas d'atomes appelé « cluster ou embryon » dans le liquide quand la température T de la phase liquide homogène est inférieure à sa température de fusion T_M .

En considérant le cas d'un embryon de forme sphérique, de rayon r , avec une surface supposée lisse, il est possible d'écrire la différence d'énergie libre ΔG du système entre l'état liquide avec et sans germe solide (Dantzig and Rappaz, 2009):

$$\Delta G = -\frac{4}{3}\pi r^3 \left(\frac{\rho L}{T_M} \Delta T \right) + 4\pi r^2 \gamma \quad \text{Eq. I-17}$$

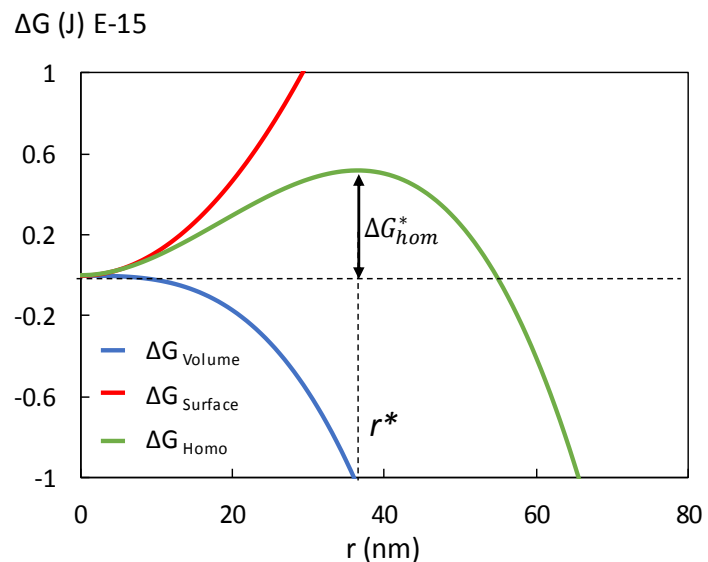
avec ρ la masse volumique, L chaleur latente de fusion par unité de masse, $\Delta T = |T - T_M|$ le sous-refroidissement, et γ l'énergie de surface.

La différence d'énergie libre du système ΔG se compose de deux termes :

- Une énergie volumique (1^{er} terme de droite), qui est toujours négative (Figure I-12), et qui est la force thermodynamique motrice conduisant à la formation du germe,
- Une énergie de surface (2^{ème} terme de droite), qui est toujours positive (Figure I-12), et qui exprime le fait que la création d'une surface « coûte » de l'énergie.

La différence de signe entre les deux termes montre la compétition entre les contributions volumique et surfacique. La barrière d'énergie libre du système lors de la germination homogène est illustrée par la courbe verte dans la Figure I-12.

Figure I-12 : Energie libre de la formation de surface, de volume et énergie totale de germination homogène d'un solide sphérique (cas de l'aluminium pur : $T^* = 9.12 \times 10^{-8} \text{ K.m}$; $\rho = 2,550 \times 10^3 \text{ g/m}^3$; $L = 388 \text{ J/g}$) et un sous-refroidissement $\Delta T = 5 \text{ K}$.



D'après le second principe de la Thermodynamique, le germe formé peut continuer de croître si $\Delta G < 0$, c'est-à-dire si son rayon r est supérieur au rayon critique r^* qui est donné par ($d\Delta G/dr = 0$). En injectant $\Gamma = \gamma T_M / \rho L$ le coefficient de Gibbs-Thomson, le rayon critique s'écrit :

$$r^* = \frac{2\Gamma}{\Delta T} \quad \text{Eq. I-18}$$

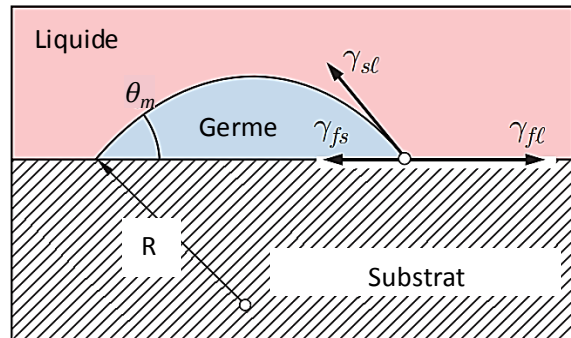
La barrière d'énergie libre pour la germination homogène est donnée par :

$$\Delta G_{hom}^* = \frac{16}{3} \pi \frac{\rho L \Gamma^3}{T_M} \frac{1}{\Delta T^2} \quad \text{Eq. I-19}$$

b) Germination hétérogène :

Dans les situations réelles, la germination des alliages est rarement, voire jamais, homogène : elle se produit de manière préférentielle sur les parois du moule, sur des impuretés ou sur les particules affinantes. Ce type de germination est dite « hétérogène ». Considérons le cas de la Figure I-13, avec l'hypothèse que le substrat est très grand devant le rayon de la calotte sphérique solide. On appelle θ_m l'angle entre la surface du substrat et l'interface solide-liquide (angle de mouillage).

Figure I-13 : (a) Germination d'une calotte sphérique solide sur une particule étrangère, θ_m est l'angle entre la surface s/l et la surface de la particule étrangère.



Dans ce cas, on peut montrer que le rayon critique r^* garde exactement la même expression que pour la germination homogène mais que la barrière énergétique à franchir ΔG_{hete}^* devient le produit de ΔG_{homo}^* par une fonction $f(\theta_m)$, compris entre [0-1], et qui est donné par l'Eq. I-20:

$$f(\theta_m) = \frac{(2 + \cos \theta_m)(1 - \cos \theta_m)^2}{4} \leq 1 \quad \text{Eq. I-20}$$

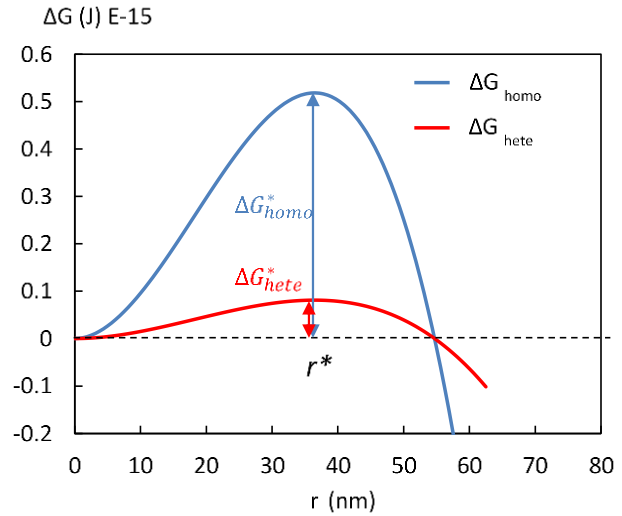
Soit :

$$\Delta G_{hete}^* = f(\theta_m) \Delta G_{homo}^* \quad \text{Eq. I-21}$$

La Figure I-14 montre ΔG_{homo} et ΔG_{hete} pour l'aluminium pur. On notera surtout un abaissement de la barrière de germination ΔG_{hete}^* grâce à la fonction $f(\theta_m)$.

Figure I-14. Figure montrant pour une surfusion $\Delta T = 5$ K, les différences d'énergie libre pour la germination de l'aluminium pur :

- courbe bleue : ΔG_{homo} germination homogène
- courbe rouge : germination hétérogène ΔG_{hete} (calculée avec un angle de mouillage $\theta_m = 60^\circ$).



Considérons 3 cas particuliers pour l'angle θ_m (Figure I-15) :

- $\theta_m = 0$ soit $f(\theta_m) = 0$: ce cas correspond au mouillage parfait. Il y a une compatibilité cristallographique parfaite entre le solide et le substrat, qui a lieu quand la phase liquide se solidifie sur une phase solide du même matériau. C'est par exemple le cas de la germination sur un fragment solide détaché.
- $\theta_m = \pi$ soit $f(\theta_m) = 1$: ce cas correspond au non mouillage du solide sur le substrat et on retrouve alors la solidification homogène.
- $\theta_m = \pi/2$ soit $f(\theta_m) = 0.5$: on a alors formation d'une calotte hémisphérique avec une barrière de germination divisée par un facteur 2.

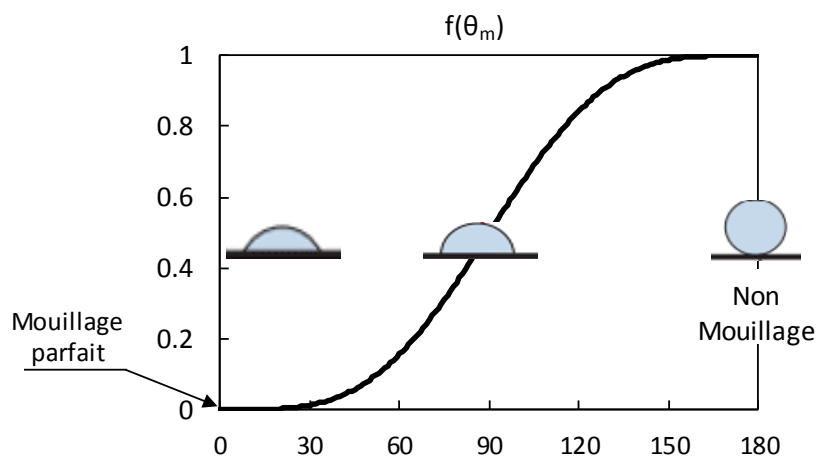


Figure I-15 : Illustration des trois cas particuliers pris pour l'angle de mouillage θ_m .

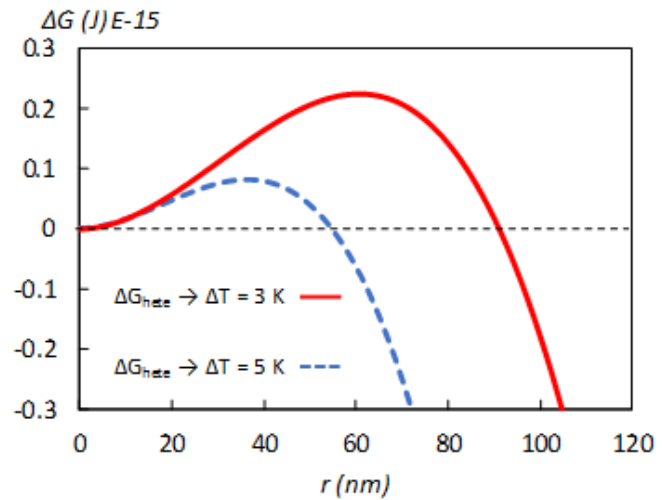
c) Effet de la surfusion du bain fondu sur la germination

La barrière énergétique ΔG^* dépend de la surfusion ΔT du bain fondu. Cette surfusion peut être d'origine thermique ou bien chimique comme démontré précédemment (I.2.1). Une augmentation du sous-refroidissement augmente la force motrice de germination (voir Eq. I-19), ce qui induit une diminution simultanée du rayon critique r^* et de la barrière énergétique ΔG^* (Figure I-16 pour le cas de la germination hétérogène de l'aluminium pur et un angle de mouillage de 60°). Dans cette figure, la différence d'énergie libre de germination hétérogène est tracée pour deux sous-refroidissements, $\Delta T = 3$ K (courbe en rouge) et $\Delta T = 5$ K (courbe en bleue pointillé).

Figure I-16 : Différence d'énergie libre dans le cas de la germination hétérogène pour un angle de mouillage $\theta_m = 60^\circ$.

- courbe rouge : surfusion $\Delta T = 3$ K.

- courbe bleue pointillé : surfusion $\Delta T = 5$ K.



d) Effet de la distribution en taille des affinants

Dans le cas d'un métal liquide affiné, toutes les particules n'ont pas la même taille. La Figure I-17a, montre la distribution en taille, qui est de type log-normale, des particules affinantes de TiB_2 (en bleu) (Greer et al. 2000) (Greer et al. 2003) et TiC (en rouge) (Tronche et al, 2003) pour un alliage d'aluminium, avec une forte densité de particules de petite taille et une queue correspondant aux affinants de grand diamètre. On peut noter que la distribution en taille des particules affinantes de type TiB_2 est plus large que celle de TiC .

Les particules ajoutées agissent en tant que sites de germination hétérogène. A. L. Greer (Greer et al. 2000) a développé un modèle afin de prédire la taille des grains après l'ajout d'inoculant lors de la solidification. Le modèle est basé sur le modèle de Maxwell et Hellawell (Maxwell and Hellawell, 1975) qui suppose qu'une particule affinant, de diamètre donné d_a , devient active lorsque la surfusion atteint la valeur critique ΔT_g donnée par Figure I-17b :

$$\Delta T_g = \frac{4\Gamma}{d_a} \quad \text{Eq. I-22}$$

L'équation précédente montre que les particules de grand diamètre vont germer en premier pour une petite surfusion du liquide. Augmenter la surfusion permet d'activer des particules affinant de taille de plus en plus petite (Figure I-17b).

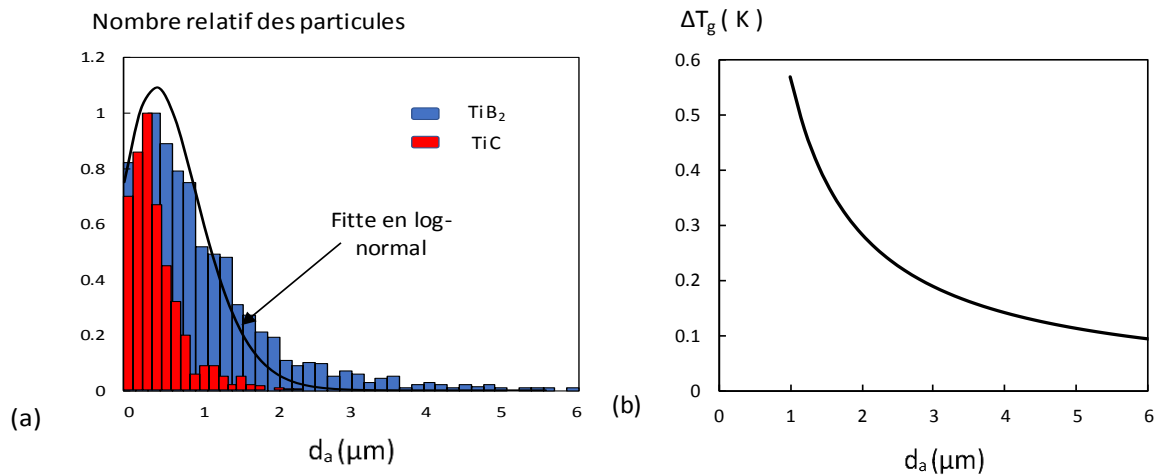


Figure I-17 : (a) Distribution en taille des particules affinites TiB_2 dans un affinant commerciale Al-5Ti-1B déterminée expérimentalement par (Greer et al. 2000) et Distribution en taille des particules affinites TiC dans un affinant Al-3Ti-0.15C-1Fe, déterminée expérimentalement par (Tronche et al, 2003); (b) Surfusion de germination en fonction de la taille des particules affinites pour un aluminium pur (Quested and Greer, 2004).

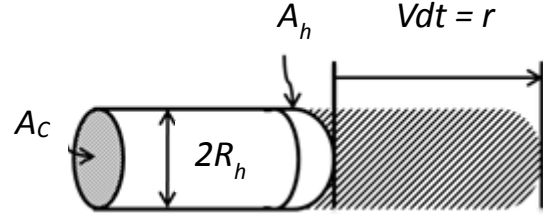
I.3.3 Modèle de croissance hémisphérique

Après la phase de germination, le nucleus ou embryon va croître dans la phase liquide, d'abord sous une forme sphérique et ensuite prendre une morphologie dendritique. Un point important est de déterminer une loi cinétique qui permet de relier la vitesse de croissance des pointes dendritiques au profil de composition dans le liquide et ainsi à la surfusion devant la pointe de la dendrite. Pour résoudre ce problème, il faut se donner une forme géométrique (parabole, hémisphère ou ellipse) proche de la forme au sommet de la dendrite.

Le paraboloïde de révolution est la forme qui décrit le mieux la pointe des dendrites en solidification. La première solution mathématique exacte au problème de la croissance d'un cristal en forme d'aiguille avec une pointe parabolique dans un liquide pur au repos et en surfusion thermique a été élaborée pour une tension de surface nulle par Ivantsov en 1947 (Ivantsov, 1947). Ce modèle a été ensuite transposé au cas de la croissance d'un alliage binaire pour lequel le soluté joue un rôle identique à celui de la température pour la dendrite libre. En effet, pour de grands nombres de Lewis $Le = D_{th}/D_L$, la croissance du solide est limitée par la diffusion du soluté qui est beaucoup plus lente que la diffusion de la chaleur dans les alliages métalliques.

Un modèle plus simple permettant la détermination analytique du profil de composition devant la pointe d'une dendrite est le modèle de « l'aiguille hémisphérique ». Dans ce modèle la pointe dendritique est représentée comme une aiguille composée d'un corps cylindrique de section $A_c = \pi R_h^2$ et se terminant par un hémisphère de surface $A_h = 2\pi R_h^2$ (Figure I-18).

Figure I-18 : Schéma de la croissance d'une pointe pour une dendrite en forme d'aiguille à pointe hémisphérique.



a) Profil de soluté dans le liquide devant la pointe

En absence de diffusion tangentielle, l'équation de diffusion de soluté dans la phase liquide devant un hémisphère s'écrit en coordonnées sphériques :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_L \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) \right] \quad \text{Eq. I-23}$$

En supposant la croissance stationnaire et en appliquant des conditions limites à l'équation précédente, le profil de concentration devant l'hémisphère s'écrit :

$$C(r) = C_0 + \frac{R_h}{r} (C^* - C_0) \quad \text{Eq. I-24}$$

Avec C^* la concentration à la pointe et R_h le rayon de l'hémisphère.

On peut noter que le profil de concentration devant une pointe de dendrite varie en $1/r$, à la différence de celui devant un front plan qui est de type exponentiel (Eq.1-2).

À partir du diagramme de phase, la température d'équilibre du liquide est décrite par la relation :

$$T_{eq}(z) = T_M + mC(r) = T_M + mC_0 + m \frac{R_h}{r} (C^* - C_0) \quad \text{Eq. I-25}$$

La connaissance complète de la température d'équilibre du liquide devant la pointe nécessite maintenant la détermination de C^* , la concentration à la pointe dans le liquide.

b) Relation sous-refroidissement - Péclet

Lors de la croissance, le cylindre et l'hémisphère qui composent l'aiguille créent deux flux de soluté J_1 et J_2 :

- Le flux J_1 est dû au rejet de soluté pendant le changement de phase liquide – solide :

$$J_1 = A_c V (C^* - C_s^*) \quad \text{Eq. I-26}$$

Avec C_s^* la concentration de soluté dans le solide à l'interface.

- Le flux J_2 est dû à la diffusion du soluté dans le liquide devant la pointe :

$$J_2 = -D_L A_h \left(\frac{dC}{dr} \right)_{r=R_h} \quad \text{Eq. I-27}$$

À l'état stationnaire, les deux flux sont égaux, ce qui donne :

$$V C^* (1 - k) = -2D_L \left(\frac{dC}{dr} \right)_{R_h} \quad \text{Eq. I-28}$$

Le gradient de concentration est calculé à partir de l'expression (Eq. I-24) et on obtient :

$$\frac{V R_h}{2D_L} = \frac{C^* - C_0}{C^* (1 - k)} \quad \text{Eq. I-29}$$

On remarque que :

- Le terme de gauche correspond au nombre de Péclet solutal P_c , qui est le rapport entre la dimension caractéristique R_h et la longueur de la couche solutale $\delta_c = 2D_L/V$ en symétrie sphérique.
- Le terme de droite correspond au sous-refroidissement solutal Ω_c .

On retrouve là une relation du type $\Omega_c = P_c$, équivalente à la relation d'Ivantsov pour le modèle parabolique $\Omega_c = Iv(P_c)$, avec $Iv(P_c)$ la fonction d'Ivantsov définie par :

$$Iv(P_c) = P_c \exp(P_c) E_1(P_c) \quad \text{Eq. I-30}$$

avec E_1 la fonction exponentielle intégrale : $E_1(P_c) = \int_{P_c}^{\infty} \frac{\exp(-z)}{z} dz$

Comme pour la solution d'Ivantsov, on trouve qu'il existe un continuum de couples (V, R_h) correspondant à un Péclet P_c donné pour la même concentration à la pointe de la dendrite C^* . Or les expériences suggèrent plutôt que les deux paramètres R_h et V sont uniques pour une surfusion donnée.

Un critère de sélection a été proposé par Langer et Müller-Krumbhaar (*Langer and Müller-Krumbhaar, 1977*), qui consiste à faire l'hypothèse que le rayon de la sphère est du même ordre que la plus petite longueur d'onde λ_i pour laquelle l'interface est instable dans le cas d'un front plan.

$$R_h \sim \lambda_i = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{mG_c - G}} \quad \text{Eq. I-31}$$

Cette approche est nommée la *stabilité marginale* et permet de lever l'indétermination sur la valeur du rayon de la pointe.

c) Loi cinétique de croissance

L'équation Eq. I-29 peut être modifiée en utilisant la relation reliant la surfusion et la concentration à la pointe $\Delta T = m_L(C_0 - C^*)$:

$$\frac{VR_h}{2D_L} = \frac{\Delta T}{mC^*(k-1)} \quad \text{Eq. I-32}$$

R_h est donné par l'équation Eq. I-31 avec les approximations:

- G le gradient thermique est supposé négligeable devant mG_c le gradient solutal.
- G_c est le gradient de concentration du front plan. Avec la concentration C^* à l'interface, kC^* à l'infini et une longueur de la couche solutal D_L/V on obtient : $G_c = \frac{V}{D_L} C^* (1 - k)$

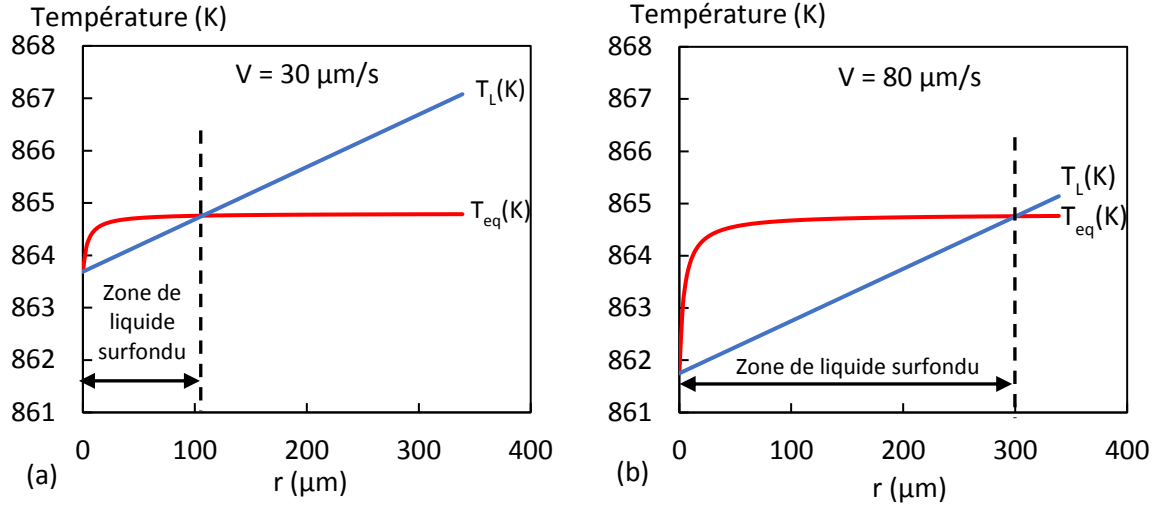
De plus, en faisant l'approximation que le nombre de Péclet est petit devant 1, la concentration à la pointe est supposée proche de la concentration nominale soit $C^* \sim C_0$.

Par conséquent, on peut exprimer la vitesse de croissance de la pointe de la dendrite V en fonction de la surfusion ΔT à la pointe :

$$V = \frac{D_L}{\Pi^2 m C_0 (k-1) \Gamma} \cdot \Delta T^2 \quad \text{Eq. I-33}$$

On peut remarquer la simplicité d'utilisation de cette relation, qui fait qu'elle est largement utilisée pour décrire la cinétique de croissance des pointes dendritiques. De plus, malgré sa simplicité, elle donne les bons ordres de grandeur, ce qui permet facilement mettre en évidence les tendances les plus importantes. Par exemple, la température de la pointe diminue quand la vitesse de la pointe augmente (Figure I-19).

Inversement, l'expression de la vitesse de croissance V en fonction de ΔT permet aussi de déterminer la concentration à la pointe C^* pour un V donné. On peut alors tracer le profil de température d'équilibre T_{eq} (Eq. I-25) et la comparer à la température réelle du liquide T_L imposé par le gradient de température. On peut finalement déterminer l'étendue de la zone de liquide surfondu devant la pointe pour laquelle $(T_{eq} - T_L) > 0$ comme représentée sur la Figure I-19.



d) Autres exemples de loi cinétique

D'autres approximations plus exactes mais plus compliquées de la fonction d'Ivantsov ont été établies, par exemple par Martorano *et al.* (Martorano *et al.*, 2003) :

$$V = \frac{4\sigma^* D_L m(k-1)C^*}{\Gamma} \left(I v^{-1}(\Omega) \right)^2 \quad \text{Eq. I-34}$$

Avec σ^* est la constante de stabilité ($\sigma^* \approx 1/4\pi^2$) et :

$$I v^{-1}(\Omega) \sim 0.4567 \left(\frac{\Omega}{1-\Omega} \right)^{1.195} \quad \text{Eq. I-35}$$

Ou aussi le modèle analytique donné par Dantzig et Rappaz (Dantzig and M.Rappaz, 2009) :

$$V = \frac{D_L}{5.51\pi^2(-m(1-k))^{1.5}\Gamma} \left(\frac{\Delta T^{2.5}}{C_0^{1.5}} \right) \quad \text{Eq. I-36}$$

Ces formules sont très utiles pour obtenir des valeurs plus précises de la surfusion à la pointe d'une dendrite. En revanche, elles ne permettent pas de tracer facilement le profil de surfusion dans le liquide. C'est pourquoi, dans la suite de cette thèse, j'utiliserai le modèle de la pointe hémisphérique, en particulier quand il faudra évaluer l'intensité de la surfusion de constitution dans le liquide pour la germination de grains sur des particules affinant.

I.3.4 Interaction entre grains équiaxes

Lors de la solidification réelle d'un alliage métallique affiné, un grand nombre de grains vont germer et croître. Les grains se forment dans le bain fondu en surfusion, c'est-à-dire dans un liquide à une température en dessous de sa température d'équilibre. Par conséquent, après une très courte phase initiale de croissance sphérique, la croissance se fait généralement de manière dendritique.

Il a été montré que, dans un liquide spatialement uniforme en température qui est refroidi de manière contrôlé, la croissance des grains dendritiques passe par deux régimes (Bogno et al. 2013) :

a) Croissance dendritique libre

Le régime de croissance libre accélérée correspond aux premiers stades de la croissance des grains, quand les grains dendritiques croissent librement, loin des grains voisins. Dans ces premiers instants de la solidification, le rejet de soluté devant la pointe de la dendrite enrichit progressivement la phase liquide autour du grain équiaxe, augmentant le sous-refroidissement et donc la vitesse de croissance.

b) Ralentissement de la croissance par interaction solutale

Le début du régime de ralentissement progressif correspond à la période où les branches de dendrites entrent en interaction. En effet, lorsque les deux branches sont suffisamment proches, leurs couches solutales commencent à se recouvrir et la composition entre les pointes de dendrites (entre les grains) augmente (Figure I-20), entraînant une diminution du sous-refroidissement ΔT qui induit une diminution de la vitesse de croissance. Ce mécanisme a été simulé par I. Steinbach et al. (Steinbach et al, 2005) pour l'interaction thermique entre deux bras de dendrite et confirmé expérimentalement par A. Bogno et al. (Bogno et al. 2013).

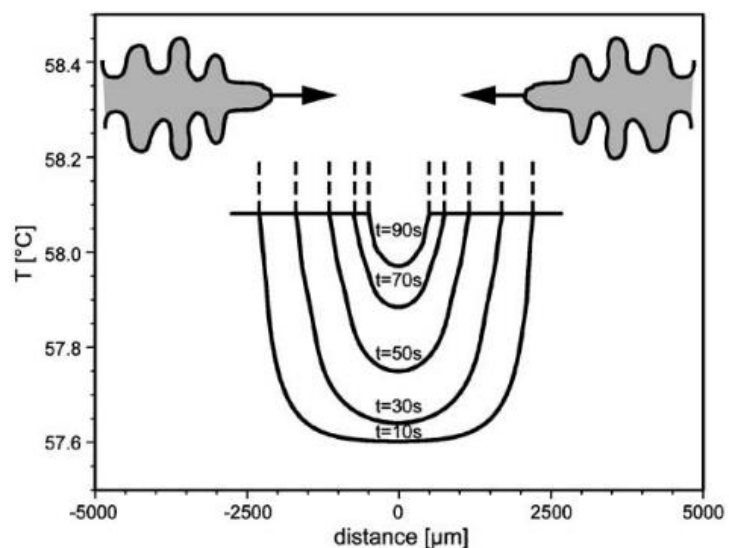


Figure I-20 : Schéma montrant la prédiction de la variation du profil thermique entre deux bras de deux grains équiaxes croissent l'un vers l'autre (Steinbach et al, 2005).

Les deux régime de croissance ont été caractérisés et quantifiés dans le cadre de la thèse de Bogno (*Bogno, 2011*) sur un alliage Al-10%*pds*Cu. La concentration dans le liquide entre deux bras dendritique (1 et 2 dans la Figure I-21a) qui croissent l'un vers l'autre en fonction du temps a été mesurée grâce à la radiographie-X synchrotron. La Figure I-21c montre que la composition loin de la pointe de dendrite reste constante et très proche de la composition nominale de 10%*pds*Cu, du début de la croissance jusqu'à $t = 1560$ s. Cet intervalle pendant lequel la concentration est sensiblement constante donne une croissance avec une vitesse accélérée (croissance libre) (Figure I-21b). Ensuite la composition augmente continûment jusqu'à une valeur asymptotique de 11.6%*pds*Cu, ce qui correspond au début de la diminution de la vitesse de croissance de la pointe jusqu'à une valeur nulle (Figure I-21b).

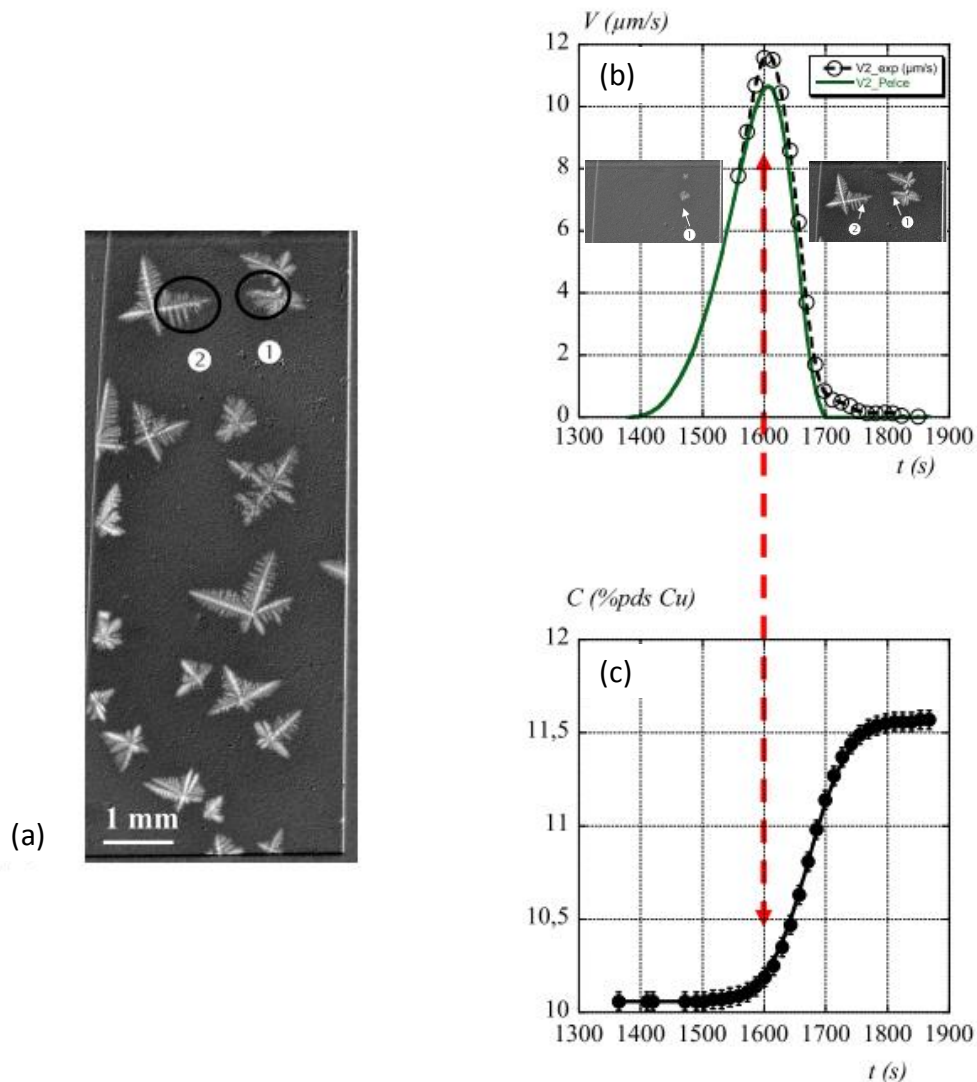


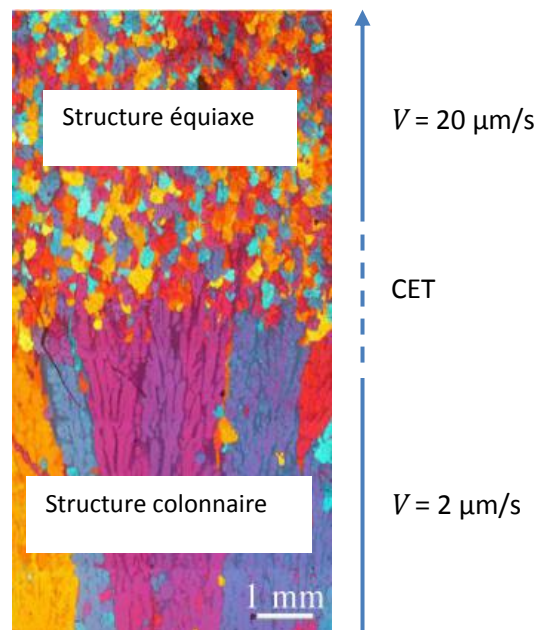
Figure I-21 : (a) Radiographie de la croissance équiaxe (Al-10%*pds*Cu, $R=0.5\text{K/min}$) ; (b) Évolution de la vitesse de la pointe de la dendrite 2, et comparaison des mesures expérimentales avec le modèle 3D de Pelcé ; (c) Évolution de la concentration C_∞ loin des pointes des dendrites mesurée expérimentalement. (*Bogno, 2011*)

I.4 La transition colonnaire-équiaxe

I.4.1 Intérêt industriel de la transition colonnaire – équiaxe CET

Dans les situations réelles (casting, soudure), une transition entre un mode de croissance colonnaire vers un mode de croissance équiaxe est généralement observée, conséquence des variations des conditions thermiques et solutales au cours de la solidification. Cette transition, appelée transition colonnaire – équiaxe « *Columnar to Equiaxed Transition, CET* » a un impact important sur les propriétés finales du matériau puisque la microstructure résultante est complètement différente (Figure I-22).

Figure I-22 : Coupe longitudinale d'un barreau cylindrique d'alliage Al-3.5%*pds*Ni affiné pour lequel la transition d'une microstructure colonnaire à une microstructure équiaxe a été obtenue en appliquant une augmentation de la vitesse de solidification durant la solidification (Image IM2NP).



En solidification dirigée, nous avons vu que l'existence de grains équiaxes est liée au fait qu'il existe une zone de liquide surfondu devant les pointes des dendrites colonnaire. Si des germes solides sont présents dans cette zone, ils pourront croître et une compétition entre la croissance de cristaux équiaxes libres et l'avancée du front colonnaire s'établit, pouvant conduire à la CET. La formation des germes solides équiaxe à deux origines possibles : la germination sur des particules affinantes et/ou la fragmentation des branches secondaire des dendrites colonnaires.

La CET est un phénomène complexe parce qu'il y a beaucoup de phénomènes qui interagissent entre eux tels que le transfert de chaleur et de soluté, la convection naturelle, la germination et la croissance. Pour étudier la CET, des modèles ont été développés, parmi lesquels le modèle de Hunt (*Hunt, 1984*) qui est un modèle dit de blocage mécanique, et le modèle de Martorano *et al.* (*Martorano, et al, 2003*) , qui est un modèle dit de blocage solutal.

I.4.2 Modèles de blocage mécanique

a) Modèle de Hunt (1984)

Considérons le cas d'une croissance colonnaire dendritique, avec un front constitué de dendrites qui avancent à une vitesse V dans un gradient de température G (Figure I-23). L'avancée du front dendritique, avec une température T_{tip} à la pointe des dendrites, donne naissance à une zone de liquide surfondu devant le front de solidification jusqu'à la température du liquidus de l'alliage T_l . Dans ce liquide surfondu, la germination de nouveaux grains peut avoir lieu si la surfusion du liquide est supérieure à la surfusion de germination. Ces nouveaux grains peuvent se développer devant l'interface pour ensuite bloquer l'avancée du front colonnaire : c'est la transition colonnaire -équiaxe.

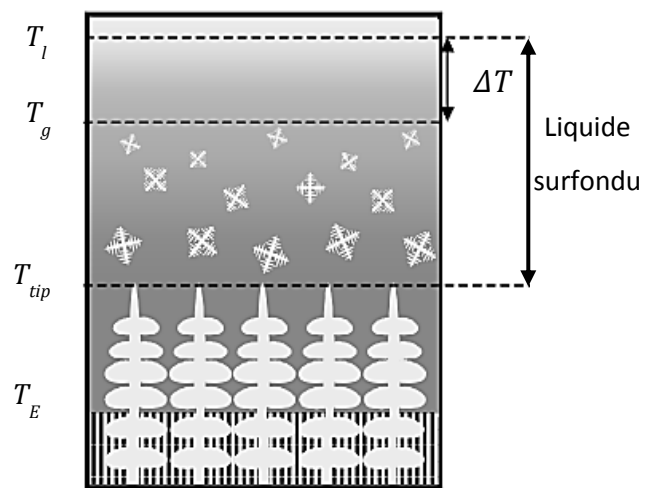


Figure I-23 : Représentation schématique de la transition colonnaire – équiaxe.

Historiquement, le premier modèle analytique qui a étudié la CET est celui de Hunt (Hunt, 1984). Son modèle utilise les hypothèses simplificatrices suivantes :

- Le transport du soluté se fait uniquement par diffusion (pas de convection). Cette hypothèse signifie qu'on ne prend pas en compte les effets de la convection sur la cinétique de croissance de grains équiaxes.
- Des sites de germination hétérogène, aléatoirement distribués, sont activés dès que la surfusion devant le front de solidification est supérieure à la surfusion de germination ΔT_g .
- La croissance des grains équiaxes est supposée sphérique.
- La thermique est stationnaire, la vitesse de croissance du front colonnaire et le gradient thermique sont constants.

Après germination, les cristaux équiaxes se développent à une vitesse déterminée par leur température locale. Puisque tous les grains se sont formés au même instant, le rayon des grains équiaxes, après un temps t , est donné par :

$$r_e = \int_0^t V_e dt = \frac{A(\Delta T^3 - \Delta T_g^3)}{3VG C_0} \quad \text{Eq. I-37}$$

Avec V_e la vitesse équiaxe prise égale à celle du front colonnaire ($V_e = A (\Delta T)^2 / C_0$), donnée par l'Eq.I-33. A est une constante de croissance qui dépend du système considéré, ΔT est la surfusion locale.

Puisque les sites de germination sont répartis aléatoirement, ce modèle utilise le concept de fraction volumique étendue de cristaux équiaxes :

$$\varphi_E = N_0 \frac{4}{3} \pi r_e^3 \quad \text{Eq. I-38}$$

Où N_0 est le nombre de site de germination par unité de volume.

La microstructure sera considérée totalement équiaxe pour une fraction volumique étendue de cristaux équiaxes $\varphi_E > 0.66$, et totalement colonnaire si $\varphi_E < 0.0066$. La valeur 0.66 pour φ_E a été choisie arbitrairement par Hunt et peut prêter à discussion.

Par ailleurs, l'annexe dans le même article de Hunt introduit une discussion supplémentaire sur l'allongement des grains comme critère pour déterminer le domaine colonnaire et le domaine équiaxe. Un grain est dit équiaxe quand son facteur d'allongement (ratio de l'axe le plus long contenu exclusivement dans le grain sur l'axe le plus long et perpendiculaire à l'axe principale inclu aussi dans le grain) est inférieur à deux. Pour l'analyse de nos résultats expérimentaux, c'est ce deuxième critère que nous utiliserons.

Finalement le critère de CET est basé sur la valeur du gradient thermique dans le liquide.

La croissance est colonnaire quand :

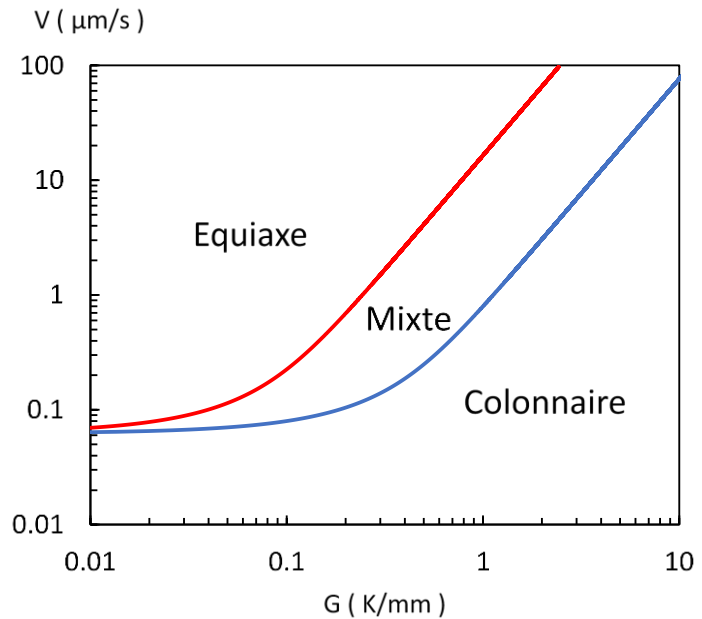
$$G > 0.617(100N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_g^3}{\Delta T^3}\right) \Delta T \quad \text{Eq. I-39}$$

La croissance est équiaxe quand :

$$G < 0.617(N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_g^3}{\Delta T^3}\right) \Delta T \quad \text{Eq. I-40}$$

Pour la gamme de gradient thermique intermédiaire, une structure dite mixte, mélange de grains colonnaires et de grains équiaxes, devrait être observée. À partir des équation I-39 et I-40, des cartes de microstructure peuvent être dessinées. La Figure I-24 montre la carte calculée pour l'alliage Al-20%pdCu affiné.

Figure I-24 : Diagramme de Hunt de l'alliage Al-20%*pds*Cu affiné pour une surfusion de germination $\Delta T_g = 0.05 \text{ K}$ et une densité volumique d'affinants $N_0 = 8 \times 10^9 \text{ m}^{-3}$.



Bien que relativement simple, ce modèle permet d'appréhender les paramètres importants pour la CET : d'une manière générale, la croissance équiaxe est favorisée quand la vitesse de solidification, la concentration en élément d'alliage et le nombre de sites de germination augmentent, et quand la surfusion de germination ou le gradient thermique diminuent. De plus, lorsque ΔT_g augmente, il est de plus en plus difficile d'obtenir la CET.

I.4.3 Modèles de blocage solutal

Dans ce second modèle, le blocage du front colonnaire n'est plus provoqué par l'encombrement des grains équiaxes (dit parfois abusivement « blocage mécanique »). Le blocage du front colonnaire est basé sur la présence des interactions chimiques, dues au rejet de soluté au cours de croissance des grains (Martorano, et al. 2003). Les équations de ce modèle reposent sur le modèle de Wang et Beckermann (Wang and Beckermann, 1996) avec les hypothèses simplificatrices suivantes:

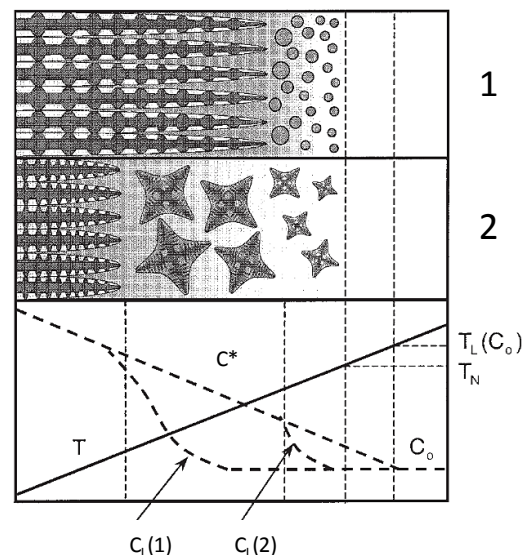
- La convection est toujours négligée.
- Le mouvement des grains équiaxes libres est aussi négligé donc des phénomènes, tels que la sédimentation des grains due à la gravité, ne sont pas pris en compte.

Il y a trois phases dans un volume élémentaire : Un solide de fraction volumique ε_s , un liquide intra-dendritique de fraction ε_d , un liquide extra-dendritique de fraction ε_l . La fraction volumique de grains est donnée par $\varepsilon_g = \varepsilon_s + \varepsilon_d$ et les liquides inter/extra-dendritiques sont séparés par une enveloppe imaginaire entourant les grains. Avec ces notions, le critère de transition colonnaire - équiaxe devient : $\varepsilon_g = 0.49$.

Aux équations de conservation d'énergie et de soluté est ajoutée une loi de vitesse de croissance du grain, régie par une cinétique de croissance de pointe libre. Le critère de blocage solutal est obtenu en utilisant une concentration moyenne locale du soluté du liquide entourant les enveloppes des grains plutôt que la composition initiale de l'alliage dans l'équation de la vitesse de croissance et de surfusion. La CET a lieu quand le soluté rejeté des grains équiaxes est en quantité suffisante pour supprimer la surfusion du front colonnaire et ainsi diminuer la vitesse des dendrites colonnaires équiaxes jusqu'à une valeur nulle. Deux cas peuvent avoir lieu :

- Dans le cas 1 de la Figure I-25, la densité de grains équiaxes est grande et leur taille est petite : C'est le cas quand on utilise des particules affinantes. Les grains équiaxes ont une croissance pratiquement globulaire ou peu dendritiques. Les nombreux grains rejettent une grande quantité de soluté dans le liquide environnant, causant une réduction rapide de la surfusion solutale devant le front colonnaire.
- Dans le cas 2 de la Figure I-25, la densité de grains est faible mais la taille des grains est plus grande. Les grains équiaxes peuvent devenir fortement dendritiques. Ainsi, pour les grandes valeurs de l'espacement entre grains, la concentration dans le liquide C_L demeure proche de C_0 avant de tendre vers la concentration à la pointe dendritique C^* .

Figure I-25 : Schéma des interactions solutales entre les grains colonnaires et équiaxes d'après (Martorano et al. 2003). Cas 1 : interactions solutales en présence d'une grande densité de grains. Cas 2 : interactions solutales en présence d'une densité plus petite.



Conclusion

De l'analyse bibliographique précédente, il ressort que dans le cas de la solidification des alliages, la force motrice pour que la germination ait lieu est la surfusion de constitution. L'intensité de la surfusion de constitution et la longueur de la zone de liquide surfondu sont liées à :

- La composition nominale de l'alliage
- La vitesse de croissance
- Le gradient de température

Dans le cas où l'alliage est affiné, c'est-à-dire contenant des particules ajoutées volontairement, la surfusion de germination de ces particules est très faible ce qui donne naissance à un grand nombre de grains dans la zone de liquide surfondue (cas 1 de la Figure I-25).

Les principaux modèles analytiques décrivant la solidification, la croissance et la structure de grains formée durant la solidification ont été rappelés. Néanmoins, tous ces modèles analytiques ne prennent pas en compte les effets liés à la gravité, pourtant si importants dans des situations réelles. Ces effets seront introduits dans les chapitres suivants.

L'objectif principal de cette thèse est de déterminer expérimentalement l'effet des paramètres de contrôle (vitesse de croissance V et le gradient de température G) qui affectent la surfusion de constitution et donc la structure finale après solidification : taille et morphologie des grains, distribution des grains. L'analyse des observations expérimentales se fera sur la base des modèles présentés dans ce chapitre.

Références

- Bogno, A., H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, B. Billia, and J. Baruchel. 2013. "Growth and Interaction of Dendritic Equiaxed Grains: In Situ Characterization by Synchrotron X-Ray Radiography." *Acta Materialia* 61 (4): 1303–15. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2012.11.008>.
- Bogno, Abdoul-Azziz. 2011. "Application de La Radiographie X Synchrotron a La Caractérisation de La Microstructure de Solidification d'alliages Métallique."
- Dantzig, J.A., and M.Rappaz. 2009. *Solidification*. EPFL Press.
- Fan, Z., Y. Wang, Y. Zhang, T. Qin, X. R. Zhou, G. E. Thompson, T. Pennycook, and T. Hashimoto. 2015. "Grain Refining Mechanism in the Al/Al-Ti-B System." *Acta Materialia* 84: 292–304. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2014.10.055>.
- Fuqian, Zheng, Xie Ming, Liu Jianliang, Lu Xianrong, Guan Weiming, Shi An, and Deng Zhongmin. 2001. "Study of Rapidly Solidified Atomization Technique and Production of Metal Alloy Powders." *Materials Science and Engineering A* 304 (306): 579–82. [https://doi.org/10.1016/S0921-5093\(00\)01538-0](https://doi.org/10.1016/S0921-5093(00)01538-0).
- Greer, A. L., A. M. Bunn, A. Tronche, P. V. Evans, and D. J. Bristow. 2000. "Modelling of Inoculation of Metallic Melts: Application to Grain Refinement of Aluminium by Al-Ti-B." *Acta Materialia* 48 (11): 2823–35. [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(00\)00094-X](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(00)00094-X).
- Greer, a L, P S Cooper, M W Meredith, W Schneider, P Schumacher, J a Spittle, and a Tronche. 2003. "Grain Refinement of Aluminium Alloys by Inoculation." *Advanced Engineering Materials* 5 (12): 81–91. <https://doi.org/10.1002/adem.200390013>.
- Hall, E.O. 1951. "The Deformation and Ageing of Mild Steel III Discussion of Results." *Proceedings of the Physical Society. Section B* 64 (9): 747. <https://doi.org/10.1088/0370-1301/64/9/303>.
- Han, S. H., and R. Trivedi. 1994. "Primary Spacing Selection in Directionally Solidified Alloys." *Acta Metallurgica Et Materialia* 42 (1): 25–41. [https://doi.org/10.1016/0956-7151\(94\)90045-0](https://doi.org/10.1016/0956-7151(94)90045-0).
- Hunt, J. D. 1984. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. [https://doi.org/10.1016/0025-5416\(84\)90201-5](https://doi.org/10.1016/0025-5416(84)90201-5).
- Ivantsov, G. P. 1947. "Temperature Field around a Spheroidal, Cylindrical and Acicular Crystal Growing in a Supercooled Melt." *Doklady Akademii Nauk SSSR* 58: 567–569.
- Johnsson, Mats, Lennart Backerud, and Geoffrey K. Sigworth. 1993. "Study of the Mechanism of Grain Refinement of Aluminum after Additions of Ti- and B-Containing Master Alloys." *Metallurgical Transactions A* 24 (2): 481–91. <https://doi.org/10.1007/BF02657335>.
- Kammer, D., and P. W. Voorhees. 2006. "The Morphological Evolution of Dendritic Microstructures during Coarsening." *Acta Materialia* 54 (6): 1549–58. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2005.11.031>.
- Kurz, W., B. Giovanola, and R. Trivedi. 1986. "Theory of Microstructural Development during Rapid Solidification." *Acta Metallurgica* 34 (5): 823–30. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(86\)90056-8](https://doi.org/10.1016/0001-6160(86)90056-8).

- Kurz, W, and D.J Fisher. 1984. *Fundamentals of Solidification*.
- Kurz, W, and D J Fisher. 1981. "Stability : Tip Radius and Spacing V^* " 29.
- Langer, S. J, and H Müller-Krumbhaar. 1977. "Theory of Dendritic Growth-I. Elements of Stability Analysis."
- Liotti, E., A. Lui, R. Vincent, S. Kumar, Z. Guo, T. Connolley, I. P. Dolbnya, et al. 2014. "A Synchrotron X-Ray Radiography Study of Dendrite Fragmentation Induced by a Pulsed Electromagnetic Field in an Al-15Cu Alloy." *Acta Materialia* 70. Acta Materialia Inc.: 228–39. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2014.02.024>.
- Losert, W., B. Q. Shi, and H. Z. Cummins. 1998. "Evolution of Dendritic Patterns during Alloy Solidification: From the Initial Instability to the Steady State." *Proceedings of the National Academy of Sciences* 95 (2): 439–42. <https://doi.org/10.1073/pnas.95.2.439>.
- Lu, Shu Zu, and J. D. Hunt. 1992. "A Numerical Analysis of Dendritic and Cellular Array Growth: The Spacing Adjustment Mechanisms." *Journal of Crystal Growth* 123 (1–2): 17–34. <https://doi.org/10.1109/ICALT.2017.47>.
- Martorano, M.A, Beckermann.C, and C.A Gandin. 2003. "A Solutal Interaction Mechanism for the Columnar-to-Equiaxed Transition in Alloy Solidification." *Metallurgical and Materials Transactions A* 34 (8): 1657–74. <https://doi.org/10.1007/s11661-003-0311-x>.
- Maxwell, I., and A. Hellawell. 1975. "A Simple Model for Grain Refinement during Solidification." *Acta Metallurgica* 23: 229–37. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(75\)90188-1](https://doi.org/10.1016/0001-6160(75)90188-1).
- Mullins, W. W., and R. F. Sekerka. 1964. "Stability of a Planar Interface during Solidification of a Dilute Binary Alloy." *Journal of Applied Physics* 35 (2): 444–51. <https://doi.org/10.1063/1.1713333>.
- Petch, N.J. 1953. "The Cleavage Strength of Polycrystals." *Iron and Steel Institute* 173: 25–28.
- Quested, T. E., and A. L. Greer. 2004. "The Effect of the Size Distribution of Inoculant Particles on As-Cast Grain Size in Aluminium Alloys." *Acta Materialia* 52 (13): 3859–68. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2004.04.035>.
- Rutter, J. W., and B. Chalmers. 1953. "A Prismatic Substructure Formed During Solidification of Metals." *Canadian Journal of Physics* 31 (1): 15–39. <https://doi.org/10.1139/p53-003>.
- Salas, G. B., J. V. Ramírez, M. E A Noguez, and T. N. Robert. 1995. "Dendrite Arm Spacing - Local Solidification Time Relationship: An Experimental Model for a 70-30 Brass and Its Comparison with Some Theoretical Models." *Scripta Metallurgica et Materiala* 32 (2): 295–99. [https://doi.org/10.1016/S0956-716X\(99\)80053-3](https://doi.org/10.1016/S0956-716X(99)80053-3).
- Sharp, R. M., and A. Hellawell. 1971. "Solute Distributions at Non-Planar, Solid-Liquid Growth Fronts. IV. Ripening of Cells and Dendrites behind the Growth Front." *Journal of Crystal Growth* 11 (1): 77–91. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(71\)90165-5](https://doi.org/10.1016/0022-0248(71)90165-5).
- Steinbach, I, H Diepers, and C Beckermann. 2005. "Transient Growth and Interaction of Equiaxed Dendrites" 275: 624–38. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2004.12.041>.

- Takaki, Tomohiro, Shinji Sakane, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Takashi Shimokawabe, and Takayuki Aoki. 2016. "Primary Arm Array during Directional Solidification of a Single-Crystal Binary Alloy: Large-Scale Phase-Field Study." *Acta Materialia* 118. Elsevier Ltd: 230–43. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2016.07.049>.
- Tiller, W. A., K. A. Jackson, J. W. Rutter, and B. Chalmers. 1953. "The Redistribution of Solute Atoms during the Solidification of Metals." *Acta Metallurgica* 1 (4): 428–37. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(53\)90126-6](https://doi.org/10.1016/0001-6160(53)90126-6).
- Trivedi, R. 1980. "Theory of Dendritic Growth during the Directional Solidification of Binary Alloys." *Journal of Crystal Growth* 49 (2): 219–32. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(80\)90157-8](https://doi.org/10.1016/0022-0248(80)90157-8).
- Tronche, A, M Vandyoussefi, and A.L Greer. 2003. "Instability of TiC Particles in Aluminium Melts Inoculated with an Al-Ti-C Grain Refiner." *Materials Science and Technology* 18 (10): 1072–78. <https://doi.org/10.1179/026708302225006034>.
- Wang, C. Y., and C. Beckermann. 1996. "Equiaxed Dendritic Solidification with Convection: Part I. Multiscale/Multiphase Modeling." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 27 (9): 2754–64. <https://doi.org/10.1007/BF02652369>.
- You, D. Y., X. D. Gao, and S. Katayama. 2014. "Review of Laser Welding Monitoring." *Science and Technology of Welding and Joining* 19 (3): 181–201. <https://doi.org/10.1179/1362171813Y.0000000180>.
- ZHANG, Ke ren, Fa qin XIE, Rui HU, and Xiang qing WU. 2016. "Relationship between Microstructure and Mechanical Properties of Undercooled K4169 Superalloy." *Transactions of Nonferrous Metals Society of China (English Edition)* 26 (7). The Nonferrous Metals Society of China: 1885–91. [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(16\)64303-0](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(16)64303-0).

Chapitre II:

Caractérisation in situ et en temps réel de la formation des microstructures équiaxes d'alliages métalliques par radiographie X

Introduction	39
II.1 Application de la radiographie X à l'étude de la solidification des alliages métalliques... 40	40
II.1.1 Les premières tentatives de radiographie X en laboratoire.....	40
II.1.2 Radiographie X par rayonnement synchrotron.....	42
II.1.3 Dispositifs de laboratoire modernes	43
II.2 Principe de la radiographie X.....	45
II.2.1 Absorption des rayons X.....	45
II.2.2 Calcul de la transmission à travers un échantillon	46
II.2.3 Calcul du contraste solide-liquide	48
II.3 Dispositif SFINX (<i>Solidification Furnace with IN-situ X-radiography</i>)	49
II.3.1 Échantillon et creuset.....	50
II.3.2 Four à gradient de température.....	52
II.3.3 Système de radiographie X.....	54
II.3.4 Traitement des images	55
II.4 Caractérisation du système d'imagerie.....	59
II.4.1 Grandissement	59
II.4.2 Flux de photons incident	62
II.4.3 Temps d'exposition	63
II.5 Détermination des paramètres de solidification	64
II.5.1 Détermination de la vitesse de déplacement du front de solidification.....	64
II.5.2 Gradient de température G dans l'échantillon	67
II.6 Outils de caractérisation de la structure de grains	68
II.6.1 Taille des grains	68
II.6.2 Mesure de l'allongement d'un grain	72
II.6.3 Mesure de l'orientation des grains par rapport au gradient de température	74
Conclusion.....	76
Références	77

Introduction

L'étude de la dynamique de formation des microstructures des matériaux est essentielle pour la compréhension de l'origine des propriétés mécaniques, physiques et chimiques. Plusieurs méthodes permettent de visualiser la microstructure formée pendant la solidification, parmi lesquelles la caractérisation post-mortem après la trempe (*Burden et al. 1973*) ou la décantation (*Zimmermann et al. 2005*). L'inconvénient majeur de ces méthodes est qu'elles ne donnent que des informations sur la microstructure finale ou à un instant donné de la solidification. Pour étudier la dynamique de formation des microstructures, la technique de marquage Peltier peut être utilisée (*Dabo et al. 2000*). Cette technique permet de visualiser en post-mortem les différentes positions et formes de l'interface solide-liquide au cours du temps. La limitation de cette technique est qu'elle est applicable uniquement pour des alliages qui ont un coefficient thermoélectrique élevé, du type semiconducteur.

Les matériaux organiques transparents à la lumière visible et qui ont une interface s/l rugueuse ont permis d'effectuer des observations *in situ* et en temps réel (*Jackson and Hunt, 1965*). Ces alliages ont été utilisés avec succès pour établir et valider les principaux modèles de croissance comme ceux décrits dans le chapitre précédent. Cependant ces matériaux n'ont pas les mêmes propriétés thermiques que les alliages métalliques, ce qui peut poser un problème pour la généralisation aux alliages métalliques des résultats obtenues.

L'application des rayons X à la solidification dans les années 2000 a entraîné une révolution dans le domaine en termes d'observation *in situ* et en temps réel de la solidification des alliages métalliques. Plusieurs techniques d'observations ont été développées : la radiographie qui permet d'obtenir une image projetée de la microstructure et que je vais présenter en détail dans ce chapitre, la microtomographie (*Ludwig et al. 2005*) qui permet d'obtenir des images en trois dimensions de petits échantillons, et l'imagerie en diffraction (ou topographie X) qui permet de visualiser les désorientations et les contraintes dans le solide (*Reinhart et al. 2008*)(*Nguyen-Thi et al. 2012*).

II.1 Application de la radiographie X à l'étude de la solidification des alliages métalliques.

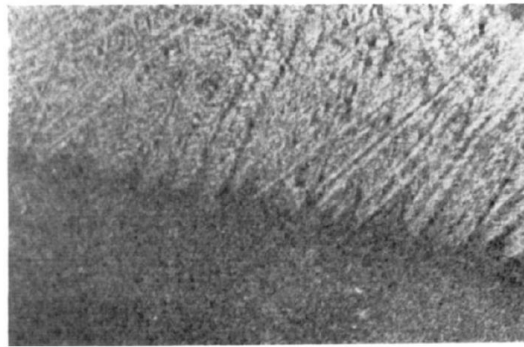
II.1.1 Les premières tentatives de radiographie X en laboratoire

La radiographie X est une méthode d'observation non-destructive qui permet de visualiser différents contrastes entre les éléments qui constituent un matériau, en fonction de l'épaisseur et du coefficient d'atténuation des milieux traversés. La première utilisation de la radiographie X pour l'observation de la solidification des métaux a été effectuée par Forsten et Miekkoja (*Forsten and Miekkoja, 1967*). Miller et Beech ont ensuite amélioré la résolution et acquièrent en continue les phénomènes au cours de la solidification d'un alliage Al-Cu et Al-Sn par l'utilisation de la méthode de microradiographie (*Miller and Beech, 1972*) (Figure II-1a).

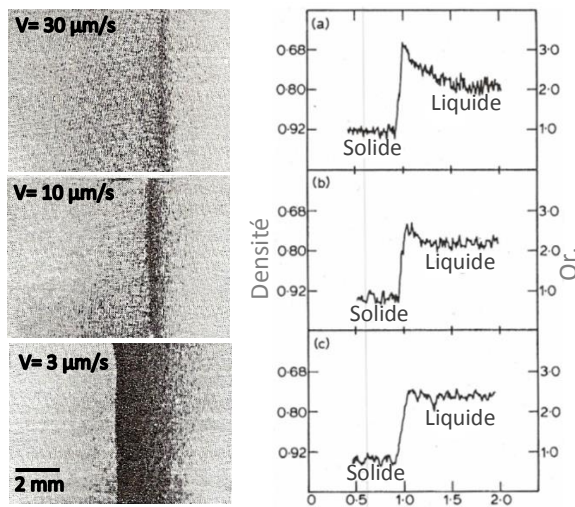
L'utilisation de la radiographie comme méthode d'observation *in situ* de la solidification d'alliages d'aluminium a permis de mettre en évidence des phénomènes importants qui affectent la formation de la microstructure. Par exemple :

- Stephenson et Beech (*Stephenson and Beech, 1979*) ont étudié la longueur de la couche solutale devant un front plan ou cellulaire. Ils ont relié la variation du niveau de gris dans les radiographies au profil de concentration en soluté devant l'interface solide-liquide pour un alliage Al-2%pdsAu (Figure II-1b).
- Lee et Hunt (*Lee and Hunt, 1997*) ont étudié *in situ* et en temps réel la formation de porosités pendant la solidification dirigée d'un alliage Al-20%pdsCu (Figure II-1c).

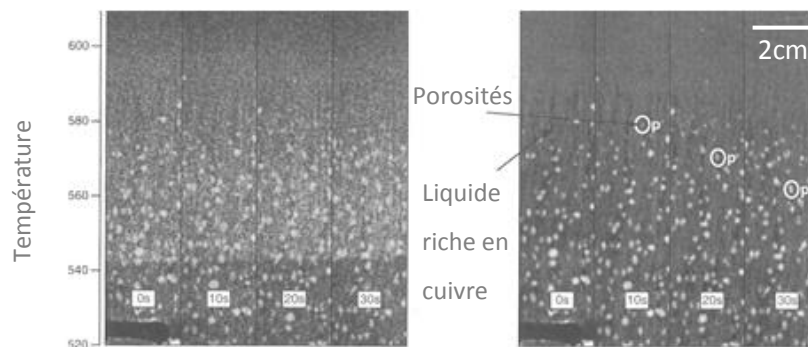
Ces premiers dispositifs de laboratoire ont permis d'étudier avec succès la solidification des systèmes métalliques pour lesquels la différence d'atténuation des rayons X entre la phase solide et la phase liquide est suffisante pour fournir un bon contraste. Cependant, le faible flux de photons X délivré par les sources de laboratoire restait une limitation majeure dans les années 1990. Ce problème a été résolu ensuite par l'utilisation de sources de rayonnement synchrotron.



(a) Morphologie de croissance dans Al-48%PdSn



(b) Influence de la morphologie de l'interface solide/liquide sur le profil du soluté dans Al-2%PdAu, (a)-(b) interface cellulaire, (c) interface plane



(c) Porosités dues à la présence d'hydrogène dans Al-20%PdCu

Figure II-1: Exemples d'observations de la solidification d'alliages métalliques effectuées par radiographie X de laboratoire (Miller and Beech, 1972)(Stephenson and Beech, 1979)(Lee and Hunt, 1997).

II.1.2 Radiographie X par rayonnement synchrotron

Le rayonnement synchrotron est le rayonnement émis par des particules chargées accélérées dans un champ magnétique, à une vitesse proche de la célérité de la lumière (3.10^8 m/s). Ce rayonnement est très intense par rapport aux rayons X de laboratoire (typiquement 10^{11} fois plus intense), avec une brillance de l'ordre de 10^{19} photons/s/mrad²/0.1% et une large bande spectrale. Ce rayonnement est polychromatique (ou blanc) mais il peut être aisément rendu monochromatique par un système de deux monocristaux de silicium (<https://www.esrf.eu>).

Dans le domaine de l'observation de la solidification des alliages métalliques, le rayonnement synchrotron a été une vraie révolution qui a permis de révéler des phénomènes comme :

- L'observation directe de la Transition Colonnaire - Équiaxe CET (*Nguyen-Thi et al. 2007*)(Figure II-2a),
- Les effets de la gravité sur la formation des microstructures (fléchissement des bras secondaires, fragmentation, mouvements convectifs) (*Nguyen-Thi et al. 2011*)(Figure II-2b),
- La visualisation de la solidification d'alliages dont le nombre atomique des éléments est proche et donc donnent un faible contraste (comme Al-Si) (*Reinhart et al. 2014*)(Figure II-2c),
- La mesure quantitative de la variation de la composition chimique du liquide devant le front de solidification (*Buffet et al. 2010*)(*Salloum-Abou-Jaoude et al. 2015*)(Figure II-2d),
- L'effet d'un champ magnétique sur la formation de la structure de grain (*Salloum-Abou-Jaoude et al. 2015*)(Figure II-2e)
- Et récemment, l'observation de matériaux utilisés dans l'industrie et dont la température de fusion est élevée tels que : le silicium pour application photovoltaïque (*Riberi-Béridot et al. 2015*), l'acier pour la sidérurgie (*Yamane et al. 2015*), et la solidification de superalliages à base de nickel (*Aveson et al. 2012*).

La caractérisation par rayonnement synchrotron est une technique très performante. Néanmoins, l'accès aux sources synchrotron reste très difficile. En outre, la convection thermosolutale, la flottabilité et la sédimentation des grains liées à la gravité sont inévitables dans ces études en raison de la configuration horizontale du faisceau de rayons X synchrotron qui implique une configuration verticale de l'échantillon, parallèle à la gravité terrestre.

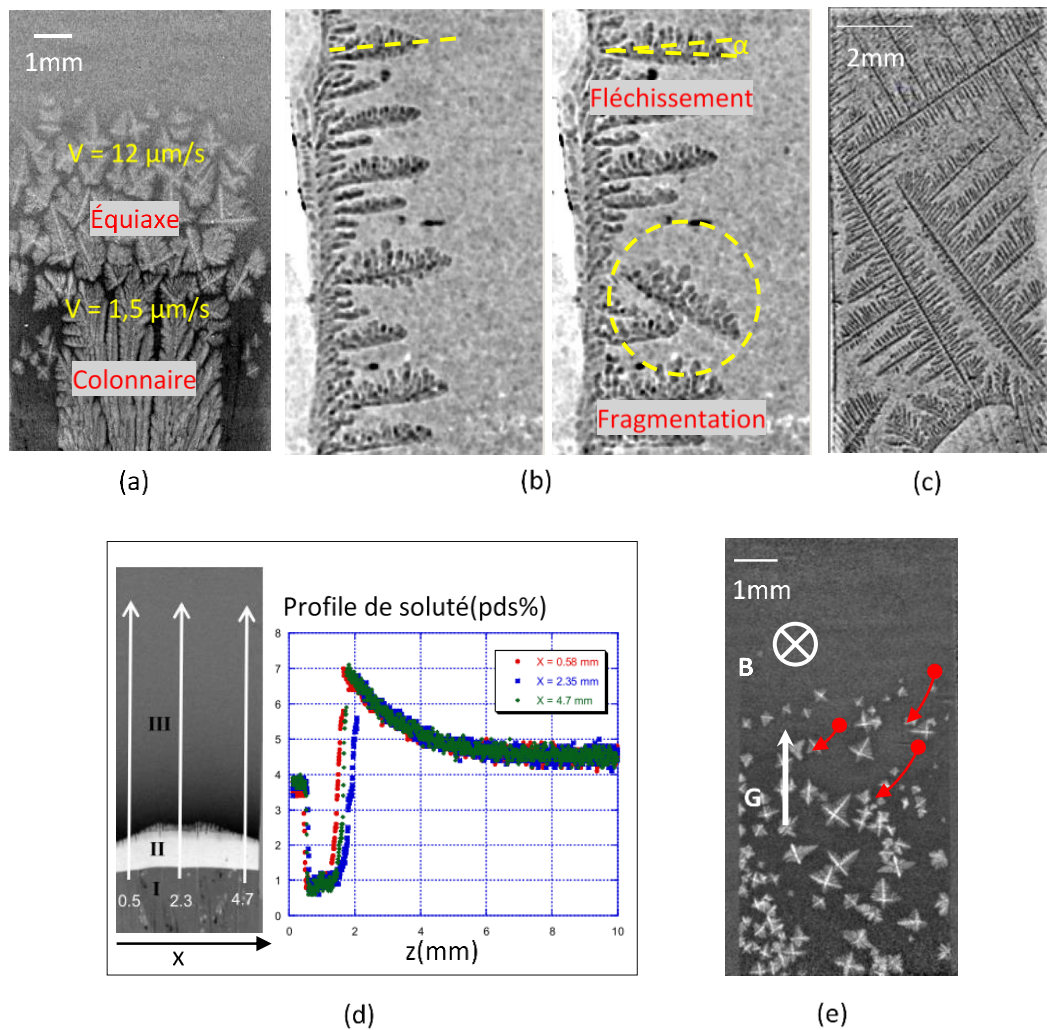


Figure II-2: (a) Transition colonnaire-équiaxe dans un alliage Al-3.5%pds Ni affiné ; (b) Phénomènes de fléchissement et de fragmentation liés à la présence de la gravité au cours de la solidification d'un alliage Al-7%pds Si ; (c) Radiographie enregistrée durant la solidification de Al-7%pds Si ; (d) Profils de solutés longitudinaux, calculés pour trois positions transverses différentes au cours de la solidification d'un alliage Al-4%pdsCu ; (e) Mouvement de grains équiaxes dans Al-10%pds Cu sous l'effet d'un champ magnétique, les grains bougent de la droite vers la gauche dans l'échantillon (flèches rouge).

II.1.3 Dispositifs de laboratoire modernes

Grâce aux récents développements des sources et des détecteurs de rayons X, de nouveaux dispositifs de laboratoire ont été développés pour l'étude de la solidification dirigée d'alliages métalliques (Rakete et al. 2011). Par exemple, Shevchenko et al. (Shevchenko et al. 2015) ont étudié la solidification de l'alliage Ga-25pds%In sous l'effet de la convection naturelle et forcée par l'application d'un champ magnétique dans un dispositif de laboratoire. Les auteurs ont étudié la formation des plumes de soluté dues à la convection solutale dans le liquide (Figure II-3a). Ils ont montré aussi l'effet de l'application d'un champ magnétique sur la convection forcée, et son influence sur la formation des bras primaires et secondaires des dendrites.

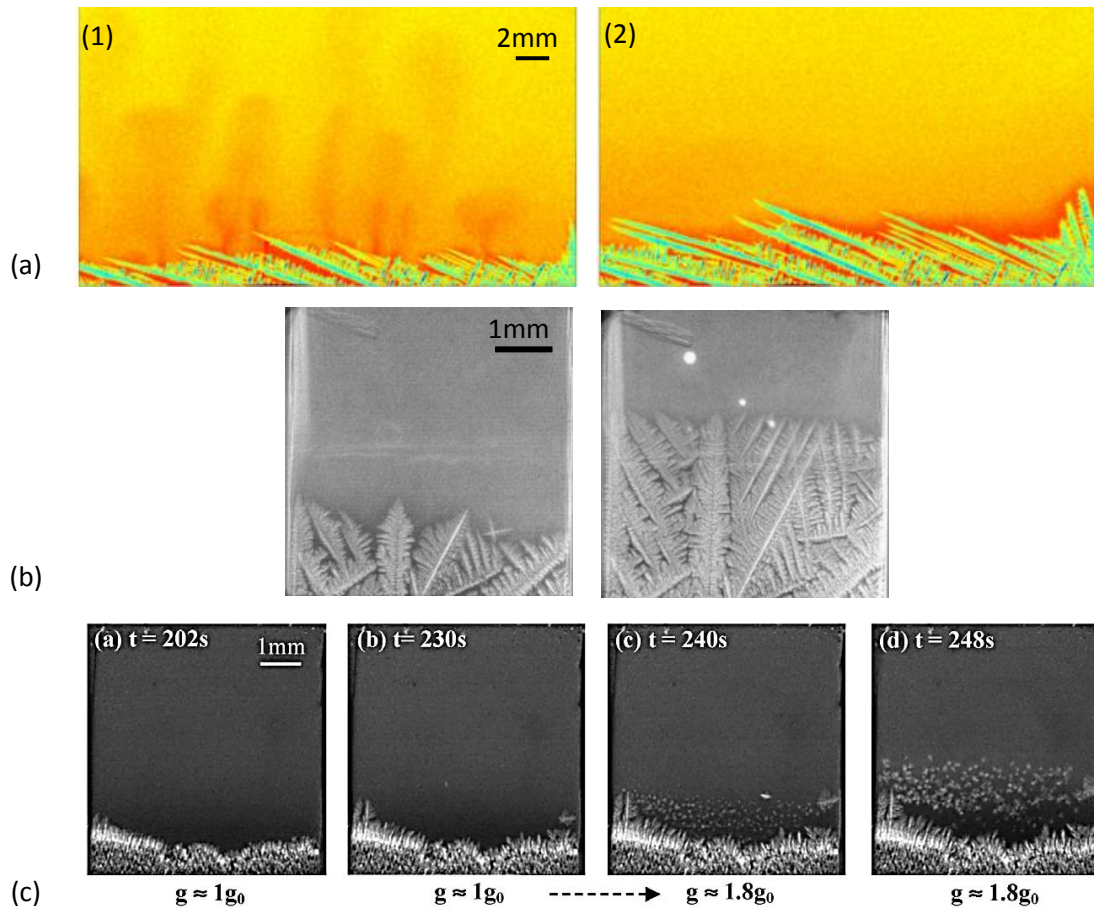


Figure II-3 : (a1) Image montrant la formation de plumes durant la solidification de l'alliage Ga - 25%Pds In, (a2) la disparition des plumes sous l'effet de l'application d'un champ magnétique (Shevchenko et al. 2015) ; (b) Des images enregistrées lors de la solidification colonnaire de Al-20%PdsCu dans des conditions de microgravité au cours de l'expérience en fusée sonde MASER-12 (Nguyen-Thi et al. 2013) ; (c) Séquence de radiographies enregistrées lors de la solidification de Al-20%Pds Cu affiné montrant une CET due à la variation du niveau de gravité durant un vol parabolique (Abou-Khalil et al. 2016).

Ces nouveaux dispositifs peuvent être utilisés en laboratoire mais aussi dans des plateformes dédiées à des recherche en microgravité (fusée-sonde et vols paraboliques). Dans le cadre du projet ESA-MAP XRMON (*In-situ X-Ray MONitoring of Advanced metallurgical processes under microgravity and terrestrial conditions*), trois dispositifs dédiés à la réalisation d'observation de la solidification d'alliages à base aluminium dans des conditions de microgravité ont été développés. Les trois dispositifs, développés en collaboration avec la SSC (*Swedish Space Coporation*), sont :

- XRMON-GF (*Gradient Furnace*), destiné à l'étude de la solidification dans un gradient de température (Nguyen-Thi et al. 2013),
- XRMON-PFF (*Parabolic Flight Facility*), un clone de XRMON-GF mais adapté à des expériences en vols paraboliques dans un Airbus A310 (Abou-Khalil et al. 2016),
- XRMON-SOL (*isothermal solidification furnace*), dédié à l'étude de la solidification équiaxe avec des conditions isothermes (Murphy et al. 2016).

Ces trois dispositifs ont permis d'étudier efficacement la formation de microstructures dans des conditions de microgravité et de niveau de gravité variable (Figure II-3b-c), avec des résolutions temporelles de 2 images/seconde et une taille effective de pixel de $4 \times 4 \mu\text{m}^2$.

Le dispositif XRMON-GF a été dupliqué pour en faire un dispositif de laboratoire appelé SFINX (*Solidification Furnace with In Situ X-radiography*), avec lequel j'ai effectué les expériences de ma thèse. SFINX est un dispositif de l'équipe Microstructure de Croissance Auto-organisée (MCA) et se trouve au laboratoire IM2NP-Marseille, France. Il est destiné à la caractérisation *in situ* et en temps réel de la solidification des alliages métalliques à base aluminium dont la température de fusion est inférieure à 750°C . Le dispositif est décrit en détail dans la suite de ce chapitre.

II.2 Principe de la radiographie X

II.2.1 Absorption des rayons X

Le principe de la radiographie X consiste à illuminer un échantillon (d'épaisseur x) avec un faisceau de rayons X incident (d'intensité I_0 et d'énergie E). Un détecteur est placé à une distance d_{ED} de l'autre côté de l'échantillon et permet de collecter à chaque point de sa surface l'intensité des rayons X transmis I_T après traversée de l'échantillon (Figure II-4). Dans le cas où le détecteur est une caméra CCD, les rayons X collectés sont transformés en lumière visible par un scintillateur. Les contrastes dans l'image enregistrée sont associés principalement à la différence d'absorption des rayons X entre les éléments chimiques et les phases qui composent l'échantillon en cours de solidification.

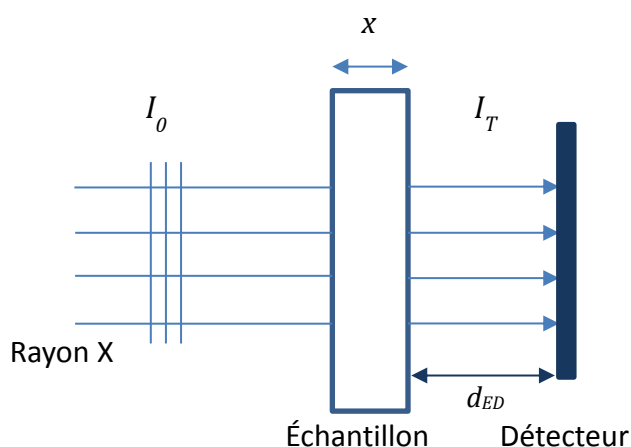


Figure II-4 : Principe de la radiographie X dans le cas d'un faisceau X parallèle (type rayonnement synchrotron).

La loi de Beer-Lambert relie l'intensité des rayons X transmis I_T à l'intensité I_0 du faisceau de rayons X incident. L'intensité transmise décroît exponentiellement en fonction de l'épaisseur x de l'échantillon et du coefficient d'absorption linéaire μ_{lin} de la matière traversée, qui dépend de la composition chimique C de cette matière et de la température T .

$$I_T = I_0 \exp(-\mu_{lin}(T, C)x) \quad \text{Eq. II-1}$$

L'intensité transmise peut-être encore écrite de la manière suivante :

$$I_T = I_0 \exp(-\mu'(C) \rho(T, C)x) \quad \text{Eq. II-2}$$

Avec $\rho(T, C)$ la densité volumique du milieu traversé et μ' le coefficient d'absorption massique qui ne dépend que de la composition (Yin and Koster, 2003).

Le coefficient $\mu'(C)$ diminue avec le numéro atomique de la matière traversée et avec l'énergie du faisceau incident. Dans le cas d'échantillons composés de plusieurs éléments j (cas des alliages métalliques) le coefficient d'absorption massique $\mu'(C)$ peut s'écrire comme une combinaison linéaire des coefficients d'absorption massique μ'_j des différents éléments pondérés par leur concentration C_j .

$$\mu' = \sum_j \mu'_j C_j \quad \text{Eq. II-3}$$

II.2.2 Calcul de la transmission à travers un échantillon

La transmission est le paramètre qui donne une information sur le degré de pénétration des rayons X à travers la matière. Le calcul de la transmission est déterminé à partir de la loi de Beer-Lambert (Eq. II-1)

$$Transmission = \frac{I_T}{I_0} = \exp(-\mu' \rho(T, C).x) \quad \text{Eq. II-4}$$

La Figure II-5 illustre l'influence des différents facteurs sur la transmission dans le cas d'un alliage Al-Cu dont les caractéristiques sont données dans le Tableau II-1 ci-dessous.

Tableau II-1 : Numéro atomique et densités de Al et de Cu solide ρ_s et liquide ρ_L (Lide 2003)

Élément chimique	Numéro atomique	$\rho_s(T_{am}) \text{ Kg m}^{-3}$	$\rho_L(T = 660^\circ \text{C}) \text{ Kg m}^{-3}$
Al	13	2700	2550
Cu	29	8960	8278

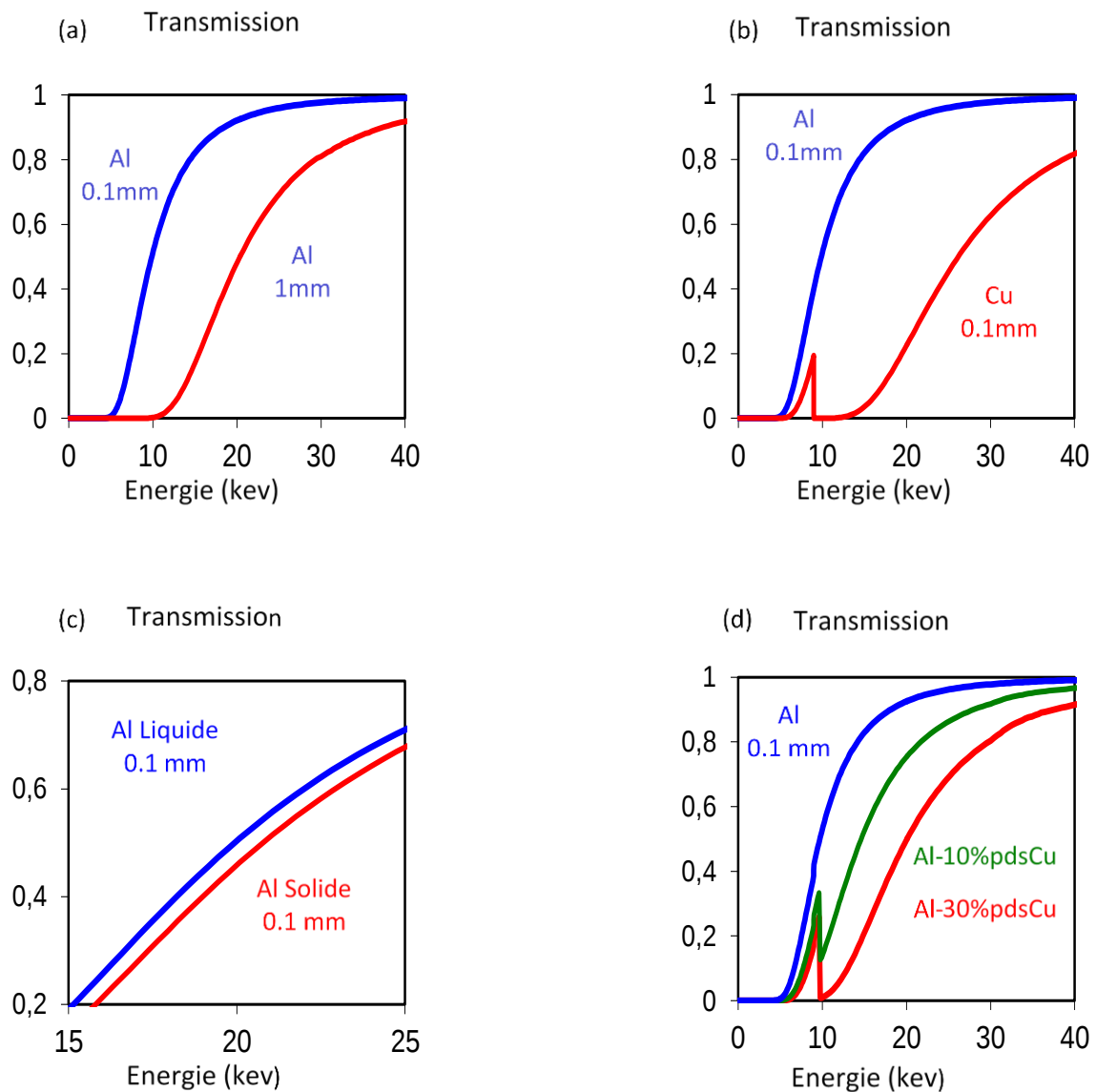


Figure II-5 : Variation de la transmission des rayons X en fonction (a) de l'épaisseur, (b) du matériau (Al pur et Cu pur), (c) de la phase solide ou liquide, (d) de la composition.

D'un point de vue pratique, on notera en particulier :

- **Figure II-5a :** La diminution de la transmission quand l'épaisseur de l'échantillon augmente, ce qui impose l'utilisation dans nos expériences d'échantillons dont l'épaisseur est de l'ordre de 200-300 μ m.
- **Figure II-5b :** La diminution de la transmission avec l'augmentation du numéro atomique de l'élément d'alliage (Al = 13, Cu = 29), ce qui explique le bon contraste entre l'aluminium solide et le liquide riche en cuivre au cours de la solidification des alliages Al-Cu.

- Figure II-5c : La faible variation ($\sim 7\%$ à 16 keV) de la transmission selon l'état solide ou liquide du matériau (ici de l'aluminium). On peut tirer parti de cette variation pour l'étude de la croissance des interfaces s/l pour les matériaux purs (*Tandjaoui et al. 2013*), et aussi pour l'étude de la croissance des microstructure des alliages dont les numéros atomiques des éléments constitutants sont très proches, par exemple Al-Si (*Reinhart et al. 2014*) et Al-Mg (*Feuerbacher et al. 2007*).
- Figure II-5d : La diminution de la transmission avec l'augmentation de la composition en élément d'alliage (Al pur, Al-10%pdsCu et Al-20%pdsCu).

II.2.3 Calcul du contraste solide-liquide

Pour obtenir une radiographie de bonne qualité et avec un temps d'exposition raisonnable, une quantité suffisante de photons doit être transmise à travers l'échantillon pour obtenir un bon rapport signal/bruit. Ceci peut être obtenu par l'augmentation de l'énergie du faisceau incident (Figure II-6). Néanmoins, l'augmentation de la transmission affecte le contraste qui est un deuxième paramètre important pour avoir une bonne qualité d'image, défini par :

$$\text{Contraste} = \frac{I_{T1} - I_{T2}}{I_{T1}} \quad \text{Eq II-5}$$

Le contraste entre les éléments chimiques diminue alors que la transmission augmente avec l'énergie du faisceau incident (Figure II-6). Il faut donc chercher l'énergie optimale qui donne le meilleur compromis entre la transmission et le contraste.

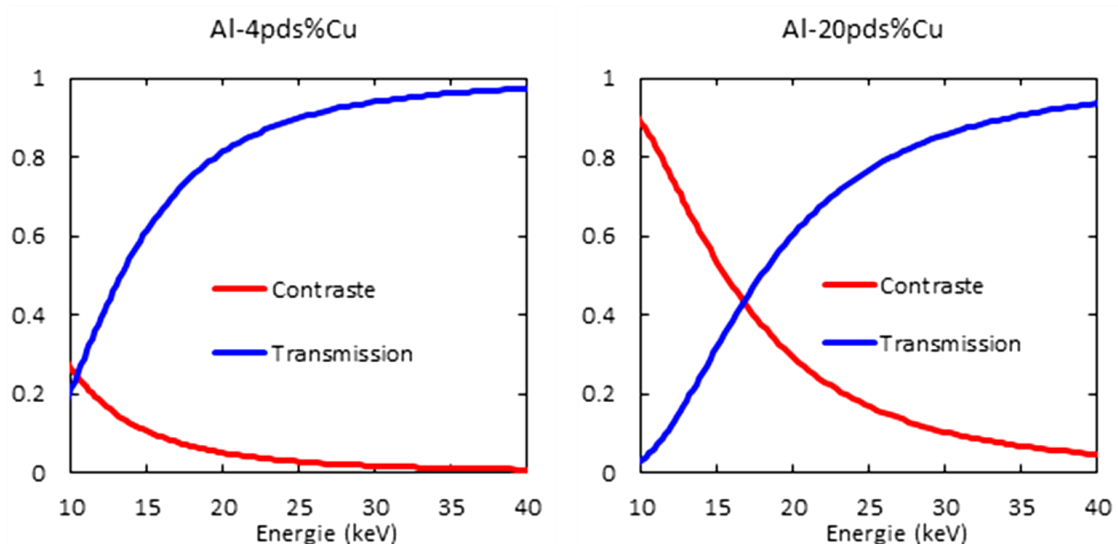


Figure II-6 : Transmission des alliages Al-4wt% Cu et Al-20wt% Cu et contraste entre ces alliages et l'aluminium pur (l'épaisseur est de 0,2 mm).

Cette énergie peut être déterminée à partir de la Figure II-6. Une règle empirique consiste à prendre la valeur qui correspond au point d'intersection des deux courbes transmission-contraste. Pour les alliages à base Al-Cu qui sont étudiés dans ma thèse, cette énergie est comprise entre 15 et 20 keV selon la concentration en cuivre. Dans les expériences réalisées avec des sources synchrotron, il est possible de choisir avec précision cette énergie. Les sources de laboratoire présentent un spectre possédant un fond continu (Bremsstrahlung) avec des pics d'intensité caractéristiques de l'anode (cuivre, tungstène et molybdène). Pour l'étude de la solidification d'alliages à base aluminium, la source choisie est généralement en molybdène, avec deux pics d'intensité à 17.4 keV et 19.6 keV.

II.3 Dispositif SFINX (*Solidification Furnace with IN-situ X-radiography*)

Le dispositif SFINX, acronyme de *Solidification Furnace with IN situ X-radiography*, a été développé par l'équipe MCA, en collaboration avec la compagnie suédoise SSC (*Swedish Space Corporation*). Ce dispositif est une copie du dispositif XRMON-GF (GF pour *Gradient Furnace*), qui a été utilisé pour l'expérience en fusée sonde MASER-12 (*Nguyen-Thi et al. 2013*) et du dispositif XRMON-PFF (*Parabolic Flight Facility*) utilisé lors de différentes campagnes de vols paraboliques (*Abou-Khalil et al. 2016*)

SFINX est constitué de deux parties : un four à gradient de température et le système d'imagerie X, chacune pilotée grâce un ordinateur. Selon les sujets étudiés, le dispositif peut être tourné pour mettre le four en position horizontale (Figure II-7) ou verticale.

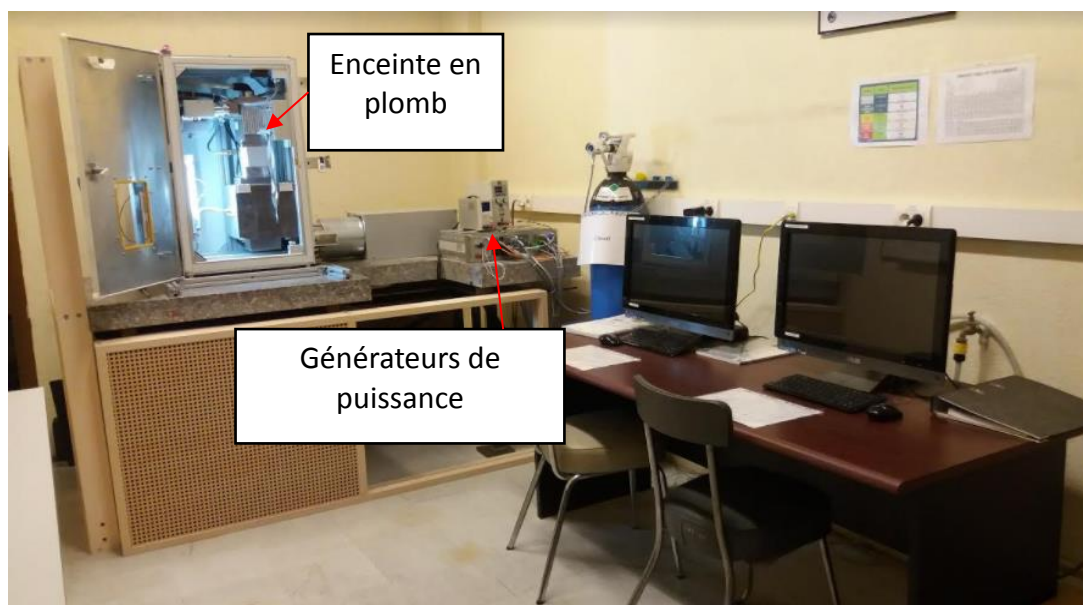


Figure II-7 : Vue d'ensemble du dispositif SFINX avec le four en position horizontale

Dans les parties suivantes de ce sous-chapitre, je vais présenter en détail la préparation des échantillons et du creuset, le principe de fonctionnement du four et le système d'imagerie par radiographie X.

II.3.1 Échantillon et creuset

a) Préparation de l'échantillon

Au cours de ma thèse, j'ai utilisé uniquement des échantillons d'alliage Al-20% pdsCu affinés avec 0.1% pds Al-Ti-B . Les alliages d'aluminium ont été commandés auprès de la société *Goodfellow* sous la forme de lingots rectangulaire de dimension 50mm x 20mm x 5mm (Figure II-8).

Une vingtaine de lames minces, d'épaisseur moyenne 0.4 mm et de surface 5 mm x 50 mm, sont découpées dans ces lingots avec une tronçonneuse *Buehler* de type « *ISOMET* ». Les lames sont ensuite amincies jusqu'à une épaisseur de 0.2 – 0.25 mm par polissage mécanique sur des papiers abrasifs en carbure de silicium de granulométrie 320, 600 et 1000 grain/cm². Cette épaisseur de 0.2 – 0.25 mm permettra :

- D'obtenir une seule couche de microstructure dans l'épaisseur de l'échantillon, ce qui est crucial pour l'interprétation des images de radiographie X qui donne une image projetée de la microstructure.
- De réduire les mouvements convectifs dans le liquide et ainsi se rapprocher du régime diffusif souvent utilisé dans les modèles analytiques.
- D'obtenir une transmission suffisante pour une radiographie X de bonne qualité comme il a été expliqué dans les généralités sur la radiographie X.



Figure II-8 : Photo montrant le lingot initial, les lames après découpage et un échantillon après polissage.

La dernière étape est un polissage de finition, qui est effectué à l'aide de pâtes diamantées de 6 μm puis 3 μm . Cette dernière opération sert à améliorer l'état de surface de l'échantillon pour obtenir un poli miroir et un échantillon d'épaisseur relativement constante.

b) Mise en place de l'échantillon dans le creuset

L'échantillon ainsi préparé est encapsulé dans un creuset composé d'un assemblage de deux feuilles de carbone vitreux d'une épaisseur de 0.15 mm séparés par une entretoise en acier inoxydable d'une épaisseur de 0.15 mm (Figure II-9a). Le choix du carbone vitreux pour le creuset est justifié par son faible coefficient d'atténuation aux rayons X. En contrepartie, l'utilisation de carbone vitreux nécessite de travailler dans une atmosphère d'azote (taux d'oxygène inférieure à 4%) à haute température pour éviter l'oxydation du matériau.

L'entretoise en inox permet de positionner précisément l'échantillon au centre du creuset. La partie inférieure du cadre sert à fixer le creuset au bras de translation du four.

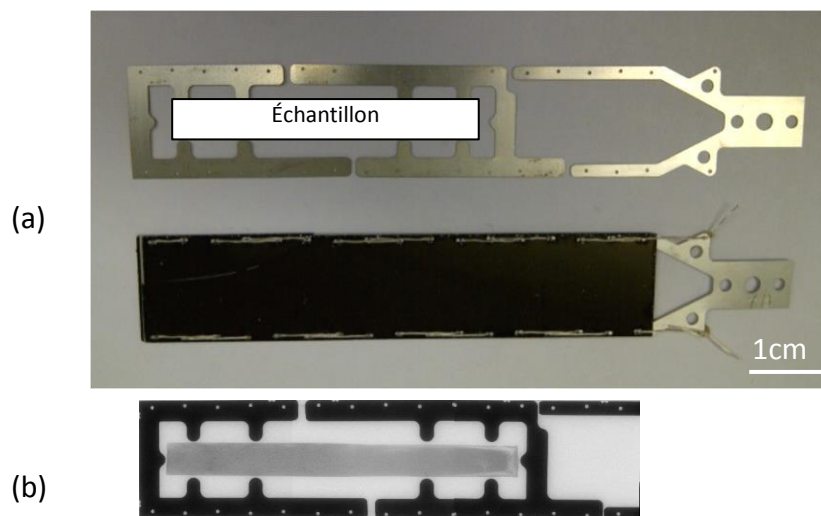


Figure II-9 : (a) Photo de l'entretoise en acier inoxydable et du creuset en carbone vitreux ; (b) Radiographie de l'échantillon à l'intérieur du creuset

Les différentes parties du creuset sont maintenues entre elles par un fil de silice de 0.2 mm de diamètre, qui est inséré manuellement à travers des orifices prévus à cet effet sur les bords des feuilles de carbone vitreux. Cette étape est la plus délicate et demande beaucoup de minutie.

L'ensemble échantillon et creuset ne doit pas dépasser une épaisseur totale de 0.69 mm qui correspond à la taille de l'ouverture dans le four. Une fois l'ensemble « creuset – échantillon » préparé, une vérification du centrage de l'échantillon est réalisée par radiographie X avant l'expérience de solidification proprement dite (Figure II-9b). En cas de mauvais centrage, l'ensemble doit être démonté et remonté correctement.

II.3.2 Four à gradient de température

a) Description du four

Le four utilisé dans le dispositif SFINX est un four à gradient de température. Il est constitué de deux éléments chauffants identiques, un pour la zone froide et l'autre pour la zone chaude (Figure II-10a). Chaque élément chauffant est composé de deux parties en nitrure de bore reliées entre elles par des fils chauffants en Platine-10% Rhodium. Le fil est enroulé sous forme de bobine et la température est uniforme à l'intérieur de chaque élément chauffant. Des demi-carrés sont percés dans chaque partie en nitrure de bore, en haut pour la zone froide et en bas pour la zone chaude (Figure II-10a). L'ensemble permet d'avoir une ouverture par laquelle les rayons X vont traverser l'échantillon et d'obtenir un champ de vue de dimension 5 mm x 5 mm (Figure II-10c).

Deux thermocouples de type K sont placés en haut et en bas du champ de vue et espacés entre eux de 13.5 mm. Ces thermocouples servent à la régulation des deux éléments chauffants et aussi à mesurer le gradient thermique appliqué entre les deux éléments chauffants. Il est important de signaler que le gradient thermique dans l'échantillon est différent du gradient de température appliqué comme il sera discuté dans les chapitres suivants.

Le corps du four est maintenu par une plaque en acier inoxydable et encastré dans une enveloppe en tungstène dans le but de le protéger et de minimiser le transfert de chaleur avec l'extérieur durant les expériences. L'enveloppe en tungstène contient un trou de 5 mm de diamètre aligné avec le champ de vue (Figure II-10c). Des fenêtres en carbone vitreux ferment les ouvertures qui permettent aux rayons X d'illuminer l'échantillon.

b) Performances du four

Pour provoquer la solidification de l'échantillon en gardant le gradient thermique constant, nous appliquons la même vitesse de refroidissement R sur les deux éléments chauffants. Compte tenu du design de ce four (contact, inertie etc.), la gamme de vitesse de refroidissement parfaitement contrôlée est de $[-0.05 \text{ K/s} ; -1.35 \text{ K/s}]$. Au-delà de ces valeurs, la température du four ne suit plus la consigne. Il est néanmoins possible d'obtenir une vitesse de refroidissement de -1.5 K/s en « coupant » l'alimentation des éléments chauffants, ce qui donne la vitesse de refroidissement naturel du dispositif.

La gamme de gradient thermique appliqué dans ce dispositif est de $[3.7 \text{ K/mm} ; 11 \text{ K/mm}]$. Les expériences montrent que les isothermes présentent une inclinaison dans le champ de vue, qui augmente quand la valeur du gradient thermique diminue. Ceci est probablement dû au design du four (pertes thermiques induites par l'ouverture du champ de vue). Pour des valeurs plus petites que 3.7 K/mm , cette inclinaison des isothermes dans le champ de vue est visible et impacte la microstructure de solidification (gradient transverse de microstructure).

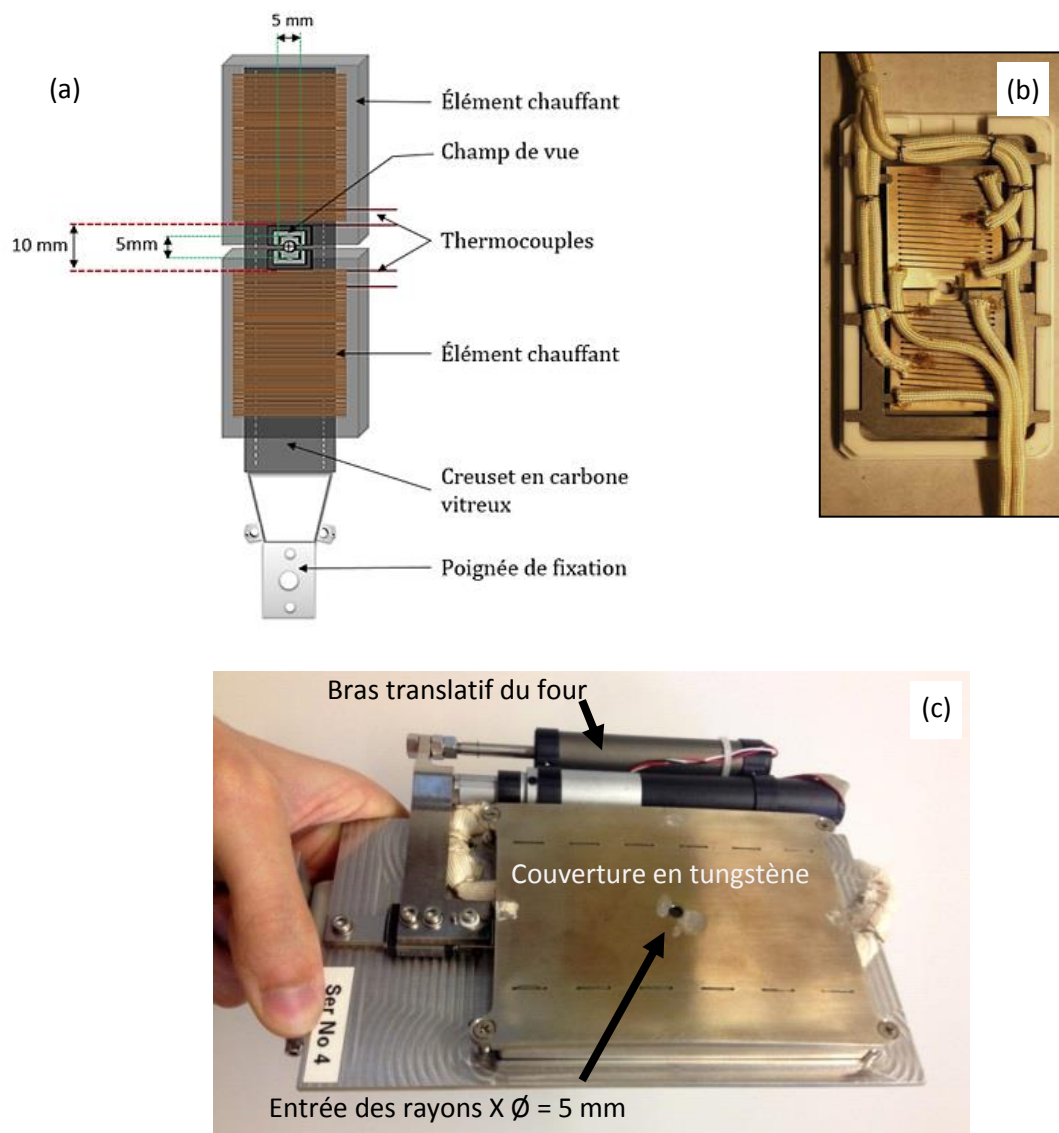


Figure II-10: (a) Schéma du four avec ses différents composants. (b) Photo du four qui montre le branchement des thermocouples et les fils chauffants (c) Four à l'intérieur de l'enveloppe en tungstène.

II.3.3 Système de radiographie X

Afin de caractériser *in situ* et en temps réel la dynamique de la formation de la microstructure de solidification, le dispositif SFINX est équipé d'un système de radiographie X qui comporte trois parties principales (Figure II-11) :

- La source de rayons X :

La source de rayons X est une source micro-focus avec un point focal de $3\text{ }\mu\text{m}$ fabriquée par la société « *FineTec FineFocus Technologies GmbH* ». Cette source émet un faisceau X divergent (cône d'ouverture de 170°).

La cible utilisée est en molybdène, qui a été choisi car l'énergie de ses raies caractéristiques $K_\alpha = 17.4\text{ keV}$ et $K_\beta = 19.6\text{ keV}$ donne un bon compromis entre la transmission et le contraste pour les alliages Al-Cu (§ II.2).

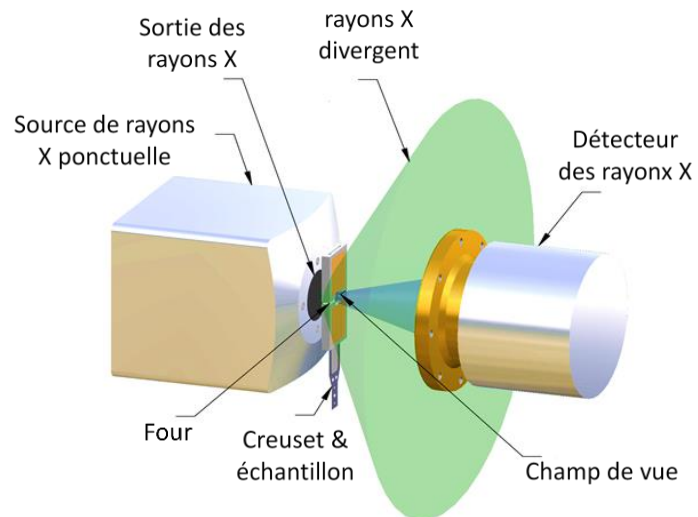


Figure II-11: Schéma du dispositif d'imagerie X de SFINX

- Le détecteur :

Les rayons X transmis sont détectés par une caméra numérique « *Vosskuhler 11000* », contenant un capteur de $24\text{ mm} \times 36\text{ mm}$ avec une taille de pixel de $18\text{ }\mu\text{m}$. Elle est adaptée à la collecte des rayons X grâce à de fines fibres optiques qui protègent le capteur CCD. La caméra est équipée d'un scintillateur placé devant les fibres optiques et positionné 2 mm à l'intérieur de la caméra par rapport à sa surface. Le scintillateur permet de convertir les rayons X en lumière visible. La caméra capte le rayonnement visible, et le transforme en signal électrique pour former une image.

Un refroidisseur de type Peltier et un ventilateur sur la caméra CCD servent à refroidir la caméra pour éviter la détérioration de la qualité d'image lorsque le système est chaud pendant les expériences de solidification.

- Le système d'acquisition :

La caméra et l'enregistrement des images sont contrôlés par un système d'acquisition. Ce système peut acquérir des images avec une taille de 2012 pixels x 1340 pixels (2.7 millions de pixels) non compressées en 16 bits, ce qui correspond à un niveau de gris pour chaque pixel variant de 0 (noir) à 65536 (blanc). Il faut noter que la caméra possède un bruit de fond dont la valeur du niveau de gris est de l'ordre de 3000.

Le temps d'exposition pour l'enregistrement d'une radiographie X dans le dispositif peut varier de 10 ms à 1500 ms. Pour les expériences de solidification, le temps d'exposition typique est de 300-500 ms, ce qui donne une résolution temporelle de l'ordre de 2 à 3 images par seconde.

II.3.4 Traitement des images

a) *Amélioration des images de radiographie X.*

Afin de visualiser les phénomènes qui se produisent lors de la solidification à partir des radiographies enregistrées avec le système d'imagerie, une étape préliminaire est nécessaire qui consiste à faire un pré-traitement des images pour corriger :

- Les défauts inhérents au détecteur, comme le bruit de fond et l'image résiduelle des fibres optiques,
- L'inhomogénéité spatiale et temporelle du faisceau de rayons X,
- Les défauts présents au niveau du creuset.

Le traitement d'image appliqué est basé sur le principe de la correction par *Flat-field*, qui consiste à diviser "pixel par pixel" l'image brute enregistrée à un instant donné de la solidification (Figure II-12a) par une image de référence enregistrée avant le début de la solidification, quand la partie de l'échantillon dans le champ de vue est entièrement liquide (Figure II-12b). Le traitement d'image est réalisé avec le logiciel *ImageJ* (Abramoff et al. 2005). L'image résultante de cette division montre une nette amélioration en termes de lisibilité. Le contraste entre l'aluminium solide (en clair) et le liquide riche en cuivre (en gris foncé) est bien visible (Figure II-12c).

Un traitement des images similaire peut également être obtenu par la soustraction entre l'image brute et l'image de référence. Cependant, cette opération donne des valeurs négatives de pixels qui ne sont pas bien gérées par *ImageJ*, alors que la division donne forcément des valeurs autour de 1, plus faciles à manipuler.

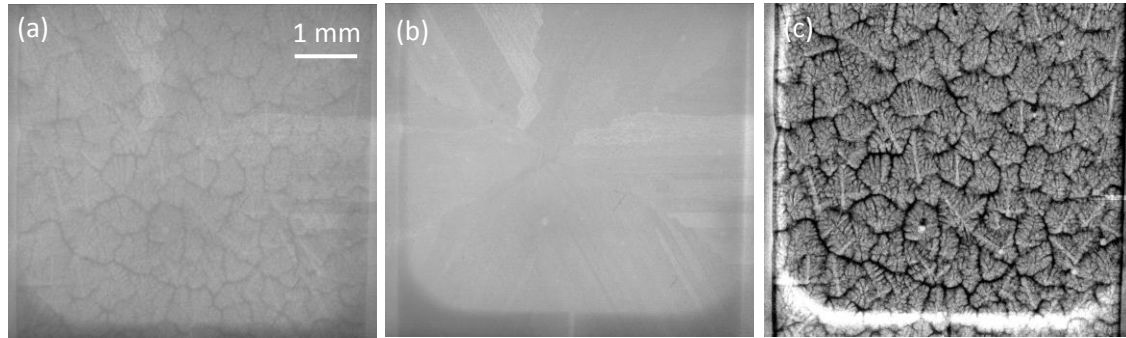


Figure II-12 : (a) Image brute enregistrée au cours de la solidification. (b) Image de référence. (c) Image obtenue après division de (a) par (b).

Pour encore réduire le bruit de l'image de référence et améliorer le traitement, il est possible d'utiliser comme image de référence une image qui est la moyenne de plusieurs images prises avant la solidification.

La première ligne de la Figure II-13a montre des images d'une microstructure à un instant donné arbitraire, après une division par (de gauche à droite) une image de référence unique, une image de référence moyennée sur 10 images enregistrées et une image de référence moyennée sur 50 images enregistrées.

La deuxième ligne de la Figure II-13a montre les histogrammes de la variation de niveau de gris dans le rectangle blanc de chacune des images de la microstructure. Ce rectangle est pris dans la partie encore liquide de l'échantillon. En comparant les trois histogrammes, nous pouvons déjà constater une amélioration du pic de l'histogramme (pic plus marqué et plus fin), ce qui indique une amélioration du rapport signal/bruit.

La Figure II-13b montre l'évolution de la mesure de l'écart-type (ou largeur du pic) en fonction du nombre d'images moyennées pour obtenir l'image de référence. Nous observons une nette diminution de l'écart-type de l'histogramme des niveaux de gris (image plus nette) quand l'image de référence est obtenue par la moyenne de dix images enregistrées successivement. Pour des valeurs supérieures à dix images, la réduction du bruit n'est plus significative.

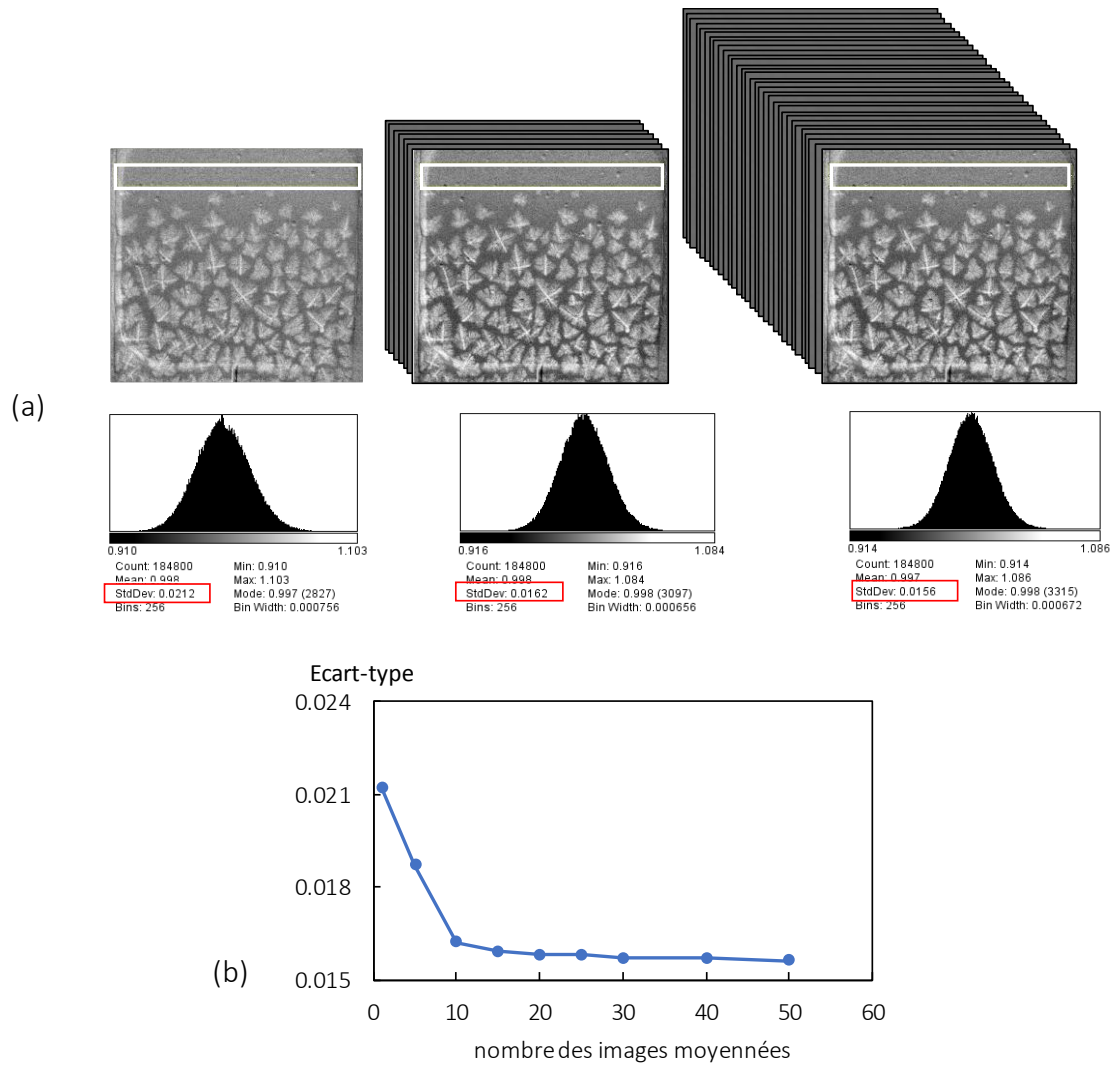


Figure II-13 : (a) Images de la microstructure et les histogrammes correspondant à chacune des images montrant la variation du niveau de gris dans le rectangle blanc avec la variation du nombre moyen d'images qui produit l'image de référence : de gauche à droite, image non moyennée, image moyennée sur 10 et image moyennée sur 50 images ; (b) Graphique montrant l'évolution de la mesure de l'écart-type en fonction du nombre d'images moyennées.

b) Traitement pour révéler le front eutectique

Durant ma thèse, j'ai utilisé un deuxième traitement d'image pour suivre le déplacement du front eutectique en fin de solidification. L'objectif est de calculer la vitesse de déplacement du front eutectique et de vérifier la planéité des isothermes. La solidification eutectique a lieu en fin d'expérience, quand le liquide résiduel entre les grains dendritiques se solidifie à la température eutectique $T_E = 548^\circ\text{C}$. Le passage du front eutectique induit un assombrissement de la partie complètement solide de l'échantillon, difficilement détectable dans les Figure II-14a et Figure II-14b. Les Figure II-14a et Figure II-14b semblent a priori identiques mais la division d'images va révéler des différences minimales entre ces deux images (i.e. le passage du front eutectique).

Le traitement d'image spécifique que nous utilisons pour révéler le passage du front eutectique consiste à diviser pixel par pixel les deux images enregistrées avec un intervalle de temps « bien choisi ». La valeur de l'intervalle de temps choisie dépend de la vitesse de déplacement du front eutectique, qui dépend lui-même du taux de refroidissement et du gradient de température appliqués. L'intervalle de temps doit être suffisamment long pour distinguer le front eutectique mais suffisamment court pour obtenir une position précise de celui-ci (Figure II-14c).

Dans la Figure II-14c, grâce à la division d'image, toutes les parties identiques dans les deux images « disparaissent » et donc tous les grains dendritiques, qui n'évoluent quasiment plus dans cette partie finale de l'expérience. Le traitement d'image donne une image globalement grise. Cependant, on voit apparaître une fine bande sombre (dans le rectangle blanc) qui correspond au déplacement du front eutectique lors du refroidissement continu de l'échantillon.

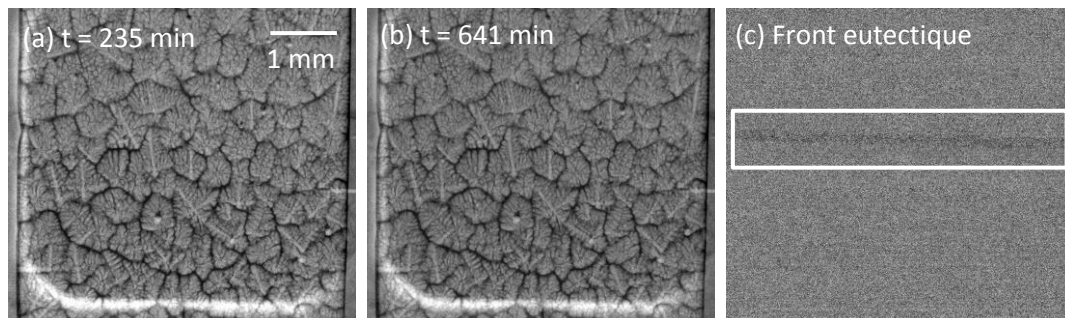


Figure II-14 : (a) Image enregistrée à $t = 235 \text{ min}$, (b) Image enregistrée à $t = 641 \text{ min}$ (c) Image résultant de la division de (b) par (a) et visualisant le front eutectique (ligne noire dans le rectangle blanc).

En répétant ce traitement tout au long du passage de l'eutectique (Figure II-15a, b et c), nous pouvons suivre le déplacement du front eutectique le long du champ de vue en fonction du temps et ensuite vérifier la planéité du front eutectique, donc des isothermes, et en déduire la vitesse de déplacement de l'isotherme $T = T_E$.

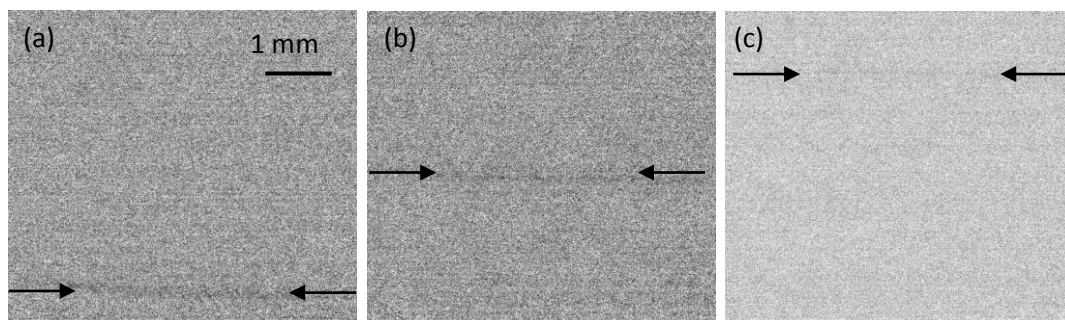


Figure II-15 : (a)-(b)-(c) Images traitées montrant le déplacement du front eutectique dans le champ de vue.

II.4 Caractérisation du système d'imagerie

Comme toutes les sources de laboratoire, la source de rayons X du dispositif SFINX est une source divergente. Idéalement, pour obtenir un grandissement maximal (et donc une résolution maximale) et un maximum de photon X, il faudrait placer l'échantillon (donc le four) le plus près possible de la source de rayons X. Cependant, placer le four très près de la source réduit forcément le champ de vue et empêche d'avoir une observation complète de l'échantillon. De plus, placer le four trop près de la source entraîne une élévation de la température de la cible, ce qui n'est pas recommandé.

Pour caractériser le système de radiographie X de SFINX (grandissement, flux de photon incident et temps d'exposition en fonction des distances respectives du four et du détecteur), nous avons réalisé une série de test avec un échantillon témoin de forme identique à un échantillon de solidification. L'échantillon utilisé est une lame de molybdène de largeur connue $d_1 = 1,5$ mm. Le molybdène a été choisi pour sa forte absorption des rayons X, ce qui permet d'avoir un bon contraste sur les bords de l'objet. L'échantillon est fixé dans un creuset en carbone vitreux, comme pour les échantillons de solidification. Il est ensuite introduit dans le four. Nous présentons ci-après les résultats de ces tests.

II.4.1 Grandissement

Comme la source de rayons X du dispositif SFINX produit un faisceau divergent, les images enregistrées sur le détecteur sont agrandies par rapport à l'objet illuminé. Le grandissement est une grandeur sans dimension donné par le rapport entre la taille de l'image de l'objet et la taille réelle de l'objet. Le grandissement peut être déterminer par deux méthodes :

- Le grandissement direct est déterminé à partir de l'image de l'objet sur le détecteur et de la taille réelle de l'objet :

$$M_d = \frac{d_2}{d_1} \quad \text{Eq. II-6}$$

avec d_1 une dimension caractéristique de l'objet (pour ces mesures $d_1 = 1.5$ mm) et d_2 la valeur de cette dimension caractéristique mesurée sur le détecteur (Figure II-16). Dans nos tests, la taille de l'image est mesurée en pixel à partir des radiographies enregistrées par le détecteur, puis convertie en unité de longueur connaissant la largeur du pixel (= 18 μ m).

- Géométriquement, le grandissement peut aussi être déduit des distances l_1 , distance entre la source de rayons X et l'objet, et l_2 , distance entre la source de rayon X et le détecteur (Figure II-16) :

$$M_g = \frac{l_2}{l_1} \quad \text{Eq. II-7}$$

La difficulté dans cette mesure réside dans la connaissance précise de la distance l_1 (distance source - échantillon) car ce dernier est inséré dans un four, lui-même placé sur une base.

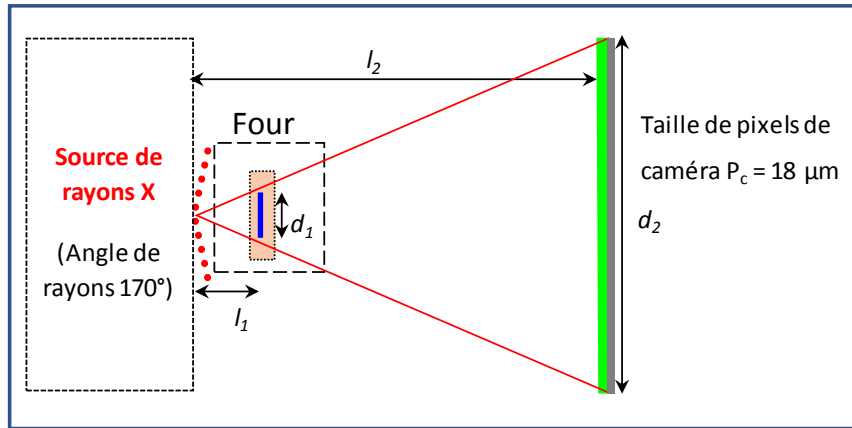


Figure II-16 : Schéma du système d'imagerie montrant les distances l_1 et l_2 utilisées pour déterminer le facteur de grandissement géométrique, et les distances d_1 et d_2 utilisées pour déterminer le grandissement direct.

a) Détermination de la distance minimale Source-Échantillon

Dans un premier temps, nous avons cherché à déterminer avec précision la distance minimale entre la source et l'échantillon. Nous avons réalisé une série de test en plaçant le four à la position la plus proche possible de la source de rayons X et nous avons ensuite fait varier la position du détecteur et donc la distance l_2 entre la source et le détecteur (Figure II-17). La distance maximale de l_2 est imposée par la taille de l'enceinte expérimentale et sa valeur maximum est de 10,4 cm (Figure II-17).

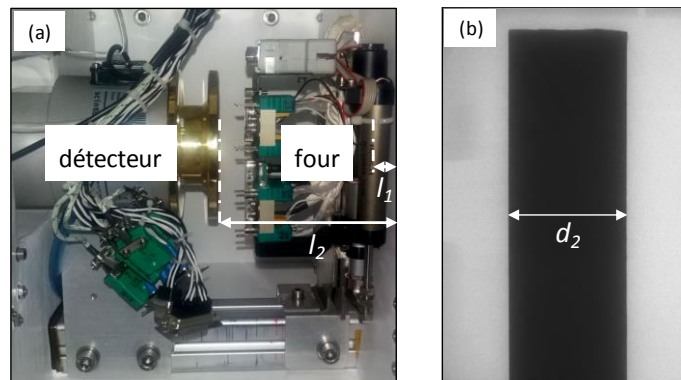
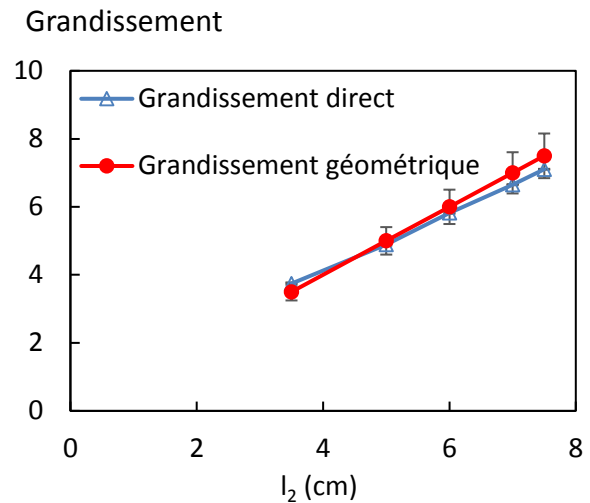


Figure II-17 : (a) Photographie du four et du détecteur, avec les distances l_1 et l_2 mesurées pour déterminer le grandissement. (b) Radiographie de l'échantillon de molybdène (d_2 est la largeur de l'échantillon).

Une image de l'échantillon a été enregistrée pour chaque position du détecteur et les valeurs correspondantes de grandissement géométrique et de grandissement direct ont été mesurées. Comme attendu, les résultats montrent que le grandissement augmente de manière linéaire avec l'augmentation de la distance l_2 (Figure II-18). Les valeurs de grandissement obtenues par les deux méthodes coïncident pour une distance source –

échantillon de $l_1 = 1 \text{ cm}$. Le plus petit grandissement dans SFINX est donc estimé à environ 3,5 et le plus grand grandissement est de l'ordre de 7,5.

Figure II-18 : Variation du grandissement en fonction de la distance l_2 .

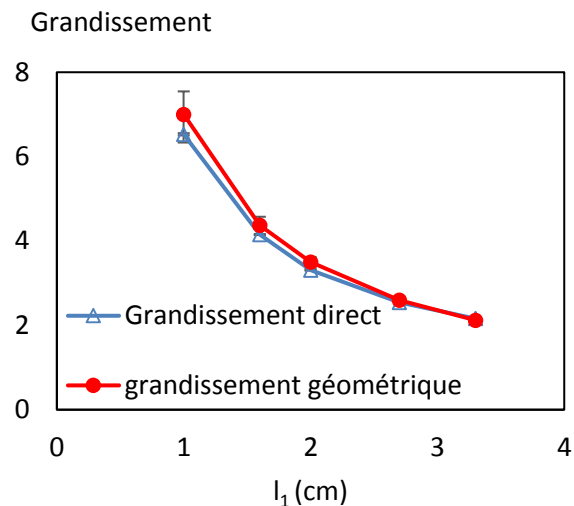


b) Variation du grandissement en fonction de la position de l'échantillon

Dans un second temps, nous avons étudié l'influence de la position du four (donc de l'échantillon) sur le grandissement, pour une position du détecteur fixée à une distance $l_2 = 7 \text{ cm}$, valeur choisie pour que les bords de l'échantillon soient toujours visibles dans les radiographies. La Figure II-19 montre que le grandissement de l'image diminue avec l'augmentation de la distance entre la source de rayons X et l'échantillon comme attendu d'après (Eq. II-7).

Les valeurs du grandissement géométrique et du grandissement direct obtenues sont à nouveau très proches. La différence observée peut être attribuée principalement à l'incertitude sur la mesure des distances. L'erreur sur la mesure est significativement plus petite avec le grandissement direct. C'est donc cette méthode qui sera retenue lors de l'analyse de nos expériences de solidification pour déterminer les dimensions réelles de l'échantillon à partir des radiographies.

Figure II-19 : Variation de grandissement en fonction de l_1



II.4.2 Flux de photons incident

La quantité de photons incident est un autre paramètre important pour la qualité des images. Nous avons refait une série de tests avec l'échantillon (le four) placé le plus près possible de la sortie des rayons X soit $l_1 \approx 1$ cm et nous avons fait varier l_2 . Pour chaque position du détecteur, nous avons mesuré l'intensité moyenne par pixel (mesurée en niveau de gris), en absence de tout échantillon dans une zone carrée choisie aléatoirement dans le champ de vue (carré rouge Figure II-20a).

La Figure II-20b montre que l'intensité moyenne reçue par le détecteur (ou nombre de photons) diminue quand le détecteur est éloigné de la source, ce qui est attendu puisque la surface coupée du faisceau est plus petite. Dans nos expériences de solidification, une position raisonnable pour le détecteur par rapport à la source de rayons X doit correspondre à un grandissement suffisant (l_2 grand) avec une intensité moyenne d'au moins 30 000 en niveaux de gris, ce qui correspond à un rapport signal sur bruit de 10. Pour satisfaire à ces deux conditions, nous avons adopté la position $l_2 \sim 5$ cm pour toutes les expériences de solidification, soit un agrandissement d'un facteur 5.

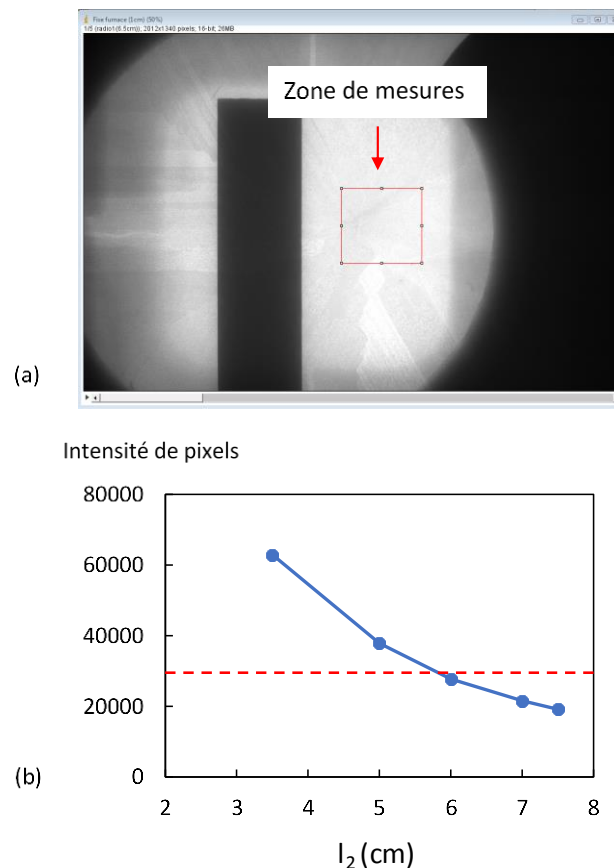


Figure II-20 : (a) Zone de mesure de l'intensité moyenne sur le détecteur. (b) Variation de l'intensité (mesurée en niveau de gris) d'un pixel en fonction de la distance l_2 . La ligne pointillée correspond à un rapport signal sur bruit de l'ordre de 10 au niveau du détecteur.

II.4.3 Temps d'exposition

L'intensité des pixels est liée aussi au temps d'exposition du détecteur aux rayons X. Cette intensité doit elle aussi être optimisée. Afin de déterminer l'influence du temps d'exposition sur l'intensité des pixels dans une images, l'échantillon a de nouveau été placé le plus proche possible de la source de rayon X et le détecteur a été fixé à une distance $l_2 = 5$ cm (valeur typique pour les expériences de solidification). Pour cette configuration, des images ont été enregistrées avec des temps d'exposition variant de 10 ms à 1500 ms (valeurs largement inférieure et supérieure au temps d'exposition typique des expériences de solidification qui est de 300-500 ms). Le résultat de ces mesures est présenté dans la Figure II-21.

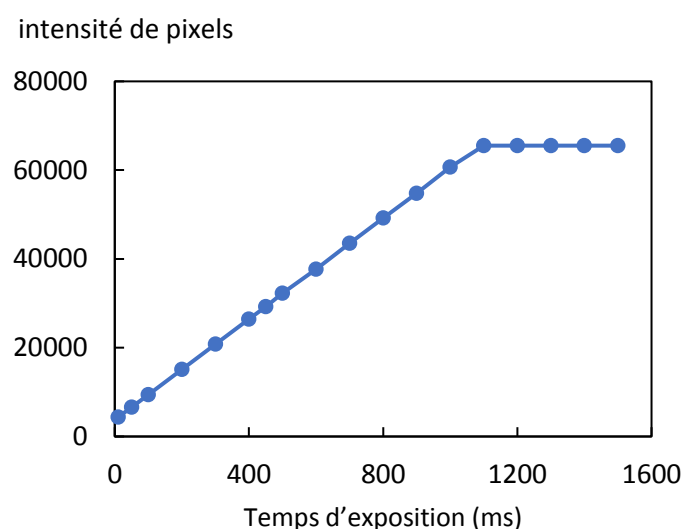


Figure II-21 : Variation de l'intensité des pixels en fonction du temps d'exposition.

L'intensité des pixels augmente linéairement avec le temps d'exposition jusqu'à une valeur de 1100 ms. Pour des valeurs du temps d'exposition supérieure à 1100 ms, il y a saturation des capteurs CCD de la caméra, qui va entraîner une perte d'information sur les contrastes dans les images. Il faut donc éviter d'utiliser des temps d'exposition trop long.

D'autre part, pour un temps d'exposition trop court le nombre de photons recueillis par le détecteur peut être trop faible ce qui donne une image « bruitée », dans laquelle il sera difficile de distinguer les différents éléments de la microstructure de solidification. Une image optimale est donc donnée par un temps d'exposition le plus long possible sans saturer les capteurs de la caméra CCD. Ceci sera à vérifier avant chaque expérience de solidification.

II.5 Détermination des paramètres de solidification

L'objectif de ma thèse est d'étudier l'influence respective des paramètres de contrôle, la vitesse de croissance V et le gradient de température G , sur les caractéristiques de la microstructure équiaxe de solidification, la taille et la morphologie de grains (Figure II-22). Par conséquent, il était crucial de déterminer avec précision les valeurs des deux paramètres de contrôle au niveau de l'échantillon pour toutes les expériences.

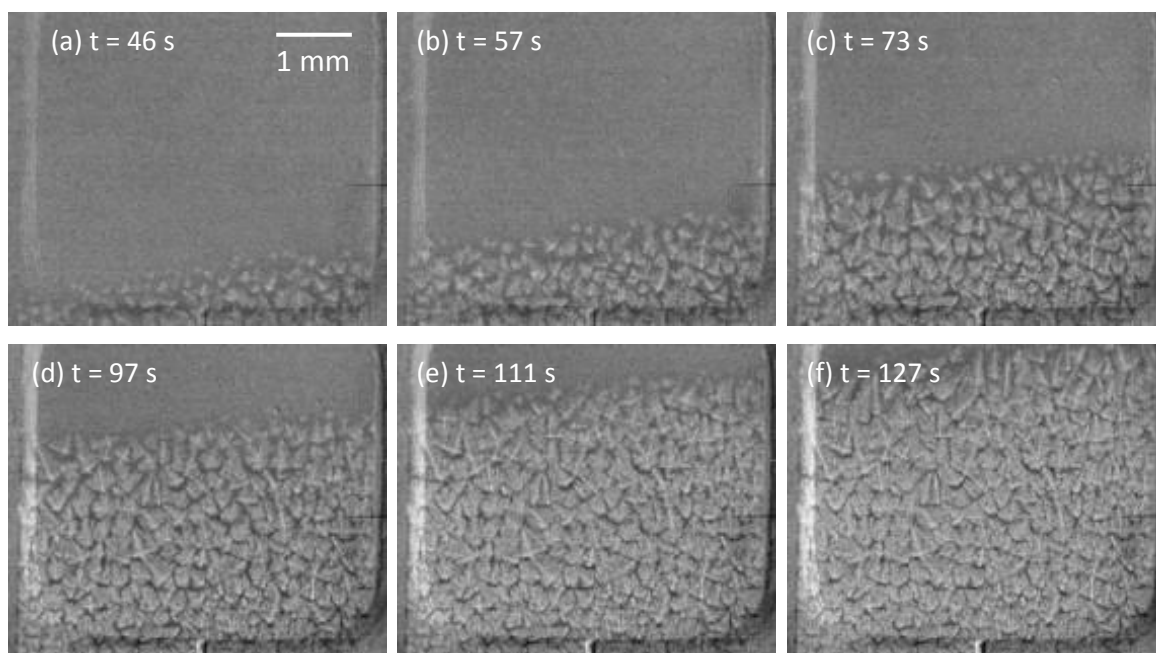


Figure II-22 : Série de radiographies montrant l'évolution de la microstructure à différents instants pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10$ K/mm et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 47.2$ $\mu\text{m/s}$.

II.5.1 Détermination de la vitesse de déplacement du front de solidification

Grâce à l'observation *in situ* et en temps réel par radiographie X, la vitesse de solidification peut être mesurée à partir de l'avancée du front de germination. Le principe de cette mesure est le suivant : à partir des radiographies X, il est possible de déterminer à chaque instant la position des sites de germination dans le champ de vue au cours de temps (Figure II-23a). En faisant l'hypothèse que la germination des nouveaux grains se fait à peu près à la même température (proche du liquidus pour un alliage affiné), nous pouvons en déduire la vitesse de déplacement des isothermes que nous assimilerons à la vitesse de croissance $\langle V \rangle$. Le suivi de la propagation du front de germination dans le champ de vue peut se faire par deux méthodes différentes suivant la gamme de vitesse de solidification et la microstructure obtenue :

a) Méthode 1 : Pointage des grains

Cette méthode est utilisée seulement pour des vitesses relativement basses, quand le nombre de grains est dénombrable. À partir des radiographies X (Figure II-23a), une macro que nous avons écrite dans le logiciel *ImageJ* permet de récupérer les coordonnées (x,y) de chaque site de germination en pointant manuellement sa position dans les images. En traçant la coordonnée « y » de chaque site de germination en fonction du temps t de son apparition, on peut calculer la vitesse de croissance moyenne $\langle V \rangle$ de la propagation de front de germination (Figure II-23b). Nous pouvons remarquer sur la Figure II-23b que la variation de $y(t)$ n'est pas parfaitement linéaire. D'une manière générale, la vitesse de croissance est plus faible dans la partie haute du champ de vue. Cette variation de vitesse est liée à la variation du gradient de température le long du champ de vue, ce que nous montrerons dans la partie II.5.2.

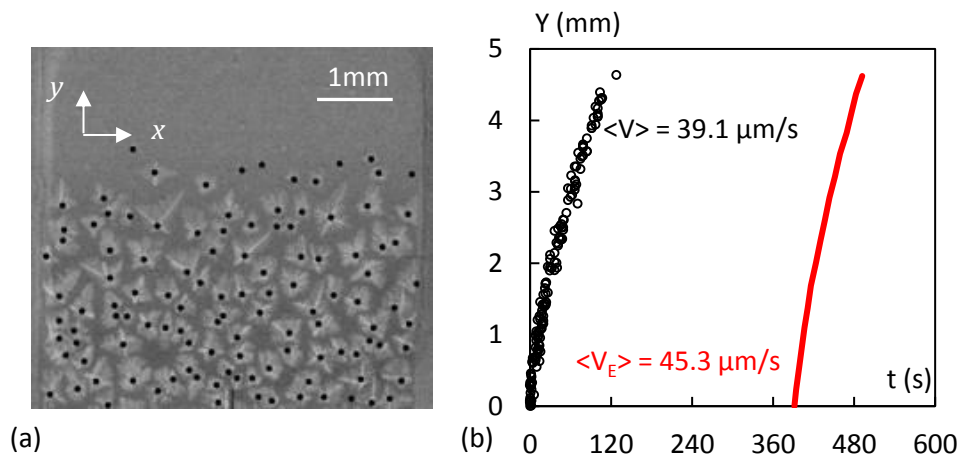


Figure II-23 : (a) Radiographie montrant les sites de germination des grains marqués par des points noirs après pointage pour un alliage Al-20%Cu affiné : $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$, $R = -0.15 \text{ K/s}$. (b) Courbe du déplacement de la coordonnée y (centre de germination) en fonction du temps. La pente donne la vitesse de croissance moyenne. Pour cette expérience $\langle V \rangle = 39.1 \text{ μm/s}$. La courbe rouge correspond à la vitesse de l'eutectique.

b) Méthode 2 : Suivi du front effectif

Pour des vitesses de refroidissements plus rapides le nombre de grains est élevé, les grains sont de petite taille et la résolution temporelle et spatiale est insuffisante (Figure II-24). De plus, compte tenu de leur petite taille, les grains se superposent dans l'épaisseur de l'échantillon, ce qui fausse les mesures par la *Méthode 1*. Par conséquent, nous avons utilisé une deuxième méthode pour mesurer la vitesse de croissance dans le cas des refroidissements très élevés. Pour ces grandes vitesses, un front effectif est nettement visible, qui se déplace couche par couche (lignes en pointillés Figure II-24a). À partir de la mesure du déplacement du front effectif en fonction du temps, on en déduit la vitesse de croissance moyenne $\langle V \rangle$ de l'expérience (Figure II-24b). Il faut noter que cette méthode a été aussi utilisée pour les vitesses très basses, quand la structure est purement colonnaire.

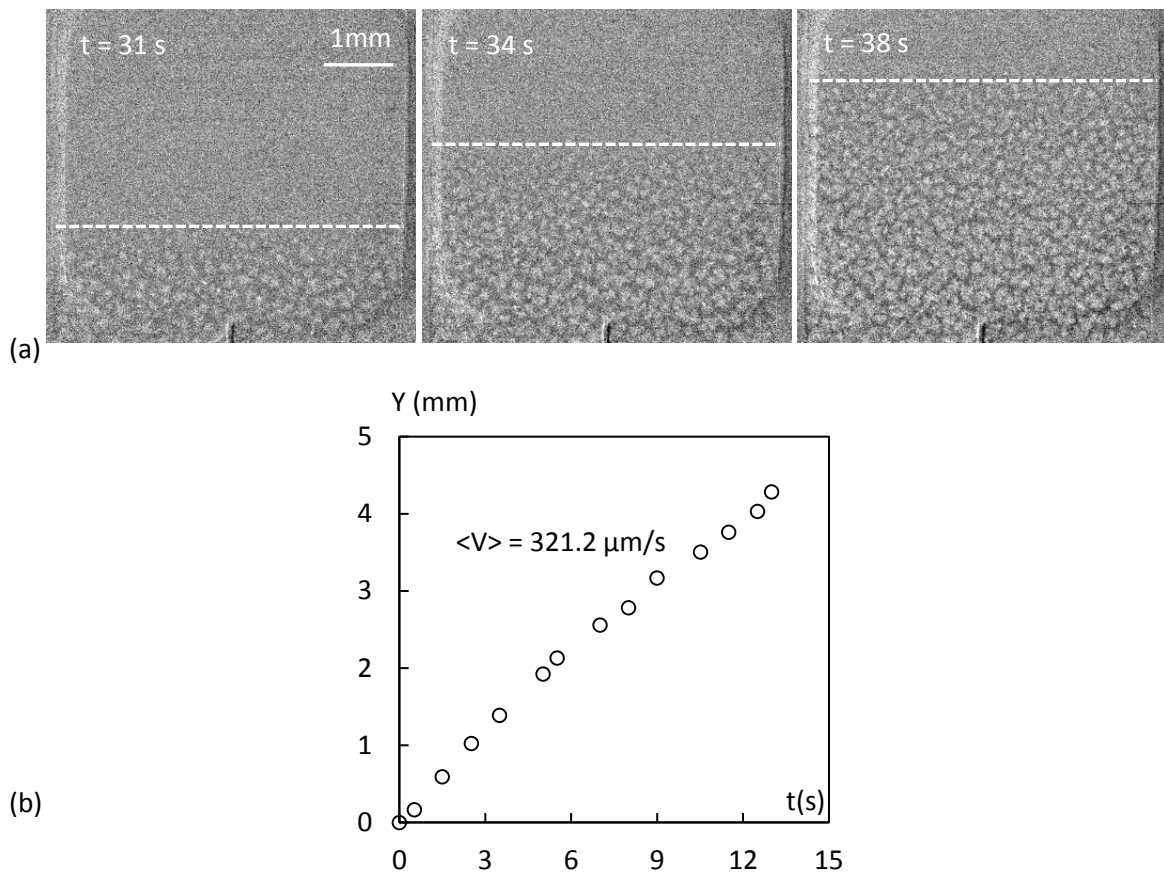


Figure II-24 : (a) Séquence de radiographies montrant le déplacement du front effectif au cours du temps (Al-20%Cu affiné, $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$, $R = -1.35 \text{ K/s}$) ; (b) Courbe de déplacement de la coordonnée y (ligne du front effectif) en fonction du temps. La pente de la droite passant par ces points donne la vitesse de croissance moyenne, qui est pour cette expérience $\langle V \rangle = 321 \mu\text{m/s}$.

Pour toutes les expériences, nous avons comparé la vitesse de déplacement du front de germination $\langle V \rangle$ à la vitesse du front eutectique V_E mesurée à la fin d'expérience comme montré dans II.3.4b. D'une manière générale, les vitesses mesurées pour le front eutectique sont plus rapides que les vitesses mesurées avec le déplacement du front de germination (courbe rouge, Figure II-23b). Les écarts sont de l'ordre de 20-30 % pour des expériences réalisées avec un faible gradient de température, et de l'ordre de 3-14 % pour de forts gradients de température.

Cette différence entre les deux vitesses (eutectique et front de germination) peut s'expliquer par un changement de conductivités thermiques pour les deux fronts. En effet, la solidification eutectique correspond à une phase de solidification dans un milieu pour lequel la fraction solide est plus importante que la fraction du liquide à cause de la présence des grains équiaxes. En supposant la conductivité thermique de la zone pâteuse (mi-solide/mi-liquide) plus élevée que celle du liquide, la valeur du gradient de température dans la zone pâteuse sera d'autant plus faible. Dans nos expériences, le taux de refroidissement R est

imposé. En utilisant la relation $R = GV$, on en déduit qu'une diminution du gradient de température induit une augmentation de la vitesse des isothermes, donc de la vitesse du front eutectique par rapport à la vitesse du front de germination.

II.5.2 Gradient de température G dans l'échantillon

Expérimentalement, la mesure du gradient de température à l'intérieur de l'échantillon est difficile. Dans les expériences classiques de solidification, sans observation *in situ*, le gradient de température dans l'échantillon est pris soit identique au gradient de température des éléments chauffants, soit mesuré directement grâce à des thermocouples. L'utilisation de thermocouples pour effectuer les mesures donnerait des résultats faux dans nos expériences, car la thermique serait fortement modifiée.

Dans nos expériences, grâce à l'observation *in situ*, nous avons montré qu'il était possible de déterminer avec précision la vitesse de croissance des microstructures (section précédente). À partir de la relation $R = GV$, il est possible de déduire le gradient de température dans l'échantillon, connaissant la vitesse de refroidissement :

$$G = \frac{R}{V} \quad \text{Eq. II-8}$$

Les mesures montrent que la vitesse de croissance décroît dans le champ de vue, ce qui est dû à une variation du gradient de température le long du champ de vue, lié à la géométrie du four. À partir de la position des sites de germination, nous avons déterminé la vitesse moyenne V_{bas} dans la zone froide du champ de vue (symboles bleus dans la Figure II-25a) et la vitesse moyenne V_{haut} dans la zone chaude du champ de vue (symboles rouges dans la Figure II-25a). Nous en avons déduit les valeurs des gradients de température dans les parties basse et haute du champ de vue, respectivement G_{min} et G_{max} . Un gradient de température moyen G_{moy} est finalement calculé pour chaque série d'expérience.

Un calcul du gradient de température moyen G_{moy} est également possible à partir de la vitesse moyenne pour chaque expérience Figure II-25b. Nous obtenons des résultats identiques à la première méthode.

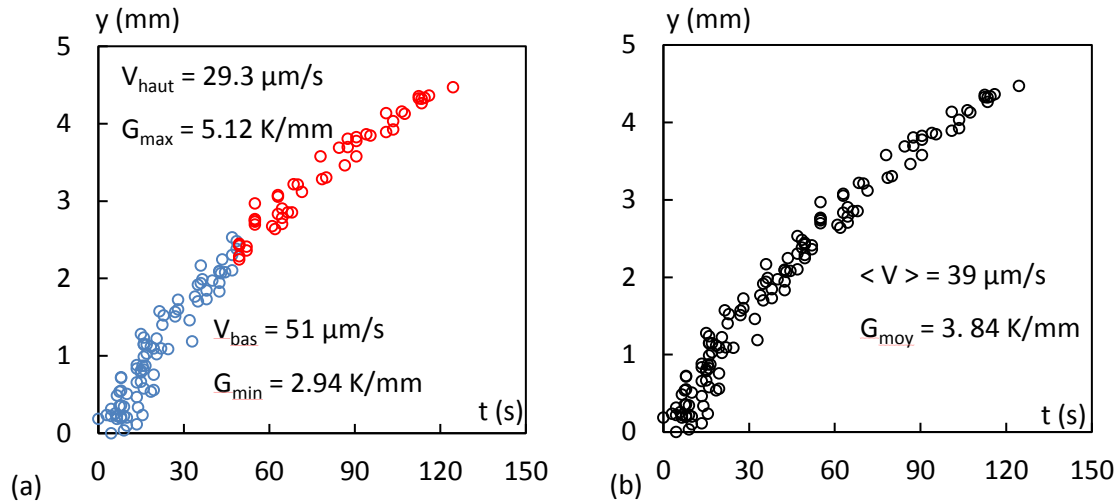


Figure II-25 : (a) Gradients de température G_{min} en bas du champ de vue, et G_{max} en haut du champ de vue ; (b) Gradient de température moyen G_{moy} dans tout le champ de vue.

II.6 Outils de caractérisation de la structure de grains

Pour étudier les effets des paramètres de solidification sur la structure de grains nous devons d'abord définir les caractéristiques importantes de cette structure. Ces caractéristiques portent sur la taille (ou densité de grains) et la morphologie des grains (allongement, orientation de croissance).

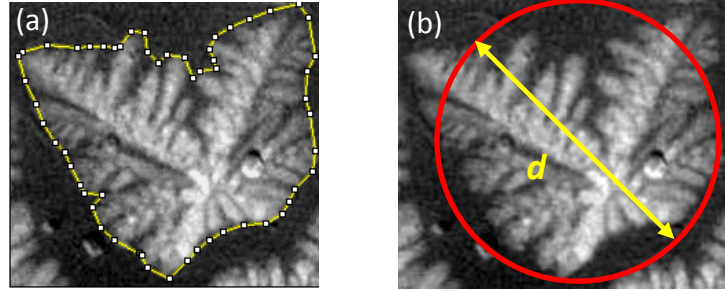
II.6.1 Taille des grains

Pour des images 2D obtenues par radiographie X, la taille d'un grain peut être définie par son périmètre ou sa surface. La difficulté majeure dans ces mesures est liée à la forme complexe des grains dendritiques, avec des bras primaires, secondaires voire tertiaire. Une simplification courante consiste à assimiler un grain à son enveloppe (ligne jaune dans la Figure II-26a), c'est-à-dire la surface contenant principalement le grain solide mais aussi un peu du liquide intra-dendritique. Pour cette enveloppe (ou grain) :

- Le périmètre est une mesure délicate, très sensible aux erreurs faites lors du traçage du contour des grains dendritiques.
- La surface du grain est une grandeur plus facile d'accès, donné simplement par le nombre de pixels. Cependant, par habitude et aussi pour comparaison avec les modèles, nous utiliserons plutôt le « diamètre du disque de surface équivalente » noté d (Figure II-26b) et qui est défini à partir de S la surface du grain :

$$d = 2 \left(\frac{S}{\pi} \right)^{1/2} \quad \text{Eq. II-9}$$

Figure II-26 : (a) Périmètre du grain, (b) Disque équivalent de diamètre d de la surface d'un grain équiaxe.



Suivant les expériences et donc la taille des grains, il est possible de déterminer :

- Soit un diamètre moyen des grains d
- Soit un histogramme pour le diamètre des grains.

Pour nos expériences, la taille et le nombre de grains peuvent grandement varier selon les paramètres expérimentaux. Par conséquent, nous avons aussi utilisé différentes méthodes pour effectuer ces mesures, que nous allons décrire ci-dessous.

a) Mesure de la taille moyenne d'une structure de grains

- Méthode par pointage des grains : pour les basses vitesses de refroidissement, les grains étant en petit nombre mais de grande taille, nous avons choisi de déterminer le diamètre moyen des grains à partir de la mesure de leur surface moyenne :

$$d = 2 \left(\frac{A}{\pi N_g} \right)^{1/2} \quad \text{Eq. II-10}$$

Avec A la surface complète du champ de vue, et N_g le nombre de grains total dans la surface A , déterminés par le pointage manuel des sites de germination des grains dès qu'ils sont visibles dans le champ de vue. Il faut noter qu'à partir de ces mesures, nous pouvons déduire aussi la densité des grains $n_g = N_g/A$.

Pour les vitesses de refroidissement les plus élevées, la résolution temporelle qui est de 2 images/seconde est petite, ce qui fait que les grains apparaissent rapidement en très grand nombre et de très petite taille. Ceci rend le pointage des grains dans tout le champ de vue difficile avec une erreur importante sur le nombre de grains pointés. Par conséquent, le pointage a été fait dans une zone représentative au centre de l'échantillon comme le montre la Figure II-27.

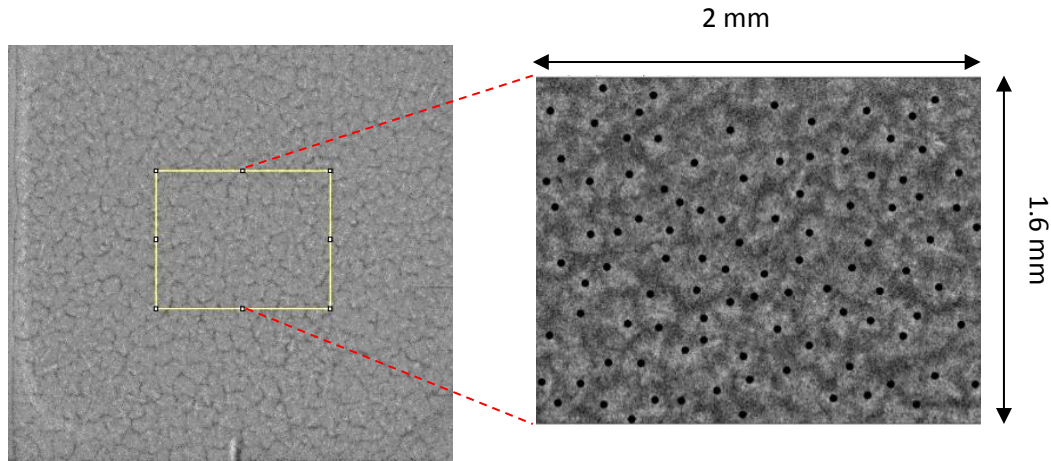


Figure II-27 : Image montrant la zone représentative pour compter le nombre de grains pour les vitesses rapides (expérience réalisée avec $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$, $V = 206 \text{ } \mu\text{m/s}$)

- Une autre méthode pour obtenir la taille moyenne des grains est « la méthode des intercepts » ou des droites sécantes. Cette méthode consiste à tracer n lignes aléatoires (une dizaine dans notre cas) dans le champ de vue (Figure II-28) ; pour chaque ligne (de longueur l), on compte le nombre de grains coupés par la ligne (N_g) ce qui nous donne le diamètre moyen des grains pour la ligne considérée. Le diamètre moyen de la microstructure est obtenu en faisant la moyenne de tous les diamètres moyens obtenus.

$$d = \left(\sum_n \frac{l}{N_g} \right) / n \quad \text{Eq. II-11}$$

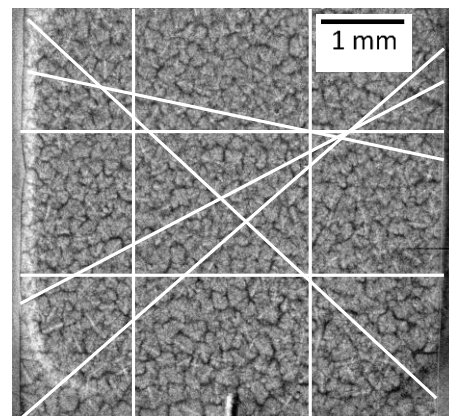


Figure II-28 : Image montrant les lignes tracées aléatoirement pour déterminer le diamètre moyen des grains. Cette image correspond à l'expérience faite à $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $V = 206 \text{ } \mu\text{m/s}$.

Les deux méthodes (pointage et intercepts) donnent sensiblement le même résultat (avec un écart $< 5\%$) pour les vitesses les plus rapides quand le nombre de grains est élevé et la morphologie des grains uniforme. Pour les vitesses les plus faibles, cet écart peut atteindre 10-15% ce qui n'est pas étonnant à cause du faible nombre de grains, avec des tailles parfois très différentes et des formes plus ou moins allongées, et un liquide inter-dendritique (entre les grains) plus important.

Pour les plus faibles vitesses et à forts gradient de températures, le nombre de grains est d'ailleurs tellement faible (de deux à quelques dizaines) et les grains sont très allongés et dans certains cas continuent de croître en dehors du champ de vue. Dans ce cas, les valeurs obtenues ne sont pas significatives et ne seront pas prises en compte dans nos analyses.

b) Histogramme de taille des grains

Des informations supplémentaires sont obtenues à partir des histogrammes de taille des grains. Pour chaque expérience, l'histogramme est obtenu par une procédure semi-manuelle. Dans un premier temps, le contour de chaque grain est défini manuellement (Figure II-29b). Il faut souligner que l'aide de l'observation *in situ* est nécessaire pour déterminer sans ambiguïté le contour de chaque grain par rapport à ses voisins. La surface de chaque grain est donnée par le logiciel *ImageJ* qui contient une fonction prédéfinie donnant les surfaces. Finalement, l'histogramme en fréquence des tailles peut être tracé (Figure II-29c). Un ajustement par une loi de type gaussienne (courbe en rouge) peut alors être effectuée et le diamètre du disque de surface équivalente déduit ainsi que la largeur caractéristique à mi-hauteur. L'ajustement est réalisé à l'aide du logiciel « *Fityk* » (Wojdyr, 2010) et la fonction Gaussienne est donnée par :

$$g(d) = h \exp \left(-\ln(2) \left(\frac{d-d_{pic}}{\sigma} \right)^2 \right) \quad \text{Eq. II-1}$$

Avec h la hauteur du pic de la fonction gaussienne, d_{pic} le centre du pic et σ la largeur à mi-hauteur.

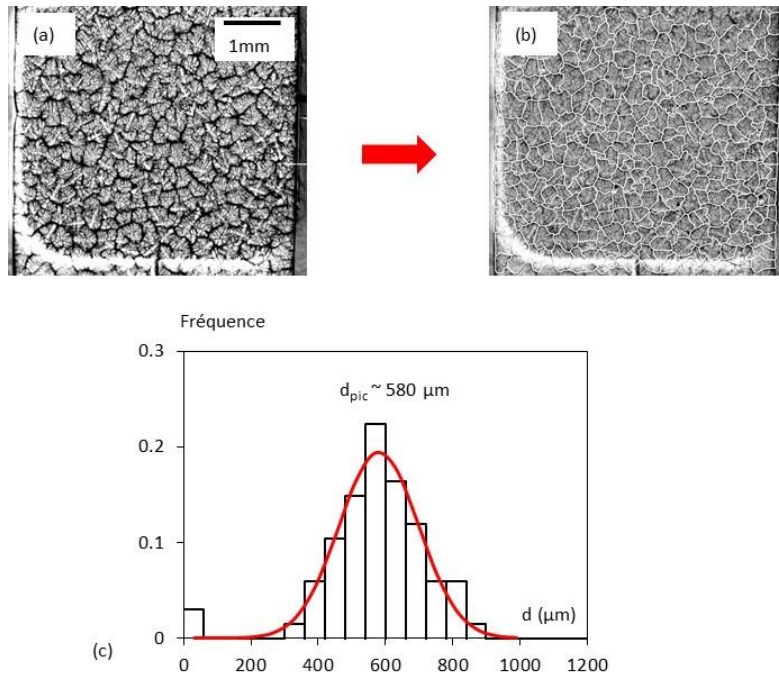


Figure II-29 : (a) Image avant contourage des grains ; (b) Grains contourés. (c) Histogrammes de la distribution en taille de l'expérience faite à $\langle G \rangle = 4\text{K/mm}$, $\langle V \rangle = 25\text{ }\mu\text{m/s}$.

II.6.2 Mesure de l'allongement d'un grain

La taille des grains ne donne aucune information sur leur morphologie (allongement et orientation), laquelle dépend fortement des conditions de solidification. Pour obtenir des données quantitatives sur la morphologie des grains, nous avons défini deux paramètres. Le premier de ces paramètres est le facteur d'allongement ou rapport d'aspect.

a) Définitions du facteur d'allongement

Plusieurs définitions peuvent être trouvées dans la littérature pour quantifier l'allongement d'un grain. La définition la plus naturelle correspond au facteur d'allongement ϕ qui est le rapport entre la longueur L_1 de l'axe principal (i.e. axe le plus long contenu exclusivement dans le grain) et la longueur L_2 de l'axe secondaire (i.e. l'axe le plus long perpendiculaire à l'axe principale inclus aussi dans le grain) (Figure II-30a).

$$\phi = \frac{L_1}{L_2} \quad \text{Eq. II-12}$$

Dans le cadre de ma thèse, les résultats sur l'analyse de la morphologie utiliseront cette définition, car elle a été également utilisée dans de précédentes études en solidification (Bisciola and Martorano, 2008). Les valeurs de L_1 et L_2 sont obtenues, après le traçage du contour des grains, par une macro que nous avons écrite et installée dans le logiciel *ImageJ*.

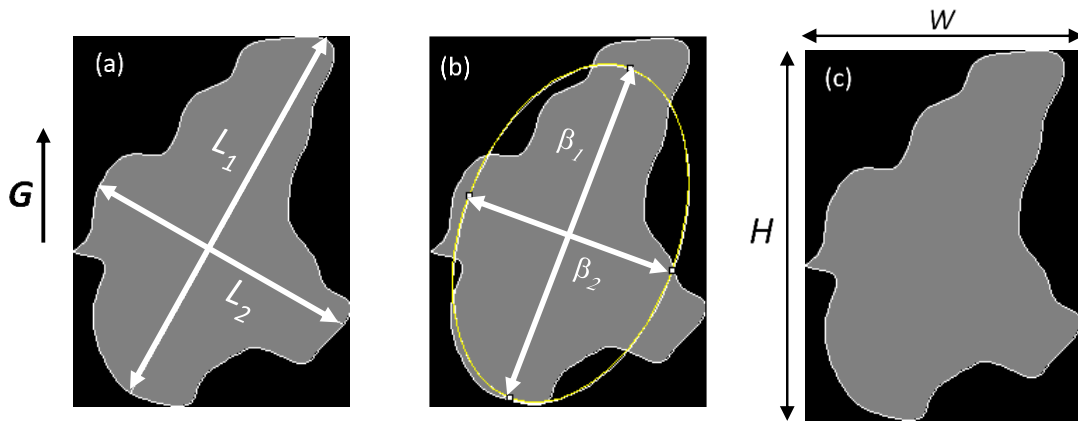


Figure II-30 : (a) Schéma montrant la longueur principale L_1 et la longueur secondaire L_2 ; (b) Rapport d'aspect de l'ellipse équivalente ; (c) facteur rectangle

On peut trouver dans la littérature d'autres façons de quantifier l'allongement des grains. Par exemple, à partir du rapport d'aspect de l'ellipse de surface équivalente (Figure II-30b), qui est donné automatiquement dans *ImageJ*. Le facteur d'allongement est alors défini comme le rapport entre les deux diagonales de l'ellipse.

$$\phi_1 = \frac{\beta_1}{\beta_2} \quad \text{Eq. II-13}$$

Une autre possibilité aurait été de déterminer le rapport d'aspect du rectangle qui contient le grain (Figure II-30c). Le facteur d'allongement est alors défini comme le rapport entre la hauteur et la largeur du rectangle.

$$\phi_2 = \frac{H}{W} \quad \text{Eq. II-14}$$

Une étude comparative entre les trois définitions sur quelques microstructures typiques (Figure II-31) montre que l'allongement par la méthode du rectangle ϕ_2 sous-estime systématiquement l'allongement des grains et que la méthode de l'ellipse donne sensiblement les mêmes résultats que le facteur d'élongation ϕ .

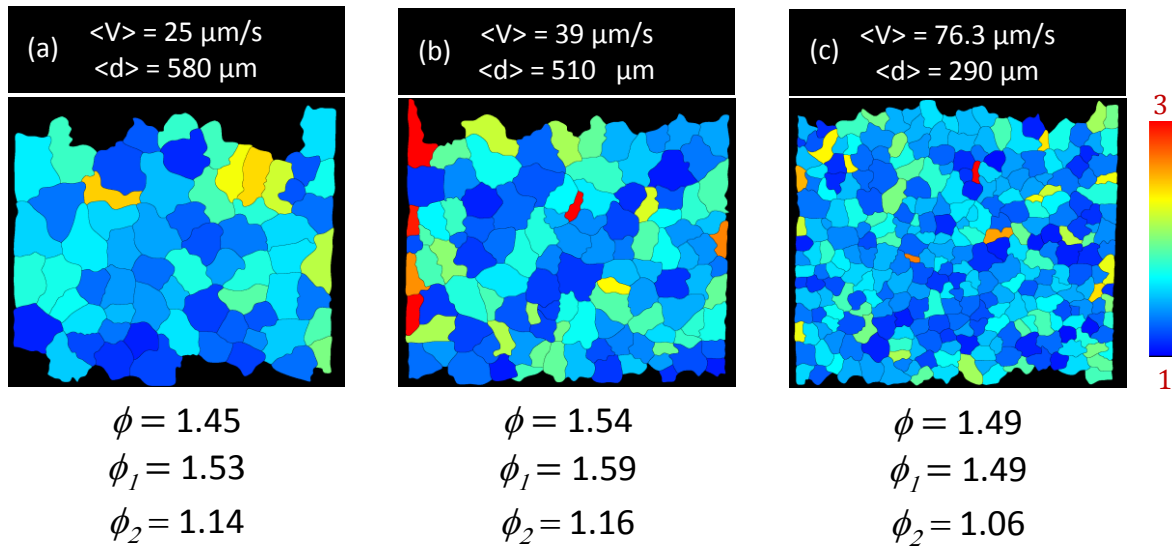


Figure II-31 : Comparaison du facteur d'élongation ϕ , ϕ_I , ϕ_2 de trois expériences réalisées à $\langle G \rangle = 4$ K/mm et pour trois vitesses de solidification croissantes (a) $\langle V \rangle = 25$ μm/s ; (b) $\langle V \rangle = 39$ μm/s ; (c) $\langle V \rangle = 76.3$ μm/s.

b) Exemple d'histogramme du facteur d'allongement

La Figure II-32 montre des histogrammes de distribution de rapport d'aspect pour deux vitesses de solidification. Ces histogrammes sont asymétriques et peuvent être ajustés par une fonction de type log-normale définie par :

$$f(\phi) = h \exp \left(-\ln 2 \left(\ln \left(\frac{2\mu(\phi - \phi_{pic})}{2\sigma} + 1 \right) \frac{1}{\mu} \right)^2 \right) \quad \text{Eq. II-15}$$

avec h la hauteur du pic, ϕ_{pic} la position du maximum ou pic, σ la largeur à mi-hauteur, et μ le facteur d'asymétrie. Cette fonction, utilisée par le logiciel *Fityk*, ne correspond pas exactement à la fonction donnée en théorie des probabilités, mais elle est mieux adaptée à des mesures de distribution statistique non normalisées. De plus, la signification physique des paramètres intervenant dans la fonction est plus évidente pour des physiciens. On peut constater que l'ajustement par ce type de fonction est bien approprié pour ces mesures.

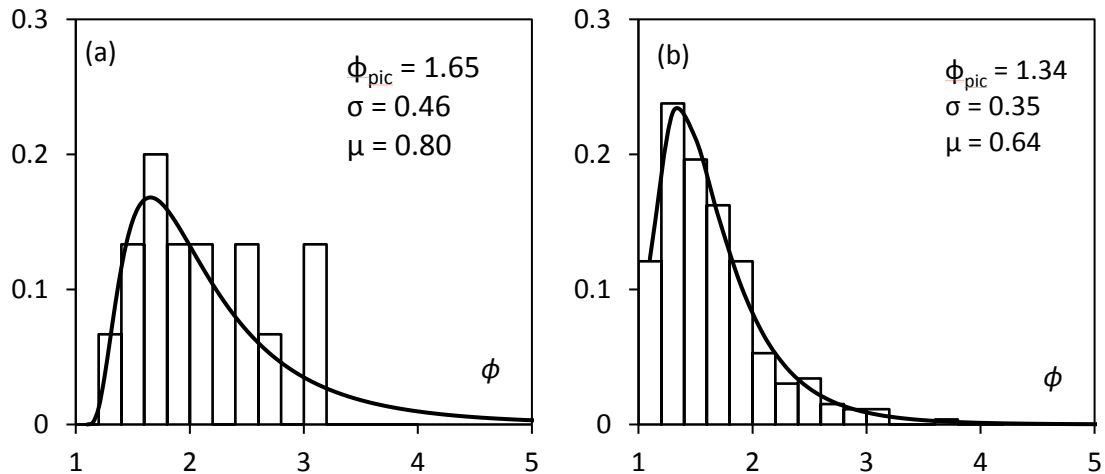


Figure II-32 : Histogrammes du rapport d'aspect des axes perpendiculaires ϕ pour deux vitesses de germination (a) $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle V \rangle = 47.2 \mu\text{m/s}$ d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe log-normale. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

A partir de ces histogrammes, nous pouvons classer les grains en terme de forme, en utilisant le critère de Hunt (*Hunt, 1984*) : Les grains qui ont un facteur d'allongement inférieur à 2 sont dits de type « équiaxe », tandis que les grains qui ont un rapport d'aspect supérieur à deux sont dits des grains de type « allongé ».

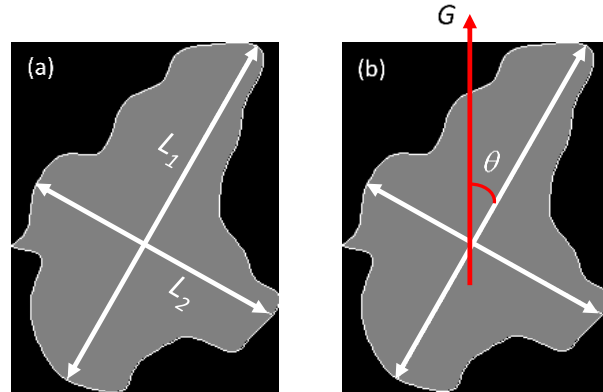
II.6.3 Mesure de l'orientation des grains par rapport au gradient de température

Lors de la solidification dirigée, le gradient de température impose une direction privilégiée qui affecte la microstructure équiaxe. La connaissance de l'orientation des grains par rapport au gradient de température est donc un paramètre important que nous avons caractérisé.

a) Définition de l'orientation des grains par rapport au gradient de température

L'orientation de la croissance des grains est donnée par l'angle θ , défini comme l'angle entre la direction du gradient de température et soit l'axe principal du grain défini précédemment, soit la diagonale principale de l'ellipse de surface équivalente. Cette dernière est donnée directement dans le logiciel *ImageJ*. Les deux définitions donnent sensiblement les mêmes valeurs. Cependant, pour des raisons de cohérence de nos résultats, nous avons choisi d'utiliser la définition avec l'axe principale (Figure II-33b).

Figure II-33 : (a) Schéma montrant la longueur de l'axe principale L_1 et la longueur de l'axe secondaire L_2 ; (b) Angle θ de l'axe principale L_1 du grain par rapport au gradient de température G .



b) Exemple d'histogramme de l'orientation des grains

La Figure II-34 montre des histogrammes de distribution des angles d'orientation des grains dans le sens de gradient de température pour deux vitesses de solidification. L'influence du gradient de température se traduit par une distribution plus ou moins large des angles autour d'un pic voisin de 0° .

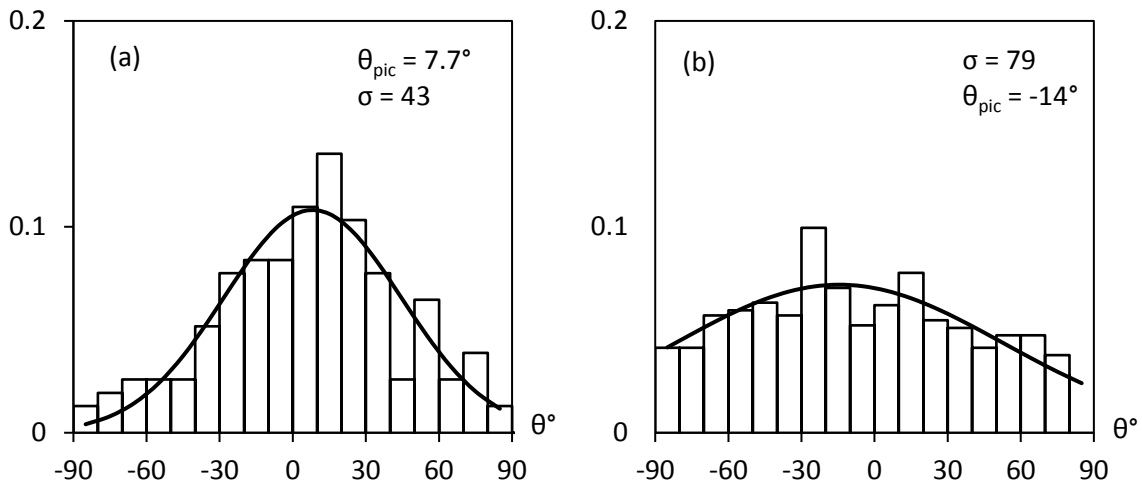


Figure II-34 : Histogrammes d'angle d'orientation θ pour (a) $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$ et (b) $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$, d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons d'abord commencé par donner un bref historique de la technique de radiographie X et son application à l'étude de la solidification des alliages métalliques. Nous avons mis en évidence les progrès réalisés dans ce domaine depuis une vingtaine d'années.

Ensuite, nous avons décrit les principes généraux sur lesquels est basé la technique d'observation par radiographie X. Durant ma thèse j'ai utilisé cette technique pour étudier *in situ* en temps réel la formation des microstructures lors de la solidification de l'alliage Al-20%pds Cu affiné en utilisant le dispositif de laboratoire SFINX. Ce dispositif est composé d'un four à gradient de température et d'un système d'imagerie. Les caractéristiques du four et du système d'imagerie ont été données en détail dans ce chapitre.

Lors des expériences de solidification le système d'imagerie enregistre des images brutes de qualité insuffisante pour des mesures précises quantitatives. Pour cette raison, divers traitements des images sont nécessaires pour améliorer la qualité de ces radiographies. Ces traitements sont indispensables pour la caractérisation et l'analyse quantitative des expériences.

Une première analyse indispensable pour étudier proprement les paramètres expérimentaux qui affectent la microstructure est la détermination des paramètres de contrôle réels dans l'échantillon. Ces deux paramètres, qui sont la vitesse de solidification et le gradient de température, ont été déterminés par différentes méthodes que nous avons comparées. Le choix de la méthode utilisée dépend de la microstructure obtenue lors de la solidification.

Les microstructures formées lors de la solidification ont été aussi caractérisées par leur taille, le facteur d'allongement et l'orientation de croissance de leurs grains par rapport au gradient de température. Plusieurs méthodes de caractérisation ont été mises en place et comparées. Le choix de la méthode adoptée pour nos analyses a été justifié. Cette étude comparative entre méthodes est intéressante car elle est un récapitulatif de la plupart des méthodes existantes pour caractériser une microstructure 2D de solidification.

Références

- Abou-Khalil, L., G. Salloum-Abou-Jaoude, G. Reinhart, C. Pickmann, G. Zimmermann, and H. Nguyen-Thi. 2016a. "Influence of Gravity Level on Columnar-to-Equiaxed Transition during Directional Solidification of Al – 20 Wt.% Cu Alloys." *Acta Materialia* 110: 44–52. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2016.03.007>.
- Abràmoff, M D, P J Magalhães, and S J Ram. 2005. "Image Processing with ImageJ Part II." *Biophotonics International* 11 (7): 36–43. <https://doi.org/10.1117/1.3589100>.
- Aveson, J. W., G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, B. Billia, K. Goodwin, et al. 2012. "Dendrite Bending during Directional Solidification." *Superalloys 2012*, 615–24. <https://doi.org/10.1002/9781118516430.ch69>.
- Biscuola, V. B., and M. A. Martorano. 2008. "Mechanical Blocking Mechanism for the Columnar to Equiaxed Transition." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 39 (12): 2885–95. <https://doi.org/10.1007/s11661-008-9643-x>.
- Buffet, Adeline, Henri Nguyen-Thi, Aziz Bogno, Thomas Schenk, Nathalie Mangelinck-Noël, Guillaume Reinhart, Nathalie Bergeon, Bernard Billia, and J. Baruchel. 2010. "Measurement of Solute Profiles by Means of Synchrotron X-Ray Radiography during Directional Solidification of Al-4 Wt% Cu Alloys." *Materials Science Forum* 649: 331–36. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.649.331>.
- Burden, M. H., D. J. Hebditch, and J. D. Hunt. 1973. "Macroscopic Stability of a Planar, Cellular or Dendritic Interface during Directional Freezing." *Journal of Crystal Growth* 20 (2): 121–24. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(73\)90125-5](https://doi.org/10.1016/0022-0248(73)90125-5).
- Dabo, Y., H. Nguyen Thi, S. R. Coriell, G. B. McFadden, Q. Li, and B. Billia. 2000. "Microsegregation in Peltier Interface Demarcation." *Journal of Crystal Growth* 216 (1): 483–94. [https://doi.org/10.1016/S0022-0248\(00\)00458-9](https://doi.org/10.1016/S0022-0248(00)00458-9).
- Feuerbacher, Michael, Carsten Thomas, Julien P.A. Makongo, Stefan Hoffmann, Wilder Carrillo-Cabrera, Raul Cardoso, Yuri Grin, et al. 2007. "The Samson Phase, β -Mg₂Al₃, Revisited." *Zeitschrift Fur Kristallographie* 222 (6): 259–88. <https://doi.org/10.1524/zkri.2007.222.6.259>.
- Forsten, J, and H.M Miekkoja. 1967. "Radiographic Observations of the Solidification of Metals." *Journal of the Institute of Metals* 95: 143–45. <https://doi.org/10.1590/S1516-18462008000300012>.
- Hunt, J. D. 1984. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. [https://doi.org/10.1016/0025-5416\(84\)90201-5](https://doi.org/10.1016/0025-5416(84)90201-5).
- Jackson, K. A., and J. D. Hunt. 1965. "Transparent Compounds That Freeze like Metals." *Acta Metallurgica* 13 (11): 1212–15. [https://doi.org/10.1016/0001-6160\(65\)90061-1](https://doi.org/10.1016/0001-6160(65)90061-1).
- Lee, P. D., and J. D. Hunt. 1997. "Hydrogen Porosity in Directional Solidified Aluminium-Copper Alloys: In Situ Observation." *Acta Materialia* 45 (10): 4155–69. [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(97\)00081-5](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(97)00081-5).

- Lide, David R. 2003. *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 84th Edition, 2003-2004*. <https://doi.org/10.1136/oem.53.7.504>.
- Ludwig, O, M Dimichiel, L Salvo, M Suery, and P Falus. 2005. "In-Situ Three-Dimensional Microstructural Investigation of Solidification of an Al-Cu Alloy by Ultrafast X-Ray Microtomography." *Metallurgical And Materials Transactions A-Physical Metallurgy And Materials Science* 36A (6): 1515–23. <https://doi.org/10.1007/s11661-005-0243-8>.
- Miller, E. W.J., and J. Beech. 1972. "In-Situ Radiographic Observations of Alloy Solidification." *Metallography* 5 (3): 298–300. [https://doi.org/10.1016/0026-0800\(72\)90009-2](https://doi.org/10.1016/0026-0800(72)90009-2).
- Murphy, A. G., R. H. Mathiesen, Y. Houltz, J. Li, C. Lockowandt, K. Henriksson, G. Zimmermann, N. Melville, and D. J. Browne. 2016. "XRMON-SOL: Isothermal Equiaxed Solidification of a Grain Refined Al-20 Wt%Cu Alloy." *Journal of Crystal Growth* 440: 38–46. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2016.01.032>.
- Nguyen-Thi, H., A. Bogno, G. Reinhart, B. Billia, R. H. Mathiesen, G. Zimmermann, Y. Houltz, et al. 2011. "Investigation of Gravity Effects on Solidification of Binary Alloys with in Situ X-Ray Radiography on Earth and in Microgravity Environment." *Journal of Physics: Conference Series* 327 (1). <https://doi.org/10.1088/1742-6596/327/1/012012>.
- Nguyen-Thi, H., G. Reinhart, G. Salloum Abou Jaoude, R. H. Mathiesen, G. Zimmermann, Y. Houltz, D. Voss, A. Verga, D. J. Browne, and A. G. Murphy. 2013. "XRMON-GF: A Novel Facility for Solidification of Metallic Alloys with in Situ and Time-Resolved X-Ray Radiographic Characterization in Microgravity Conditions." *Journal of Crystal Growth* 374. Elsevier: 23–30. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2013.03.032>.
- Nguyen-Thi, H., Guillaume Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, B. Billia, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Härtwig, and J. Baruchel. 2007. "In-Situ and Real-Time Investigation of Columnar-to-Equiaxed Transition in Metallic Alloy." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 38 A (7): 1458–64. <https://doi.org/10.1007/s11661-007-9170-1>.
- Nguyen-Thi, Henri, Luc Salvo, Ragnvald H. Mathiesen, Lars Arnberg, Bernard Billia, Michel Suery, and Guillaume Reinhart. 2012. "On the Interest of Synchrotron X-Ray Imaging for the Study of Solidification in Metallic Alloys." *Comptes Rendus Physique* 13 (3). Elsevier Masson SAS: 237–45. <https://doi.org/10.1016/j.crhy.2011.11.010>.
- Rakete, C., C. Baumbach, A. Goldschmidt, D. Samberg, C. G. Schroer, F. Breede, C. Stenzel, et al. 2011. "Compact X-Ray Microradiograph for in Situ Imaging of Solidification Processes: Bringing in Situ x-Ray Micro-Imaging from the Synchrotron to the Laboratory." *Review of Scientific Instruments* 82 (10). <https://doi.org/10.1063/1.3650468>.
- Reinhart, G., A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Härtwig, and J. Baruchel. 2008. "In-Situ and Real-Time Analysis of the Formation of Strains and Microstructure Defects during Solidification of Al-3.5 Wt Pct Ni Alloys." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 39 A (4): 865–74. <https://doi.org/10.1007/s11661-007-9449-2>.
- Reinhart, G., H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, J. Baruchel, and B. Billia. 2014. "In Situ Investigation of Dendrite Deformation during Upward Solidification of Al-7wt.%Si." *Jom* 66 (8): 1408–14. <https://doi.org/10.1007/s11837-014-1030-z>.

- Riberi-Béridot, Thècle, Nathalie Mangelinck-Noël, Amina Tandjaoui, Guillaume Reinhart, Bernard Billia, Tamzin Lafford, José Baruchel, and Laurent Barrallier. 2015. "On the Impact of Twinning on the Formation of the Grain Structure of Multi-Crystalline Silicon for Photovoltaic Applications during Directional Solidification." *Journal of Crystal Growth* 418. Elsevier: 38–44. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2015.02.024>.
- Salloum-Abou-Jaoude, G., G. Reinhart, H. Combeau, M. Založnik, T. A. Lafford, and H. Nguyen-Thi. 2015. "Quantitative Analysis by in Situ Synchrotron X-Ray Radiography of the Evolution of the Mushy Zone in a Fixed Temperature Gradient." *Journal of Crystal Growth* 411: 88–95. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2014.10.053>.
- Salloum-Abou-Jaoude, G., J. Wang, L. Abou-Khalil, G. Reinhart, Z. Ren, N. Mangelinck-Noel, X. Li, Y. Fautrelle, and Henri Nguyen-Thi. 2015. "Motion of Equiaxed Grains during Directional Solidification under Static Magnetic Field." *Journal of Crystal Growth* 417: 25–30. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2014.10.058>.
- Shevchenko, N., O. Roshchupkina, O. Sokolova, and S. Eckert. 2015. "The Effect of Natural and Forced Melt Convection on Dendritic Solidification in Ga-In Alloys." *Journal of Crystal Growth* 417. Elsevier: 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2014.11.043>.
- Stephenson, M P, and J Beech. 1979. "In Situ Radiographic Observations of Solute Redistribution During Solidification." *Proc. Int. Conf. on Solidification and Casting of Metals*, 34–38.
- Tandjaoui, Amina, Nathalie Mangelinck-Noel, Guillaume Reinhart, Bernard Billia, Tamzin Lafford, and José Baruchel. 2013. "Investigation of Grain Boundary Grooves at the Solid-Liquid Interface during Directional Solidification of Multi-Crystalline Silicon: In Situ Characterization by X-Ray Imaging." *Journal of Crystal Growth* 377. Elsevier: 203–11. <https://doi.org/10.1016/j.jcrysgr.2013.05.023>.
- Wojdyr, Marcin. 2010. "Fityk: A General-Purpose Peak Fitting Program." *Journal of Applied Crystallography* 43 (5 PART 1). International Union of Crystallography: 1126–28. <https://doi.org/10.1107/S0021889810030499>.
- Yamane, K., Hideyuki Yasuda, A. Sugiyama, T. Nagira, M. Yoshiya, K. Morishita, K. Uesugi, A. Takeuchi, and Y. Suzuki. 2015. "Influence of Mg on Solidification of Hypereutectic Cast Iron: X-Ray Radiography Study." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 46 (11). Springer US: 4937–46. <https://doi.org/10.1007/s11661-015-3077-z>.
- Yin, Hongbin, and Jean N. Koster. 2003. "Chemical Stratification and Solidification in a Differentially Heated Melt." *Journal of Alloys and Compounds* 352 (1–2): 197–209. [https://doi.org/10.1016/S0925-8388\(02\)01126-X](https://doi.org/10.1016/S0925-8388(02)01126-X).
- Zimmermann, G., A. Weiss, and Z. Mbaya. 2005. "Effect of Forced Melt Flow on Microstructure Evolution in AlSi7Mg0.6 Alloy during Directional Solidification." *Materials Science and Engineering A* 413–414: 236–42. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.09.049>.

Chapitre III:

Développement de la structure de grain lors de la solidification horizontale de l'alliage Al-20%pdsCu affiné dans un gradient de température.

Introduction	83
III.1 Description des expériences.....	84
III.1.1 Choix de l'alliage.....	84
III.1.2 Orientation du dispositif expérimental (solidification horizontale).....	85
III.1.3 Protocole expérimental.....	86
III.1.4 Plan d'expériences.....	90
III.2 Effet de la vitesse de solidification sur la structure de grains	94
III.2.1 Description de la dynamique de formation des microstructures de solidification.....	94
III.2.2 Effet de V sur la taille de grains	100
III.2.3 Effet de V sur la morphologie de grain.....	102
III.2.4 Discussion sur les effets de la vitesse de solidification sur la microstructure.....	106
III.3 Effet du gradient de température sur la structure de grain.....	112
III.3.1 Comparaison des microstructures pour des gradients de température différents. ...	112
III.3.2 Effet du gradient de température sur la distance de germination	115
III.3.3 Effet de G sur la taille des grains	116
III.3.4 Effet de G sur la morphologie des grains	119
III.3.5 Discussion sur les effets du gradient de température sur la microstructure.....	123
Conclusion.....	129
Références	131

Introduction

Les propriétés mécaniques des matériaux sont fortement liées aux microstructures et à la structure de grain formées durant la solidification. Une structure de grain fine renforce les propriétés mécaniques comme la dureté et permet aussi de répartir de manière uniforme et homogène la ségrégation (distribution en soluté). En plus de la taille, la morphologie des grains affecte aussi les propriétés du matériau : une forme colonnaire (ou allongée) donne des propriétés directionnelles (ou anisotrope) au matériau, alors qu'une structure dendritique équiaxe donne au matériau des propriétés uniformes et isotropes. À cause de cette forte relation entre la structure de grain et les propriétés mécaniques, une compréhension détaillée des mécanismes physiques contrôlant la formation des microstructures est cruciale.

La taille et la morphologie des grains dépendent des paramètres de contrôle de la solidification c'est-à-dire la vitesse de croissance V et le gradient de température G . Ce chapitre de résultats est dédié à l'analyse de l'effet de ces deux paramètres sur la morphologie des grains, allongement et orientation. Le chapitre est composé de trois parties :

Dans un premier temps, nous décrirons les expériences réalisées en configuration horizontale, et qui ont servi de base pour l'analyse des effets des paramètres de solidification sur la microstructure équiaxe. Rappelons que dans cette configuration horizontale, les effets de la gravité (convection naturelle et poussée d'Archimède) sont fortement réduits, ce qui facilite l'analyse des expériences. Dans une deuxième partie, l'analyse des effets de la vitesse de croissance sur la taille et la morphologie des grains pour un gradient fixé sera présentée et discutée. Enfin, dans la troisième partie, une analyse similaire sera présentée mais sur les effets du gradient de température sur la taille et la morphologie des grains pour des expériences réalisées avec des vitesses identiques ou proches.

III.1 Description des expériences

III.1.1 Choix de l'alliage

Les expériences présentées dans le cadre de mon travail de thèse ont été réalisées avec des échantillons d'un alliage hypoeutectique Al-20%pdsCu affiné avec 0.1%pds Al-Ti-B. le diagramme de phase de cet alliage est indiqué sur la Figure III-1.

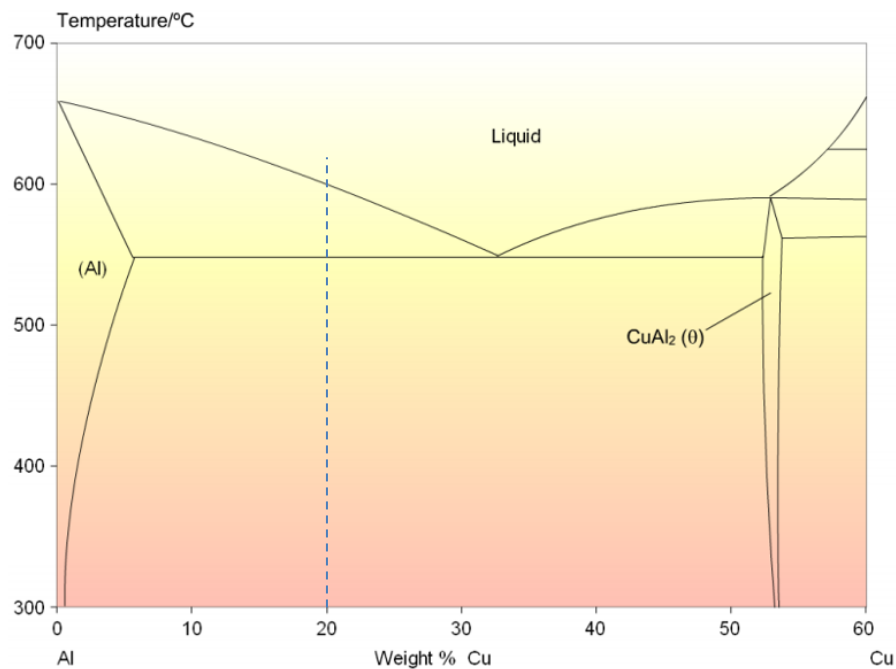


Figure III-1 : Diagramme de phase Al-Cu, © University of Cambridge

Le choix de l'alliage Al-20%pdsCu affiné pour ces expériences est justifié par :

- Du point de vue des applications, les alliages d'aluminium-cuivre (série 2000) sont très utilisés dans le domaine aéronautique.
- L'ajout d'affinants favorisent la croissance des grains équiaxes.
- Le pourcentage élevé de cuivre (20 % poids) accentue le phénomène de surfusion de constitution, ingrédient important pour l'activation des particules affinantes.
- Du point de vue de la radiographie X, cet alliage présente un très bon contraste entre les grains (α -Al), principalement constituées d'aluminium, et le liquide interdendritique riche en Cu.
- L'alliage Al-20%pdsCu présente un « petit » intervalle de solidification $T_L - T_E \sim 54$ K, ce qui permet de visualiser toute la zone pâteuse dans le champ de vue dans le cas d'une croissance colonnaire à fort gradient.

Les caractéristiques de l'alliage sont données dans le tableau ci-dessous.

Tableau III-1: Caractéristique de l'alliage Al-20%*pds*Cu

Paramètres physiques	Symbole	Valeurs	Unité
Température du liquidus	T_L	602	°C
Température de l'eutectique	T_E	548.2	°C
Composition de l'eutectique	C_E	33.2	% <i>pds</i> Cu
Coefficient de Gibbs-Thomson	Γ	2.36×10^{-7}	K.m
Énergie d'interface	γ	0.217	J/m ²
Coefficient de partage	k	0.118	
Pente du liquidus	m	-3.41	K/% <i>pds</i>
Coefficient de diffusion thermique (à 600 °C)	D_{th}	6.5×10^{-5}	m ² /s
Coefficient de diffusion dans le liquide	D_L	3.5×10^{-9}	m ² /s
Coefficient de diffusion dans le solide	D_S	1×10^{-12}	m ² /s
Viscosité dynamique du liquide	ν	1.7×10^{-3}	kg/m.s
Masse volumique du liquide	ρ_L	2815	kg/m ⁻³
Masse volumique du solide	ρ_S	2625	kg/m ⁻³
Chaleur latente	L	388	J/g
Conductivité thermique de Al pur	κ	220	W/m.K

III.1.2 Orientation du dispositif expérimental (solidification horizontale)

Les expériences présentées dans ce chapitre sont faites dans le dispositif SFINX, en configuration horizontale (Figure III-2), c'est-à-dire que la surface principale de l'échantillon est perpendiculaire à la gravité. Dans les radiographies, la microstructure est donc regardée par-dessus.

La solidification avec le four et l'échantillon en position horizontale réduit les phénomènes physiques liés à la gravité tels que :

- Les mouvements convectifs du liquide (même si la présence d'un gradient de température horizontal donne naissance à une boucle thermique dans l'échantillon)
- La flottaison des grains due à la poussée d'Archimède, ceux-ci ne pouvant flotter que dans la fine épaisseur de l'échantillon.

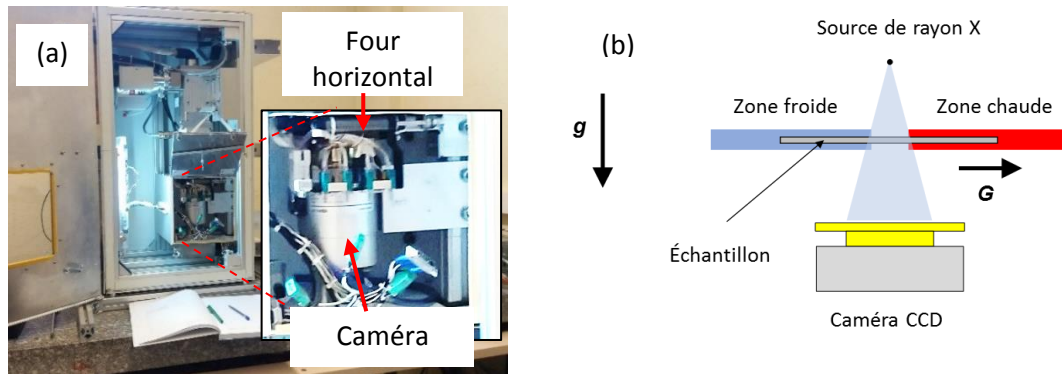


Figure III-2 : (a) Photographie du dispositif SFINX avec le four en configuration horizontale ; (b) Schéma montrant la position de l'échantillon par rapport à la gravité.

III.1.3 Protocole expérimental

Pour chaque échantillon, une série d'expériences de fusion-solidification est réalisée. Pour chaque expérience, le déroulement est le suivant (Figure III-3) :

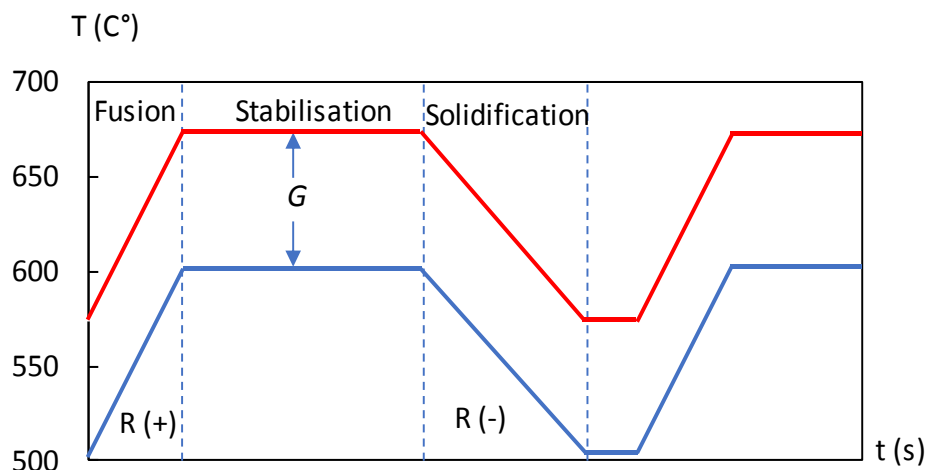


Figure III-3 : Cycle d'une expérience pour une vitesse de refroidissement donnée. Le trait rouge (respectivement bleu) indique le profil de température de l'élément chauffant chaud (respectivement froid).

- Fusion de l'échantillon : La fusion de l'échantillon est réalisée par l'augmentation de la température des deux éléments chauffants du four ($R = +0.5 \text{ K/s}$). Les températures cibles des éléments chauffants sont (i) pour l'élément chaud : la température doit être supérieure à la température du liquidus de l'alliage ($T_l = 602 \text{ }^{\circ}\text{C}$ pour Al-20%pdsCu) et (ii) pour l'élément froid : la température doit être au voisinage de la température de l'eutectique ($T_E = 548 \text{ }^{\circ}\text{C}$). À la fin de cette phase, l'échantillon est entièrement fondu dans le champ de vue et la radiographie X montre une image uniformément grise correspondant au bain fondu (Figure III-4).

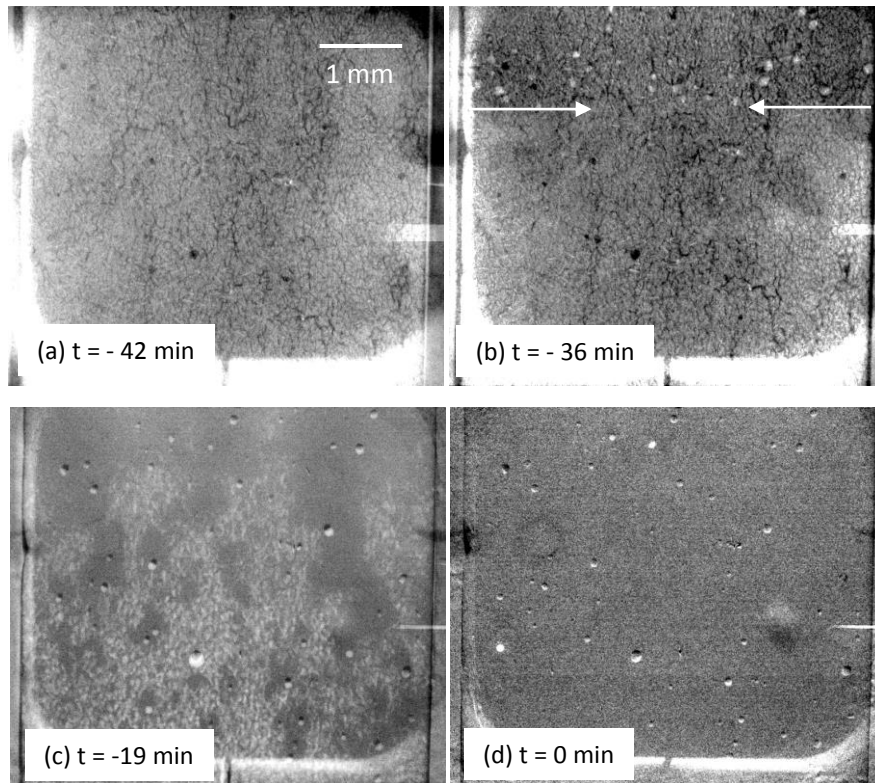


Figure III-4 : Étapes de fusion de l'échantillon : (a) Échantillon solide brut à température ambiante ; (b) Fusion de la phase eutectique (la position du front est indiquée par les deux flèches blanches) et formation de bulles (points blancs) dues à la présence de gaz résiduels ; (c) Fusion complète de la partie haute de l'échantillon et restes de quelques parties solides dans la partie basse de l'échantillon ; (d) Échantillon entièrement fondu.

- Stabilisation thermique et ajustement du gradient de température : La stabilisation thermique est une phase importante pour l'homogénéisation de la composition chimique et de la température. Pendant cette phase, il est possible d'ajuster la valeur du gradient thermique en modifiant les valeurs de consigne d'un ou des deux éléments chauffants.
- Solidification de l'échantillon : cette étape se fait par le refroidissement simultanée et à la même vitesse R des deux éléments chauffants. Cette méthode, qui se dit en anglais « *power down* », garde constant l'écart de température entre les éléments chauffants. Au cours du refroidissement, la germination de grains devient visible dans la partie froide du champ de vue (Figure III-5b). La structure équiaxe se propage par formation de couches successives de nouveaux grains. À chaque instant, il est possible de définir un front de germination passant par le haut des derniers grains qui ont germé (Figure III-5b,c). Grâce à l'observation *in situ* et en temps réel par radiographie X, il est possible de suivre en continu l'avancée du front de germination dans le champ de vue (Figure III-5b, c, d et e). Dans la Figure III-5, le front de germination présente une légère inclinaison de droite à gauche, qui est la signature de la non-planéité des isothermes pour l'expérience présentée.

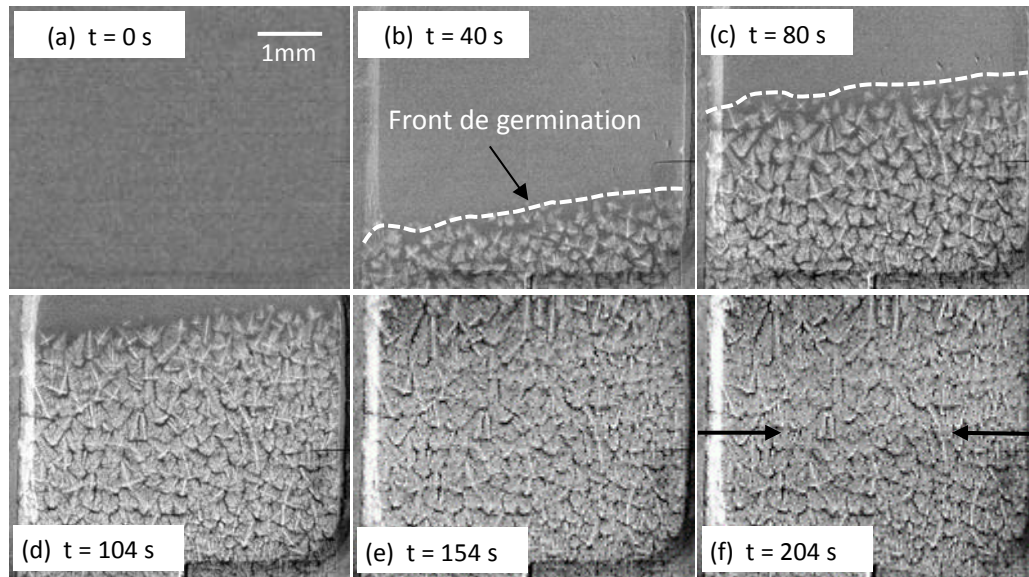


Figure III-5 : (a) Image correspondant au bain fondu ; (b) (c) (d) Propagation du front de germination au cours du temps ; (e) Solidification de tout le champ de vue ; (f) Passage du front eutectique marqué par les flèches noires (Al-20%PdCu affiné, $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$, $R = 0.45 \text{ K/s}$, $\langle V \rangle = 47.2 \text{ } \mu\text{m/s}$)

Grace à la méthode de pointage de grains (décrite dans la partie II.5.1a), nous avons mesuré le nombre cumulé de grains en fonction du temps. Rappelons que cette méthode consiste à pointer manuellement les grains qui germent au fur et à mesure qu'ils apparaissent dans le champ de vue. Cette méthode n'est applicable que pour les expériences réalisées à des vitesses de solidification lentes ou intermédiaires, comme celle montrée Figure III-5, pour lesquelles la résolution temporelle est suffisante. La Figure III-6 montre le nombre cumulé de grains en fonction du temps pour trois expériences avec une propagation d'un front équiaxe.

Les courbes montrent une augmentation en palier, comme observé par Prasad et al. (A. Prasad et al. 2015). Ces paliers traduisent la propagation du front par des étapes successives de croissance (nombre de grains inchangé) et de germination (saut brusque du nombre cumulé de grains). Chaque ligne verticale sur les graphes indique une augmentation brusque du nombre cumulé de grains, donc une phase de germination. On remarquera que ces lignes verticales sont plus resserrées quand la vitesse de solidification augmente, ce qui indique une réduction de la phase de croissance au profit des phases de germination. Ceci se traduira par une structure avec des grains plus petits et plus resserrés.

De plus, à partir des graphes de la (Figure III-6), il est possible de déterminer un taux de germination pour chacune des expériences, qui est la variation du nombre de grains cumulés par unité de temps. Pour toutes les expériences, ce taux diminue dans le champ de vue, à cause de la variation progressive du gradient de température comme il a été précisé dans la section II.5.2. Il est cependant possible de donner une estimation du taux de germination moyen, noté τ , pour chacune des expériences qui croît de 0,2 à 3 grains/seconde pour la vitesse de solidification $\langle V \rangle = 16 \text{ } \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 47.2 \text{ } \mu\text{m/s}$ respectivement.

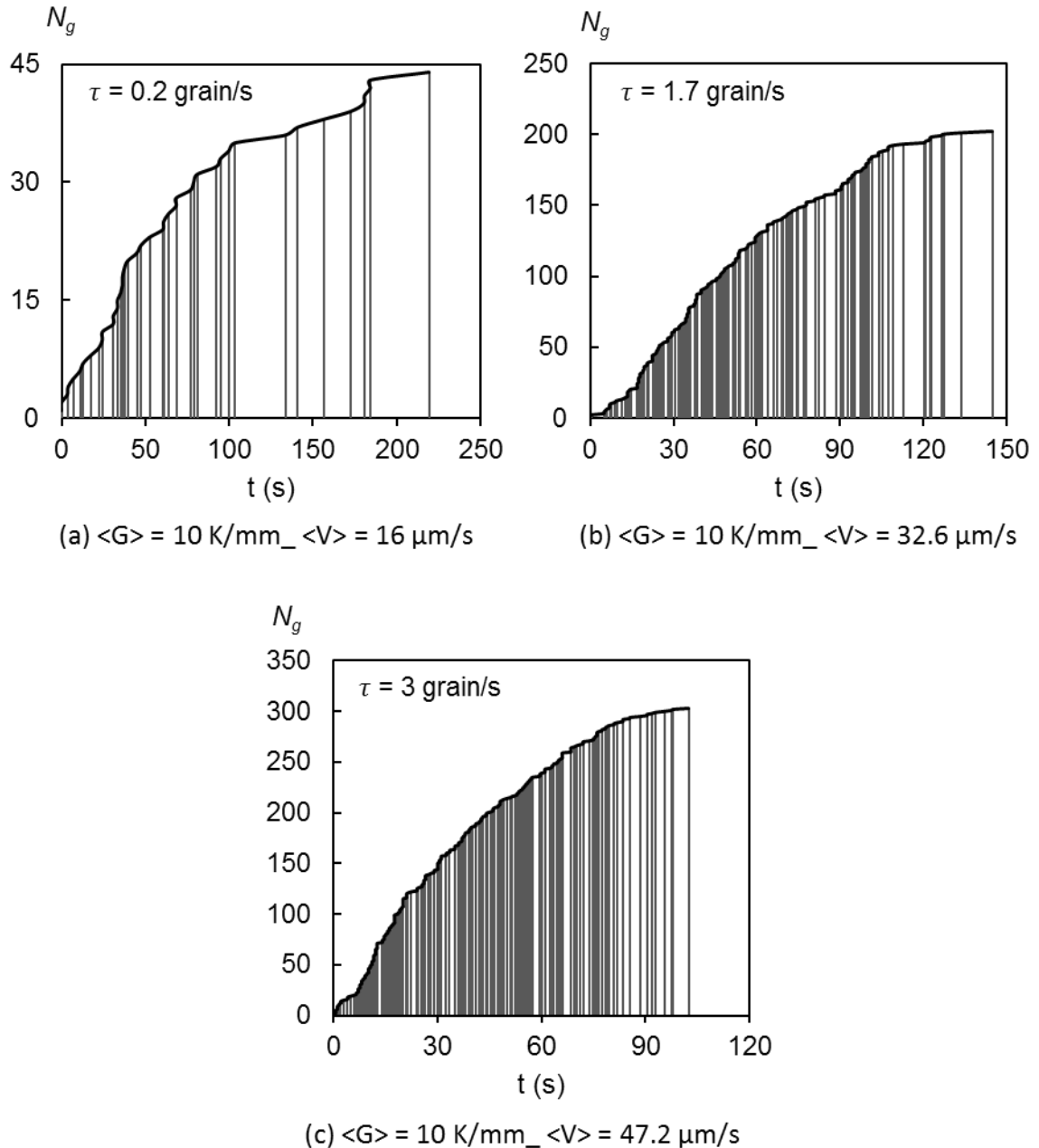


Figure III-6 : Graphes montrant la variation du nombre de grains cumulé en fonction du temps pour des expériences réalisées à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et à trois vitesses de solidification (a) $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle V \rangle = 47.2 \mu\text{m/s}$. Le taux de germination moyen de chacune des expériences τ est indiqué dans le graphe.

- Arrêt de la solidification : En fin d'expérience, la phase liquide entre les grains se solidifie sous forme d'un eutectique ($T_E = 548^\circ\text{C}$). Le passage du front eutectique entraîne une contraction de l'échantillon, qui est visualisée par un assombrissement dans les radiographies (Figure III-5f). Quand le front eutectique a traversé le champ de vue, le refroidissement des éléments chauffants est arrêté et le dispositif peut être relancé pour l'expérience suivante.

III.1.4 Plan d'expériences

a) *Objectif des expériences*

L'objectif de ma thèse est d'étudier l'influence respective de la vitesse de croissance ou de solidification V et du gradient de température G sur la taille et la morphologie de grains. Pour atteindre ce but, nous avons réalisé trois séries d'expériences sur trois échantillons différents avec une épaisseur moyenne initiale de 230 μm ($\pm 10 \mu\text{m}$). Pour chaque série d'expériences l'écart de température entre les éléments chauffants est le même, ce qui permet d'obtenir un gradient de température sensiblement identique pour toute la série.

- Le gradient de température $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ correspond à la plus petite différence de température applicable entre les deux éléments chauffant du dispositif SFINX, pour laquelle les isothermes sont planes.
- Le gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ correspond à la plus grande différence de température applicable entre les deux éléments chauffant du dispositif SFINX.
- Le gradient de température $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ a été choisi pour avoir un gradient de température intermédiaire entre les deux gradients de température précédents.

Pour chaque gradient de température, 6 à 7 vitesses de refroidissement ont été appliquées.

b) *Vérification de la répétabilité des expériences*

Pour valider la répétabilité des expériences, nous avons refait une expérience de référence avec la même vitesse de refroidissement $R = -0.15 \text{ K/s}$ au début, au milieu et à la fin de chaque série d'expériences. L'objectif était de s'assurer que les effets possibles de ségrégation dans l'échantillon, suite aux multiples fusion-solidification, ou de perte d'efficacité des affinants, appelé « fading effect », n'avaient pas trop d'impact sur les microstructures de croissance obtenues.

Dans la Figure III-7, chaque ligne de radiographies montre la structure de grains pour les trois expériences réalisées respectivement au début, au milieu et à la fin de la série d'expériences avec les gradients de température (a) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$; (b) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et (c) $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$.

Pour chacune des lignes, donc chaque gradient de température, nous pouvons constater visuellement la similitude entre les structures des trois expériences. La répétabilité des expériences est confirmée par les mesures des vitesses de croissance qui sont proches, avec des écarts de 2 % à 9 %, probablement liés à une déformation progressive de l'échantillon à la suite de la série de fusion-solidification. Les mesures quantitatives, qui seront présentées dans la suite de la thèse, du nombre cumulé de grains, de la taille des grains et de leurs morphologies sont statistiquement identiques.

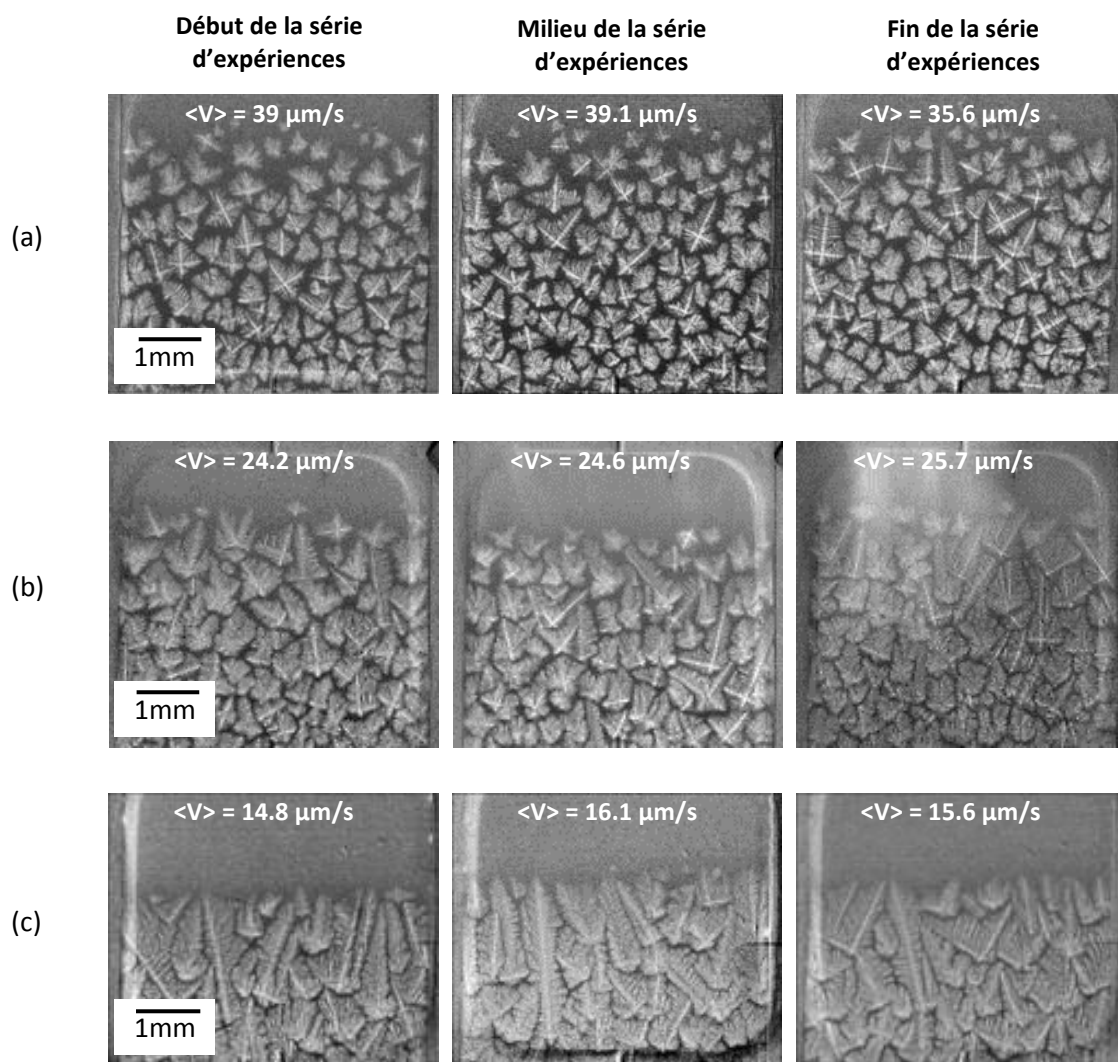


Figure III-7 : Radiographies montrant les microstructures obtenues pour la vitesse de refroidissement $R = -0.15$ K/s répétée pour chaque gradient de température, (a) $\langle G \rangle = 4$ K/mm ; (b) $\langle G \rangle = 6$ K/mm et (c) $\langle G \rangle = 10$ K/mm. De gauche à droite, les radiographies correspondent aux expériences faites au début, au milieu et à la fin de chaque série d'expériences.

c) Résumé des expériences présentées dans cette thèse

Le Tableau III-2 présente les paramètres de toutes les expériences (taux de refroidissement, gradients de température et les vitesses de croissance mesurées) que j'ai réalisées au cours de ma thèse, dans la configuration horizontale, quand les effets de la gravité sont minimisés. La détermination précise des valeurs des deux paramètres de solidification a été expliquée dans le chapitre précédent.

Tableau III-2 : Paramètres de solidification des expériences

Expériences	$\langle G \rangle$ (K/mm)	R (K/s)	$\langle V \rangle$ ($\mu\text{m/s}$)	G_{min} (K/mm)	G_{max} (K/mm)	G_{moy} (K/mm)
1	~ 4	0.05	11.9	2.8	5.3	4.1
		0.1	25	2.4	5	3.7
		0.15	39	2.5	4.8	3.6
		0.15	39.1	2.3	5.4	3.9
		0.15	35.6	3.1	5.5	4.3
		0.3	76.3	2.8	4.9	3.9
		0.45	112.2	2.9	5.1	4
		0.9	205.9	3.6	5.4	4.5
		1.35	321.2	3.6	4.8	4.2
2	~ 10	0.05	4.3	10.4	13.1	11.8
		0.1	10.6	9.5	9.8	9.7
		0.15	14.8	8.8	11.5	10.2
		0.15	16.1	10.3	10.6	10.5
		0.15	15.6	8.8	10.9	9.9
		0.3	32.6	9	10	9.5
		0.45	47.2	8	11.5	10.4
		0.9	106	7.6	11.2	9.4
		1.35	137.8	8	11.7	9.9
3	~ 6	0.05	8.0	6.3	7.9	7.1
		0.1	17.9	4.5	6.6	5.6
		0.15	24.2	4.6	7.3	6
		0.15	24.6	5.2	6.9	6.1
		0.15	25.7	4.4	6.8	5.6
		0.3	53.2	4.6	6.6	5.6
		0.45	74.0	4.7	7.2	6
		1.35	214	5	7.7	6.3

La Figure III-8 montre le diagramme (G, V) de l'ensemble des expériences que j'ai réalisées et analysées au cours de ma thèse :

- Les triangles rouges correspondent aux expériences réalisées avec $\langle G \rangle = 4$ K/mm
- Les losanges verts correspondent aux expériences réalisées avec $\langle G \rangle = 6$ K/mm
- Les points bleus correspondent aux expériences réalisées avec $\langle G \rangle = 10$ K/mm

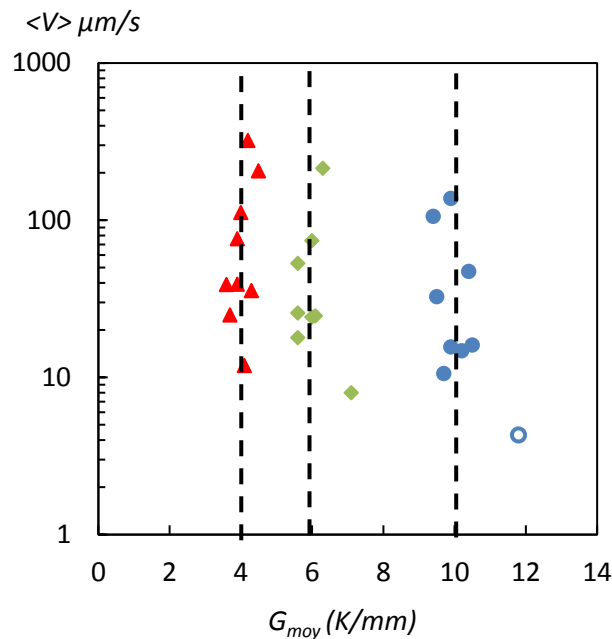


Figure III-8 : Ensemble des expériences faites en horizontale dans le diagramme (G, V), avec G le Gradient de température et $\langle V \rangle$ la vitesse de croissance.

On peut remarquer que, pour la série d'expérience $\langle G \rangle = 10$ K/mm, les point à très basse vitesse $\langle V \rangle = 4.3$ μm/s donne une valeur du gradient de température $G_{moy} = 11.8$ K/mm, beaucoup plus élevée que les autres expériences de la série. Nous avons attribué cette différence à l'effet de la convection, plus intense à basse vitesse (*Dupouy and Camel, 1998*). Cet effet est confirmé par la mesure de la vitesse du front eutectique ($V_E = 5.6$ μm/s soit un gradient thermique déduit de $G_{eut} = 8.9$ K/mm) qui est lui en accord avec les autres expériences de la même série.

III.2 Effet de la vitesse de solidification sur la structure de grains

Il est bien connu que la dynamique de formation des microstructures est beaucoup plus sensible à la vitesse de solidification V qu'au gradient de température G . Dans cette section, nous allons décrire qualitativement et quantitativement (taille, allongement et orientation des grains) l'influence de la vitesse de solidification $\langle V \rangle$ sur la formation des microstructures pour un gradient de température moyen $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$.

III.2.1 Description de la dynamique de formation des microstructures de solidification

a) Croissance colonnaire à très basse vitesse

La Figure III-9 montre une séquence de radiographies pour l'expérience de solidification réalisée à la vitesse de solidification la plus faible $\langle V \rangle = 4.3 \mu\text{m/s}$. L'observation *in situ* et en temps réel permet d'observer une suite d'événements qu'il ne serait pas possible d'identifier par des analyses classiques post-mortem.

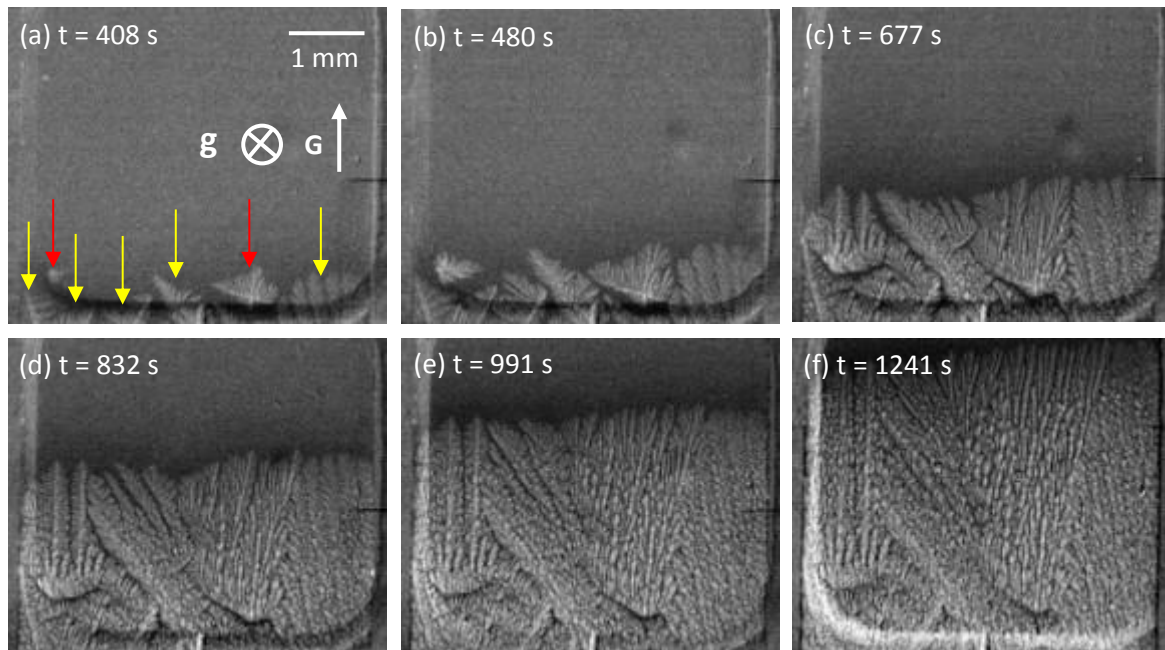


Figure III-9 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 4.3 \mu\text{m/s}$.

- La Figure III-9a montre l'entrée dans le champ de vue d'un front de solidification constitué de cinq grains (flèches jaunes), qui ont germé dans la partie froide de l'échantillon (hors du champ de vue). Nous observons également la germination de deux grains devant le front de solidification (flèches rouges), probablement sur des défauts présents sur les parois du creuset ou la couche d'oxyde entourant le bain fondu. On soulignera qu'en solidification « horizontale », les grains sont à peu près immobiles dans le champ de vue.

- Après leur germination, les grains continuent de croître et développent des bras primaires de plus en plus longs. Au cours de la croissance, le soluté rejeté par les grains forme une couche riche en cuivre, qui se traduit sur les radiographies par une zone plus sombre entre et devant les dendrites (Figure III-9b).
- Nous pouvons remarquer que la morphologie du grain à l'extrême droite est très différente des autres grains, de type « seaweed » (Akamatsu and Faivre, 1998) (Deschamps et al, 2008). Pour ce grain et contrairement aux autres grains, les bras secondaires ne sont pas perpendiculaires au tronc principal. Ceci suggère que l'orientation cristallographique du grain de droite serait proche de $\langle 110 \rangle$ dans la direction du gradient de température alors qu'il est du type $\langle 100 \rangle$ pour les autres grains. Pour confirmer cela, il faudrait déterminer l'orientation cristallographique des grains par EBSD (Electron BackScattering Diffraction), mais cela n'est pas possible car l'échantillon est refondu plusieurs fois au cours d'une série d'expériences. Une autre approche a été mise en place par Becker et al (Becker et al. 2018), qui consiste à comparer la morphologie des grains observée en radiographie à celle de grains désorientés simulés numériquement par la méthode du champ de phase.
- Au cours de la croissance, les grains entrent en compétition, ce qui entraîne le blocage de certains grains moins bien orientés par rapport au gradient de température (Figure III-9d). La croissance des grains les mieux orientés continue par l'émission des branches tertiaires, parallèlement au tronc initial. Ce phénomène de compétition a été simulé par champ de phase par J. Eiken (Eiken, 2009), D. Tournet et al. (Tournet and Karma, 2015)(Tournet et al. 2017), et T. Takaki et al. (Takaki et al. 2016). On peut remarquer que le joint de grains garde la même position le long de l'interface durant l'expérience, comme dans les simulations (Figure III-10).

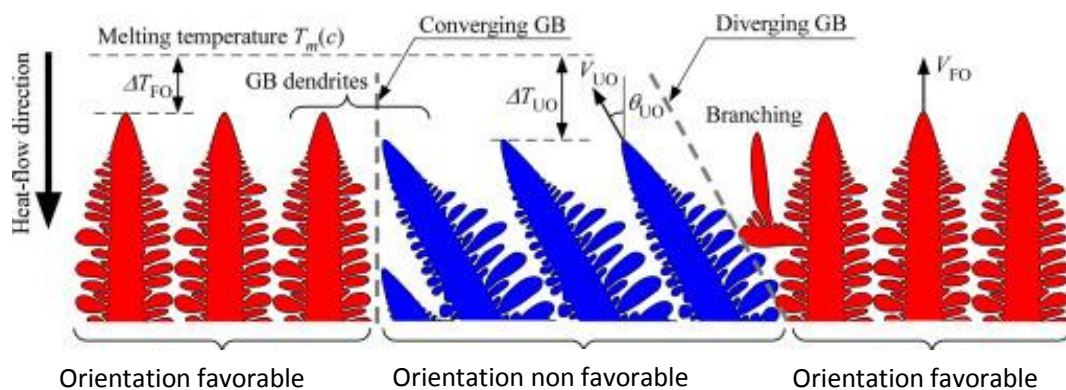


Figure III-10 : Schéma montrant la compétition entre grains et l'orientation des joints de grains simulés par champ de phase, Figure prise dans (Takaki et al. 2016)

- Au cours de cette expérience, nous avons également observé quelques fléchissements et fragmentations de bras secondaires, qui restent piégés entre les bras des dendrites. Ce phénomène est difficile à voir sur l'image statique (Figure III-9f) mais clairement visible dans les films de l'expérience.
- En fin d'expérience, nous avons aussi observé le phénomène de TGZM (*Thermal Gradient Zone Melting*). Ce phénomène est la migration du liquide inter-dendritique riche en cuivre à travers le solide, de la partie froide vers la partie chaude par diffusion solutale (Nguyen Thi et al. 2003)(Nguyen Thi et al. 2008). Le phénomène de TGZM est directement proportionnel au gradient de température et il est particulièrement visible pour cette expérience réalisée à fort gradient de température.

b) Formation des microstructures à basse vitesse

Pour les expériences réalisées à $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$ (Figure III-11) et $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$ (Figure III-12), l'accroissement de la vitesse de solidification entraîne une augmentation du nombre de particules affinantes activées, ce qui donne un nombre plus important de grains au cours du refroidissement.

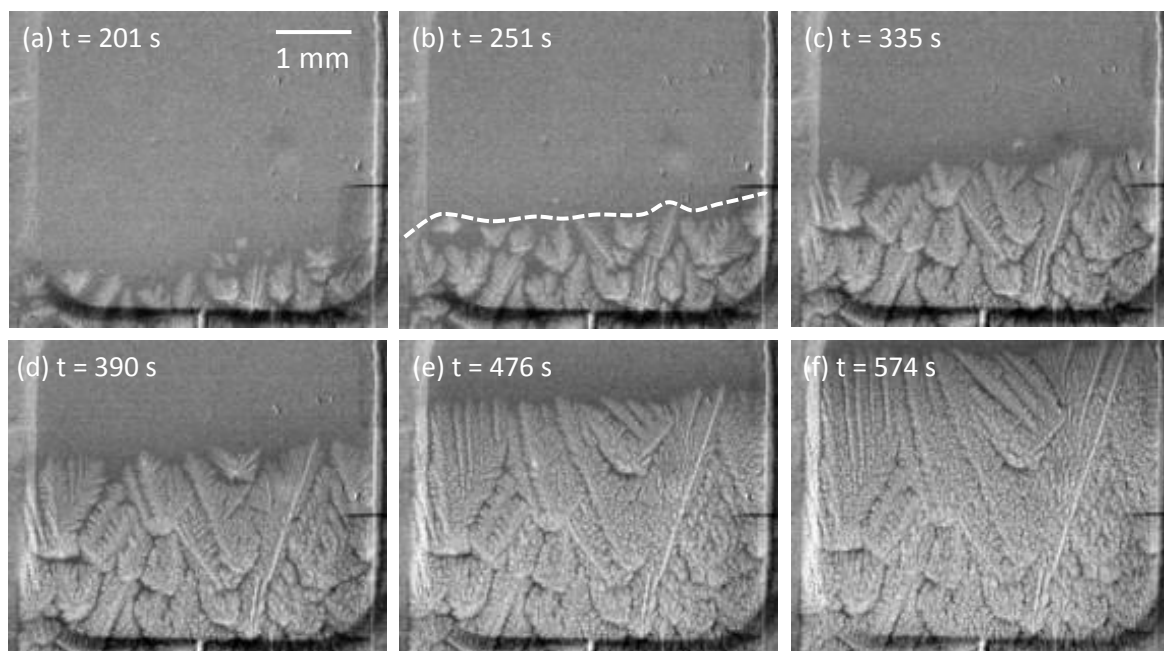


Figure III-11 : Série de radiographies montrant la dynamique de la formation de la structure de grains à différents instants pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$.

- Il est difficile de dire si le front qui entre dans le champ de vue est équiaxe ou colonnaire (Figure III-11a). Cependant, il est clair que les grains qui germent dans le champ de vue sont de type « équiaxe ». La germination a lieu d'abord dans la partie droite de l'échantillon, dû à la présence d'un gradient transverse de température.

- Après leur germination, les grains croissent et nous pouvons définir alors un front dit « effectif » (ligne en pointillé blanche) passant par les pointes des dendrites (Figure III-11b). La phase de croissance des grains cesse avec la germination d'une nouvelle couche de grains qui bloque leur croissance. Ce mécanisme de croissance-germination se répète jusqu'à la solidification de la moitié du champ de vue (Figure III-11c).
- Dans la seconde partie du champ de vue, la germination de nouveaux grains cesse progressivement et on observe une croissance colonnaire. Cette transition équiaxe-colonnaire, observée aussi au début de la solidification des lingots, a pour origine l'augmentation du gradient de température dans le champ de vue

La Figure III-12 illustre l'expérience réalisée avec une vitesse de solidification $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$, un peu plus rapide que l'expérience précédente. Globalement, les phénomènes décrits pour l'expérience précédente restent valables, avec juste un taux de germination plus important. Dans cette expérience, nous pouvons remarquer la croissance ininterrompue d'une dendrite parfaitement orientée dans le sens du gradient de température (flèche blanche), qui croît devant les grains voisins et qui traverse tout le champ de vue.

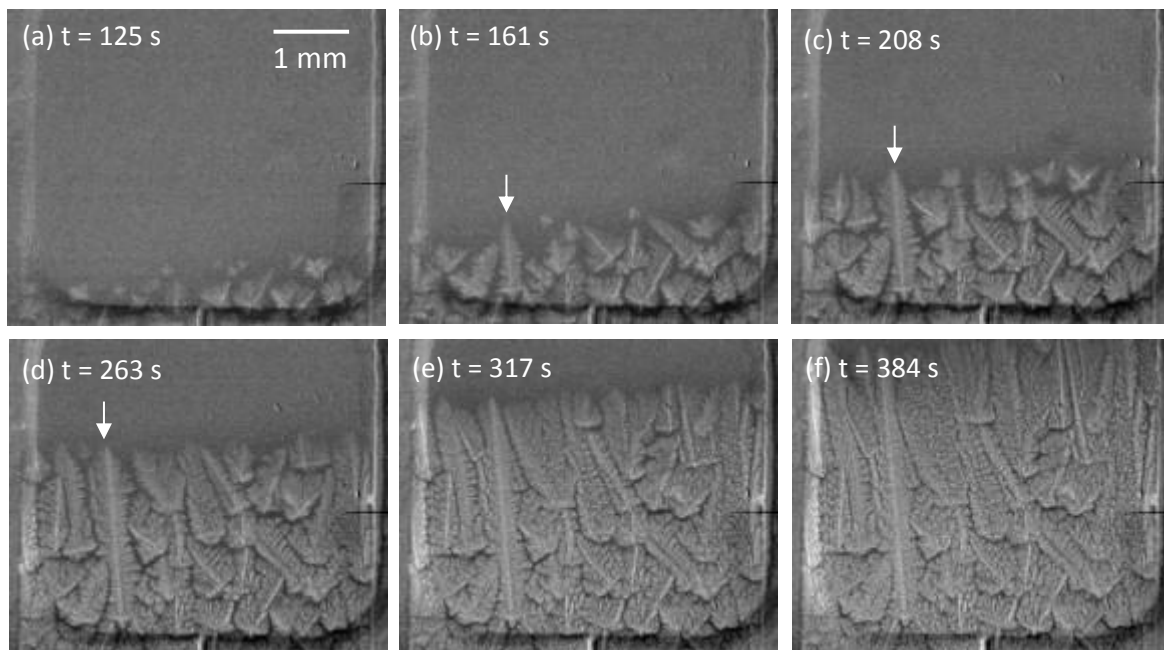
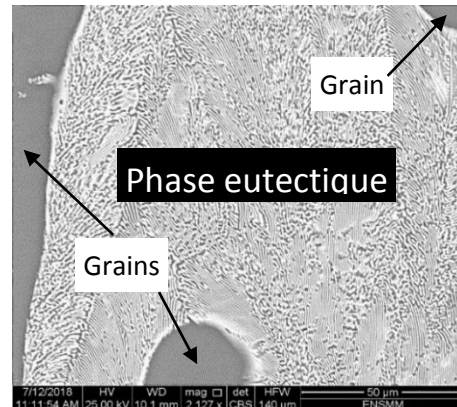


Figure III-12 : Série de radiographies montrant l'évolution de la microstructure à différents instants pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$.

La dernière expérience de la série a été réalisée avec des paramètres de solidification similaires ($\langle V \rangle = 15.6 \mu\text{m/s}$ et $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$). Nous avons pu faire de l'imagerie MEB à l'ENSMM en Algérie sur l'échantillon en post-mortem. La Figure III-13 montre des parties de grains équiaxes d'aluminium (parties grises) et surtout la structure eutectique entre les grains qui s'est formée en fin d'expérience à partir du liquide inter-dendritique riche en cuivre. Nous

pouvons voir dans la Figure III-13 les lamelles de la structure eutectique : les lamelles blanches correspondent à la phase Al_2Cu et les lamelles noires à la phase $\alpha\text{-Al}$.

Figure III-13 : Image montrant la structure eutectique lamellaire de la zone riche en cuivre. Les lamelles blanches correspondent à la phase Al_2Cu et les lamelles noires correspondent à $\alpha\text{-Al}$.



c) Microstructures équiaxes pour des vitesses intermédiaires

La Figure III-14 montre les radiographies d'une expérience pour une vitesse intermédiaire $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$. Pour cette vitesse, le nombre de germinations de grains équiaxes est nettement plus grand que dans les expériences précédentes. La microstructure dans la partie chaude du champ de vue est encore de type équiaxe mais avec des grains un peu plus allongés que dans la partie froide du champ de vue, toujours à cause de la variation du gradient de température dans le champ de vue.

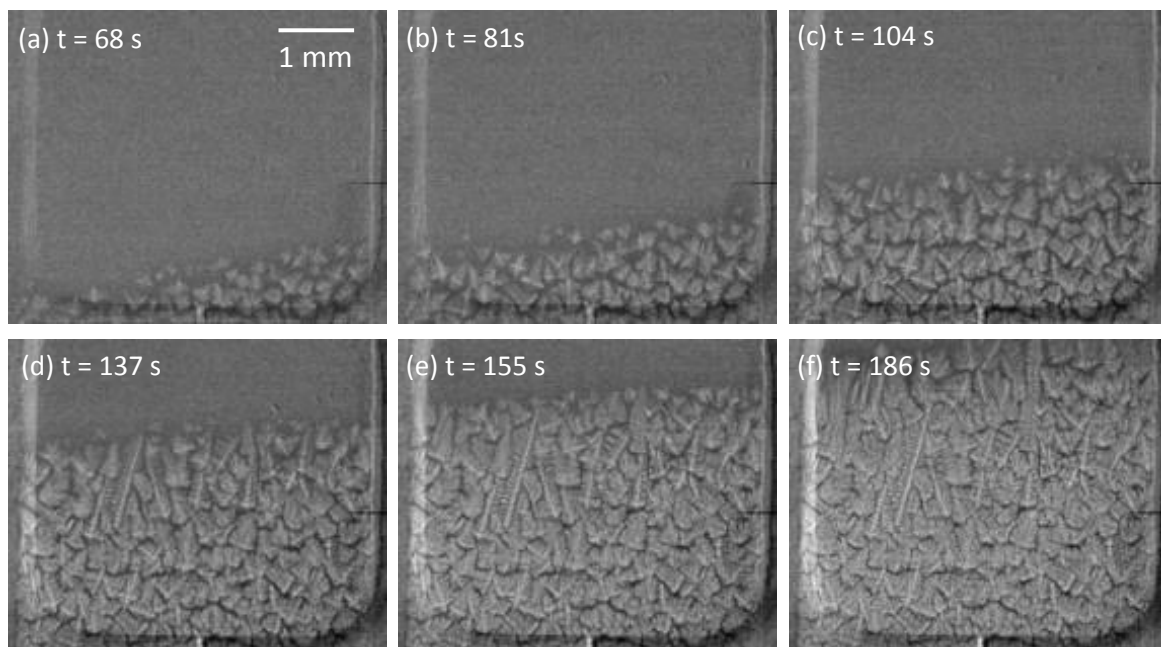


Figure III-14 : Série de radiographies montrant l'évolution de la microstructure équiaxe à différents instants successifs pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$.

d) Formation des microstructures pour des vitesses rapides

La Figure III-15 montre six radiographies de l'expérience réalisée avec une vitesse de solidification rapide $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$. Pour cette vitesse, le front effectif se propage par vagues successives de nouveaux grains (Prasad, Liotti, et al. 2015)(Prasad, McDonald, et al. 2015). La forme des grains est visuellement beaucoup plus de type « équiaxe », avec un facteur d'allongement ϕ proche de 1. Pour cette expérience, le film de la solidification met en évidence le phénomène de retrait du solide (*shrinkage*), qui crée un effet de succion des grains vers la zone froide. Rappelons que c'est ce phénomène qui est à l'origine de ségrégations et de retassures, qui sont des défauts majeurs bien connus dans l'industrie de solidification en lingot ou en moule (Blair et al. 2005).

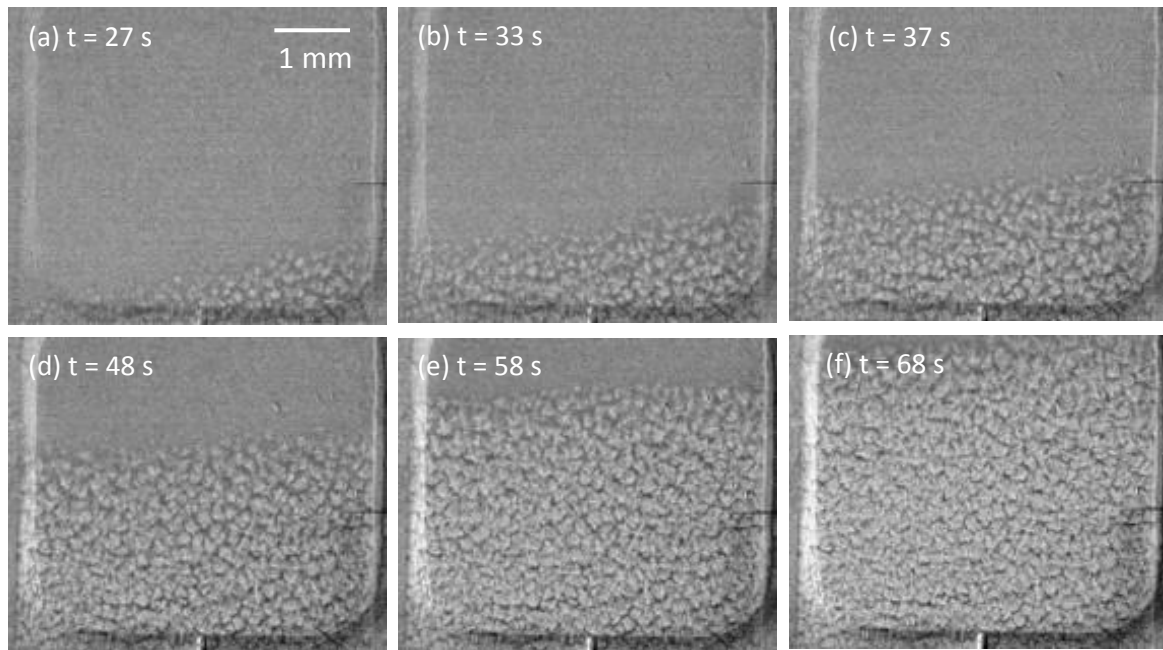


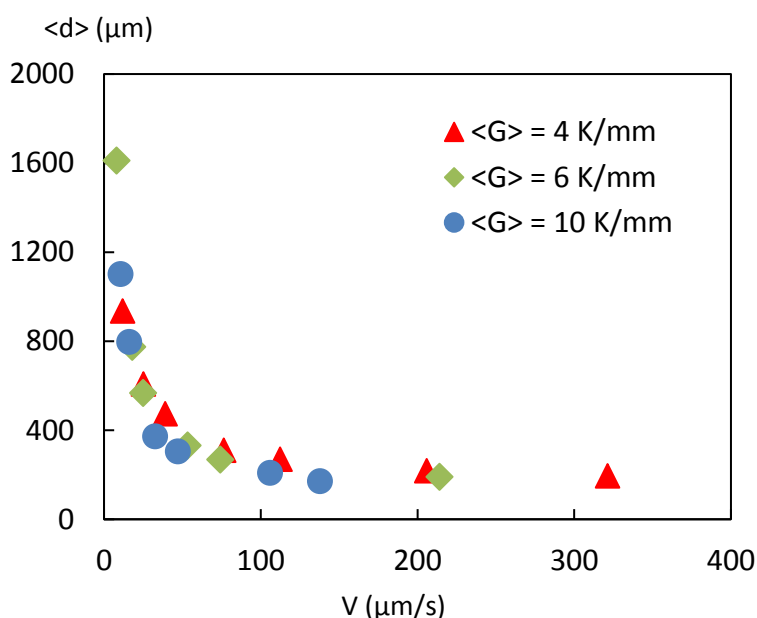
Figure III-15 : Série de radiographies montrant la dynamique de la formation de la microstructure de grains à différents instants pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$.

III.2.2 Effet de V sur la taille de grains

L'analyse visuelle des expériences montre une diminution de la taille des grains quand la vitesse de croissance augmente. Cette observation est confirmée par les mesures de la taille des grains en considérant le diamètre du disque équivalent à sa surface (Figure III-16). Il est intéressant de souligner que les points expérimentaux montrent une évolution sensiblement identique, indépendamment du gradient de température appliqué dans les expériences.

Pour les vitesses de solidification inférieures à 30 $\mu\text{m/s}$, la taille des grains diminue très rapidement avec l'augmentation de la vitesse. Par la suite, la taille diminue plus doucement jusqu'à atteindre un plateau (Figure III-16). La taille asymptotique moyenne pour les trois gradients de température est de l'ordre de 180 μm . Pour ces grandes vitesses, le nombre de grains qui germent est très élevé (plusieurs centaines dans le champ de vue), par conséquent si le nombre de grains augmente, l'impact sur la variation de taille sera plus faible.

Figure III-16 : Graphe montrant la variation de la taille de grains en fonction de la vitesse de solidification pour trois gradients de température différents.



Pour chaque expérience, nous avons généré des histogrammes de la distribution de la taille des grains afin d'obtenir des informations complémentaires sur la microstructure en fonction de la vitesse de croissance. La Figure III-17 montre les histogrammes de la distribution en taille pour les expériences réalisées avec une vitesse de solidification entre $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$ pour $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$.

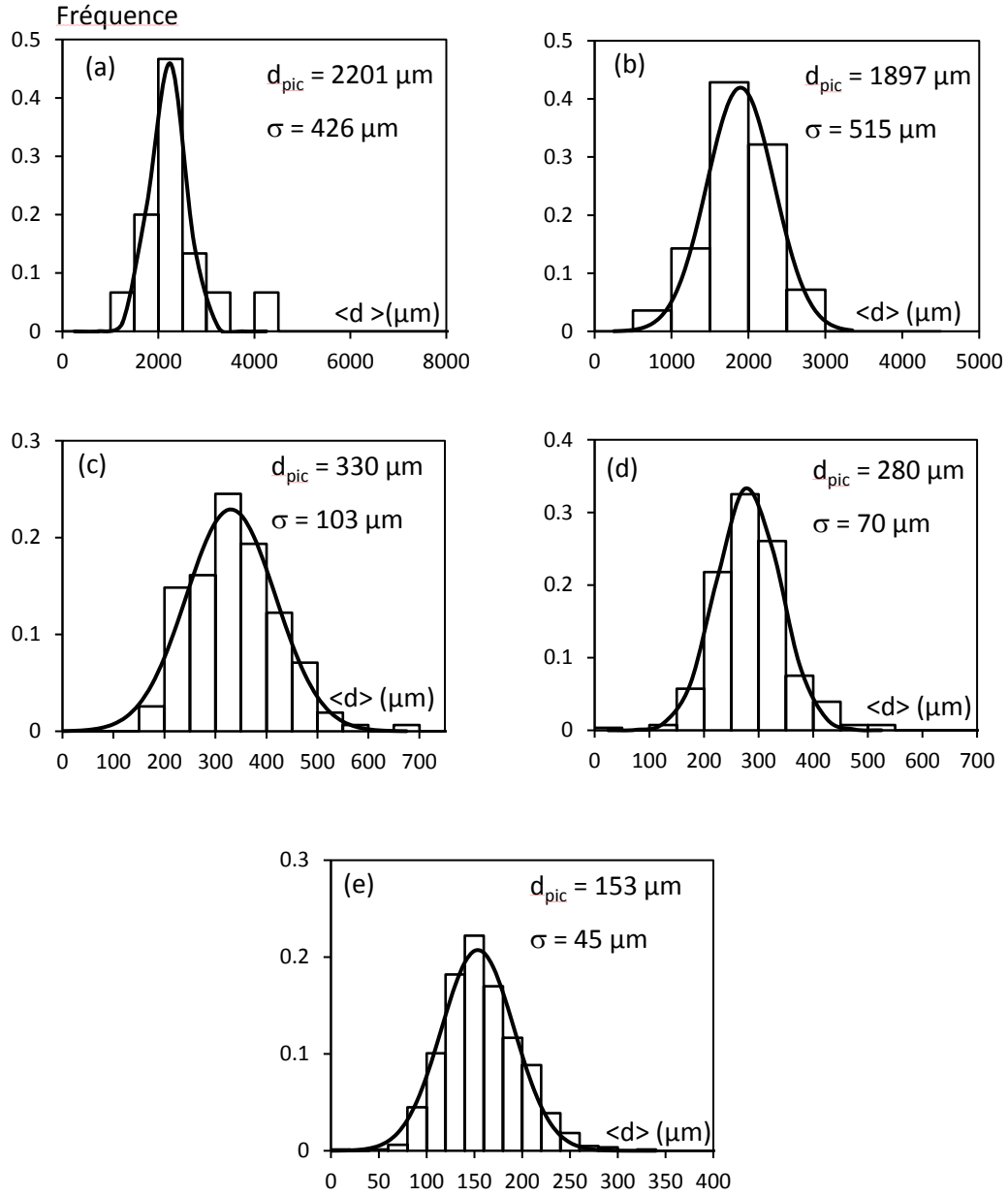
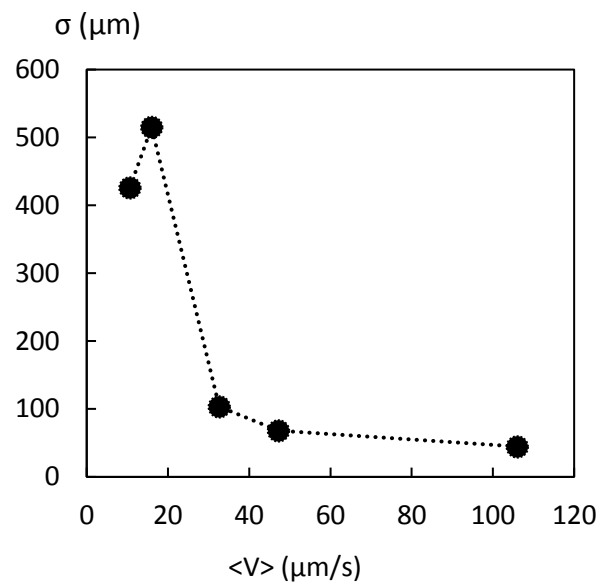


Figure III-17 : Histogrammes montrant la distribution en taille (diamètre de disque équivalent) pour cinq vitesses de solidification croissantes (a) $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$; (c) $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$; (d) $\langle V \rangle = 47.2 \mu\text{m/s}$ et (e) $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$ d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. La ligne noire correspond à l'ajustement par une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

D'après ces graphiques nous pouvons constater que :

- Pour les faibles vitesses de croissance (Figure III-17a et Figure III-17b), le diamètre des grains majoritaires est de l'ordre du millimètre et proche de la valeur moyenne obtenue par la mesure du diamètre du disque équivalent ce qui est attendu pour une loi gaussienne.
- Pour les vitesses de solidification plus rapides ($\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$, $47.2 \mu\text{m/s}$, $106 \mu\text{m/s}$) dans les Figure III-17c, d, et f respectivement), le diamètre des grains est de l'ordre de la centaine de micromètres. De plus, la largeur des gaussiennes diminue significativement avec l'augmentation de la vitesse (Figure III-18), ce qui signifie que la distribution en taille devient plus uniforme.

Figure III-18 : Variation de la largeur à mi-hauteur σ déduite de la fonction gaussienne qui ajuste les histogrammes de distribution de taille en fonction de la vitesse de solidification $\langle V \rangle$.



III.2.3 Effet de V sur la morphologie de grain

a) Facteur d'allongement

Pour caractériser le degré d'anisotropie de la forme des grains, nous utiliserons le facteur d'allongement ou rapport d'aspect ϕ défini par (section II.6.2a) :

$$\phi = \frac{L_1}{L_2} \quad \text{Eq. III-1}$$

Rappelons que, d'après le critère de J. D. Hunt (*Hunt, 1984*), un grain est dit « équiaxe » si $\phi < 2$ et un grain est dit allongé si $\phi > 2$.

Les radiographies des expériences (section 0) montrent que l'augmentation de la vitesse de solidification induit une évolution de la structure de grain qui passe d'une structure allongée à une structure de plus en plus équiaxe (Figure III-15).

La Figure III-19 montre les histogrammes du facteur d'allongement ϕ pour cinq vitesses de solidification. Ces histogrammes sont bien décrits par une loi de type log-normale, avec une largeur σ et une asymétrie μ entre les parties gauche et droite de part et d'autre du maximum.

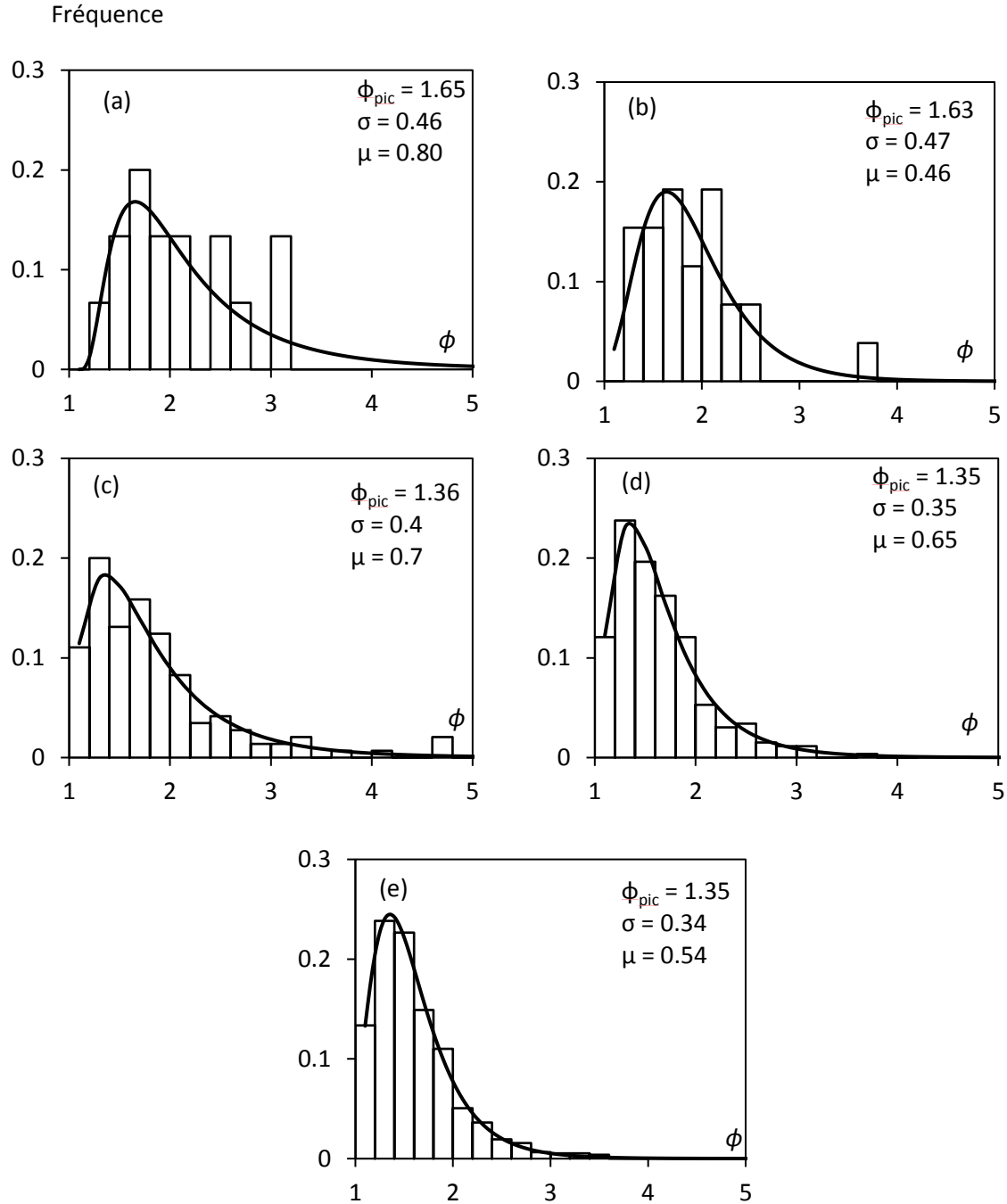


Figure III-19 : Histogrammes du rapport d'aspect des axes perpendiculaires ϕ pour cinq vitesses de germinations croissante (a) $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$; (c) $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$; (d) $\langle V \rangle = 47.2 \mu\text{m/s}$ et (e) $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$ d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe log-normale. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

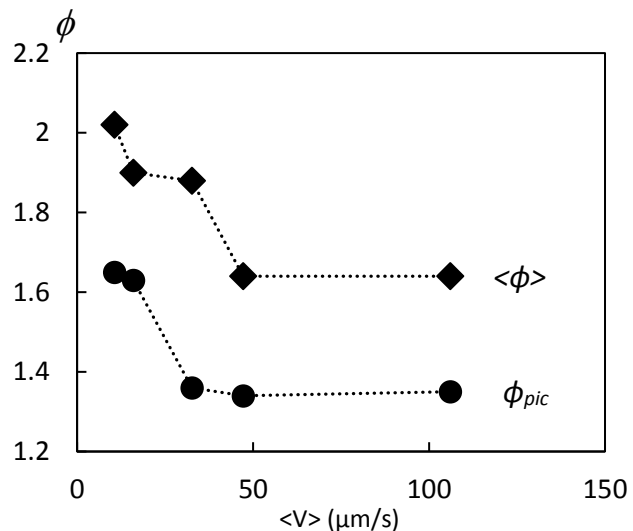
En analysant les histogrammes de la Figure III-19, nous pouvons remarquer que lorsque la vitesse de solidification augmente :

- Le nombre de grains de type équiaxe ($\phi < 2$) augmente au détriment des « grains allongés » ($\phi > 2$), ce qui est en accord avec l'analyse visuelle des radiographies.
- La largeur de la distribution σ et l'asymétrie μ diminuent, ce qui signifie que les grains sont de plus en plus homogènes en morphologie.
- Nous remarquons aussi que l'allongement de certains grains isolés peut atteindre des valeurs supérieures à 4 pour la vitesse $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$.

La Figure III-20 présente l'évolution de la valeur du rapport d'aspect obtenue en faisant la moyenne arithmétique $\langle \phi \rangle$ et celle déduite des histogramme (ϕ_{pic}) en fonction de la vitesse de solidification. Les tendances sont identiques mais la moyenne arithmétique donne des valeurs plus grandes, ce qui est attendu pour une loi de type log-normale. En effet, la moyenne arithmétique prend en compte toutes les valeurs du rapport d'aspect alors que la valeur donnée par le pic représente la classe majoritaire des grains.

Figure III-20 : Variation du facteur d'allongement ϕ en fonction de la vitesse de solidification $\langle V \rangle$.

- Losanges noirs : rapport d'aspect calculé à partir du moyen arithmétique $\langle \phi \rangle$
- Points noirs : rapport d'aspect déduit à partir des histogrammes de distribution ϕ_{pic}



Pour les basses vitesses ($< 50 \mu\text{m/s}$), le rapport d'aspect ϕ diminue de manière abrupte, traduisant le passage d'une structure constituée de grains allongés vers une structure de type équiaxe. Pour les vitesses de solidification plus grandes ($> 50 \mu\text{m/s}$), les rapports d'aspect n'évoluent plus et atteignent des valeurs limites de 1.64 pour $\langle \phi \rangle$ et 1.35 pour ϕ_{pic} . Ceci signifie que, bien que la structure soit de type équiaxe au sens de Hunt, la présence d'un gradient thermique empêche l'obtention de grains parfaitement isotrope ($\langle \phi \rangle = 1$). Ce résultat montre que la taille des grains peut varier pour les expériences réalisées avec des grandes vitesses sans modification notable de la morphologie des grains.

b) Orientation des grains

Pour compléter la caractérisation de la morphologie des grains, leur orientation par rapport à la direction du gradient de température G a été mesurée. La Figure III-21 montre les histogrammes de distribution des angles θ mesurés entre l'axe principal du grain dendritique et le gradient de température G , pour cinq vitesses de solidification. Les histogrammes montrent une distribution gaussienne pour l'orientation θ .

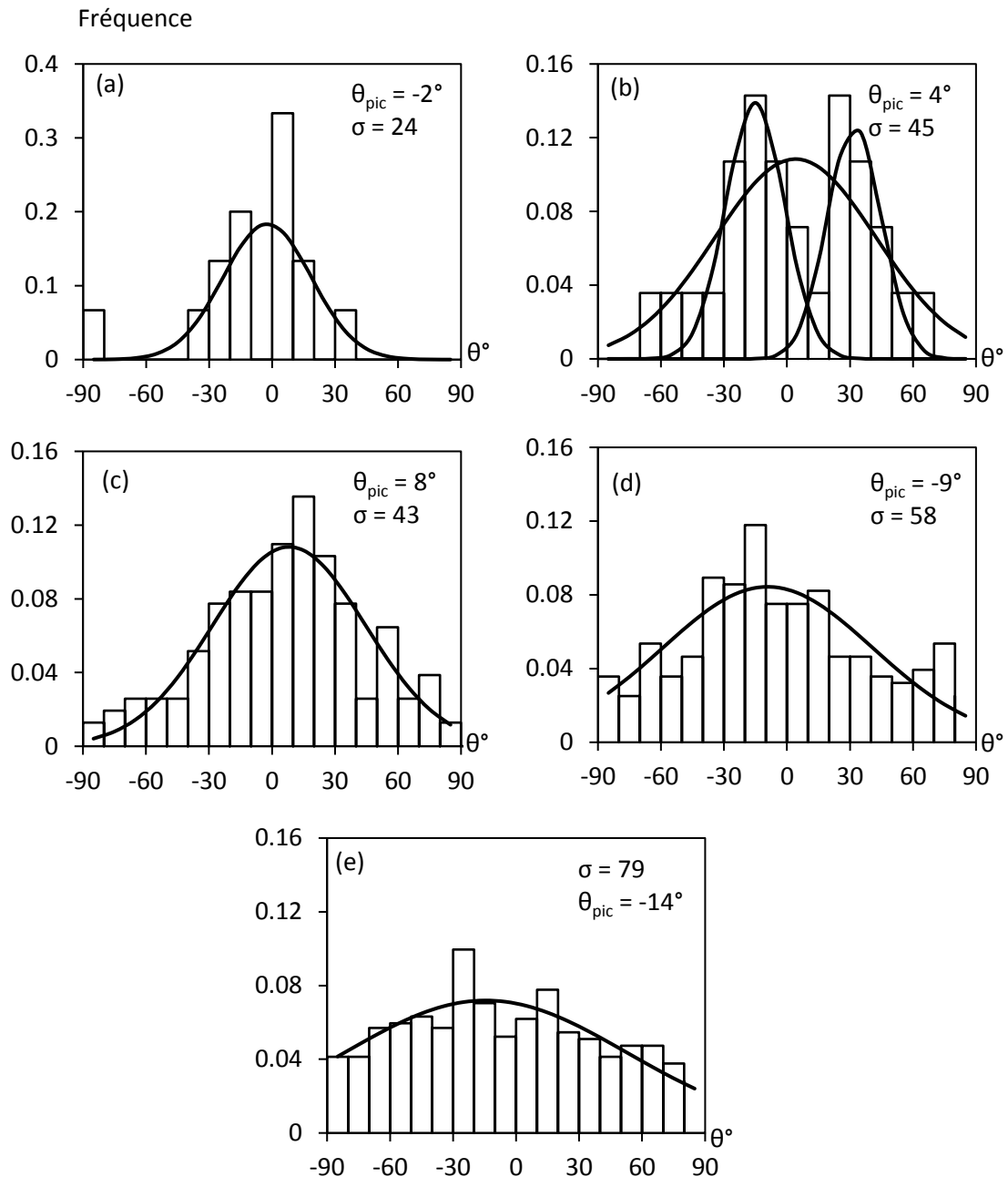


Figure III-21 : Histogrammes d'angle d'orientation θ pour cinq vitesses de germinations croissantes (a) $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$; (c) $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$; (d) $\langle V \rangle = 47.2 \mu\text{m/s}$ et (e) $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$ d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

À partir de la Figure III-21 nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- À basse vitesse de solidification (Figure III-21a), malgré le petit nombre de grains (« seulement » 52 grains), l'orientation de la majorité des grains est dans le sens du gradient de température.
- Pour $\langle V \rangle = 16 \mu\text{m/s}$, (Figure III-21b), nous observons deux pics symétriques dans l'histogramme (à -15° et $+15^\circ$), chacun pouvant être ajusté par une gaussiennes (traits noirs).
- Pour les vitesses plus rapides, de $\langle V \rangle = 32.6 \mu\text{m/s}$ (Figure III-21c) à $\langle V \rangle = 106 \mu\text{m/s}$ (Figure III-21e), l'orientation des grains devient de plus en plus aléatoire, indépendante de la direction du gradient de température, ce qui se traduit sur les histogrammes par une augmentation de la largeur à mi-hauteur σ .

III.2.4 Discussion sur les effets de la vitesse de solidification sur la microstructure.

Les principaux effets observés suivant la variation de la vitesse de solidification sont :

- La taille des grains diminue avec l'augmentation de la vitesse de solidification. Cette taille atteint une valeur asymptotique pour les grandes vitesses de solidification.
- Les grains sont allongés à basses vitesses de solidification et tendent à être équiaxe pour les vitesses de solidification rapides.
- Les grains sont préférentiellement orientés dans le sens du gradient de température à faible vitesse de solidification et tendent vers une orientation aléatoire aux vitesses de solidification plus élevées.

a) Effet de la vitesse de solidification sur la densité (ou taille) des grains

Les effets de la vitesse de solidification sur la taille et la morphologie des grains peuvent être expliquées en considérant la surfusion de constitution du liquide devant le front de solidification. Rappelons qu'au cours de la solidification d'un grain équiaxe, il y a formation d'une couche solutale en avant de la pointe de la dendrite qui donne naissance à une zone de liquide surfondu. Dans le cas du modèle hémisphérique que nous avons décrit dans le premier chapitre, le profil de température devant la pointe est décrit par l'équation Eq. III-2 et représenté dans la Figure III-22a :

$$T_{eq}(z) = T_M + mC(r) = T_M + mC_0 + m\left(\frac{R_h}{r}(C^* - C_0)\right) \quad \text{Eq.III-2}$$

Avec R_h le rayon de l'hémisphère et C^* la concentration à la pointe.

À partir du profil de température devant la pointe, il est facile de déduire la variation de la surfusion de constitution $\Delta T = (T_{eq} - T_L)$ en fonction de la distance devant la pointe (Figure III-22b). Ce profil présente une surfusion maximale ΔT_{max} donné par :

$$\Delta T_{max} = m(C_0 - C^*) + GR_h - \sqrt{m(C_0 - C^*)R_h} \left(\frac{1}{\sqrt{1/G}} + \sqrt{G} \right) \quad \text{Eq.III-3}$$

La longueur de la zone de liquide surfondue est donnée par :

$$l_s = (T_l - T_{tip})/G \quad \text{Eq.III-4}$$

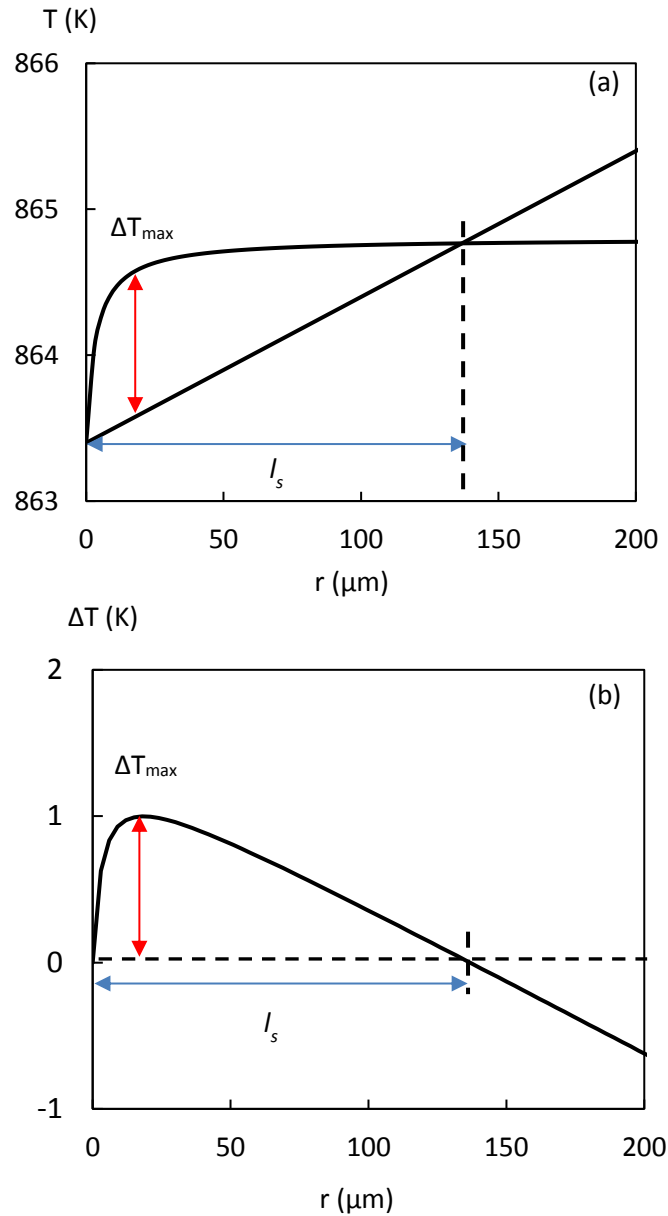


Figure III-22 : (a) Profil thermique devant une pointe hémisphérique en fonction de la distance devant la pointe calculée pour Al-20%*pds*Cu, $G = 10 \text{ K/mm}$ et $V = 47.2 \mu\text{m/s}$. (b) Variation de l'intensité de la surfusion de constitution devant la pointe calculée pour Al-20%*pds*Cu, $G = 10 \text{ K/mm}$ et $V = 47.2 \mu\text{m/s}$.

Les variations de ΔT_{max} et l_s en fonction de la vitesse de solidification sont représentées dans la Figure III-23. Ces graphes montrent que l'augmentation de la vitesse de solidification V entraîne une augmentation simultanée (i) de l'intensité maximale de la surfusion de constitution devant la pointe ΔT_{max} (Figure III-23a) et (ii) de la longueur de la zone surfondue l_s (Figure III-23b).

Par exemple, pour la vitesse $V = 10.6 \mu\text{m/s}$, l'intensité maximale de la zone surfondue devant la pointe de la dendrite est de l'ordre de 0.3 K pour une longueur l_s d'environ 60 μm alors que pour la vitesse $V = 47.2 \mu\text{m/s}$, les valeurs sont de 1 K et 140 μm respectivement.

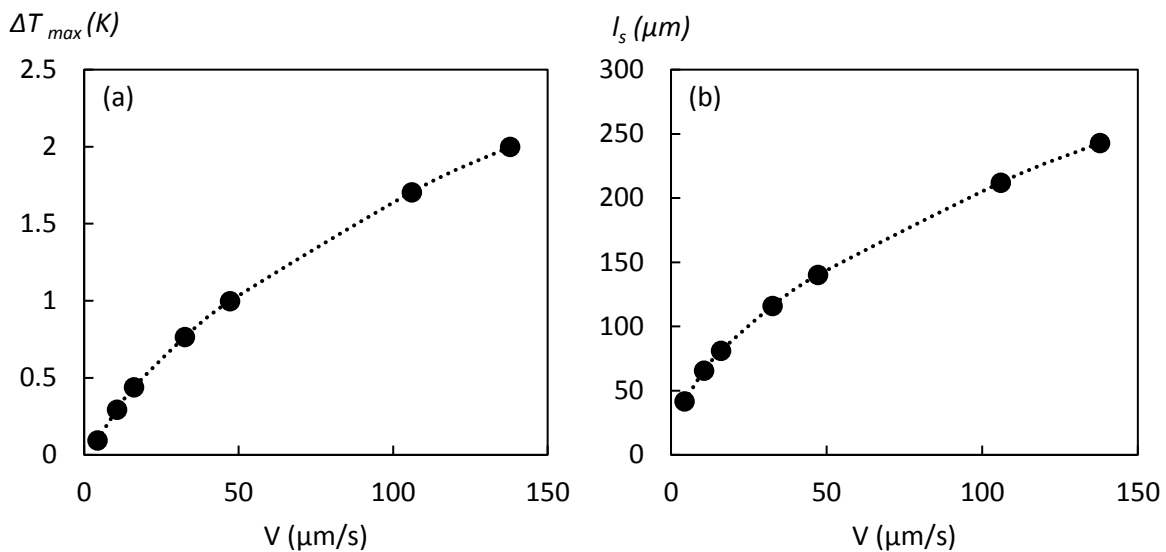


Figure III-23 : (a) Profil de la variation de la surfusion maximale ΔT_{max} en fonction de la vitesse de solidification (b) Profil de la variation de la longueur de la zone surfondue l_s en fonction de la vitesse de solidification

La diminution de la taille des grains avec l'augmentation de la vitesse de solidification est donc liée à l'augmentation de la surfusion devant le front et à la distribution en taille des particules affinantes. Pour les basses vitesses et donc faibles surfusions, seules les particules affinantes de grand diamètre sont activées (Greer et al. 2003), ce qui donnant naissance à un petit nombre de grains (Figure III-24a) qui vont se développer avant la germination de nouveaux grains. L'augmentation de la vitesse de solidification induit une augmentation de la surfusion devant le front, ce qui entraîne l'activation d'un plus grand nombre de particules affinantes, de taille plus petites (Figure III-24b et Figure III-24c). L'accroissement du nombre de grains augmente leur interaction et diminue donc leur phase de croissance. Un grand nombre de grains germés correspond donc à des tailles plus petites.

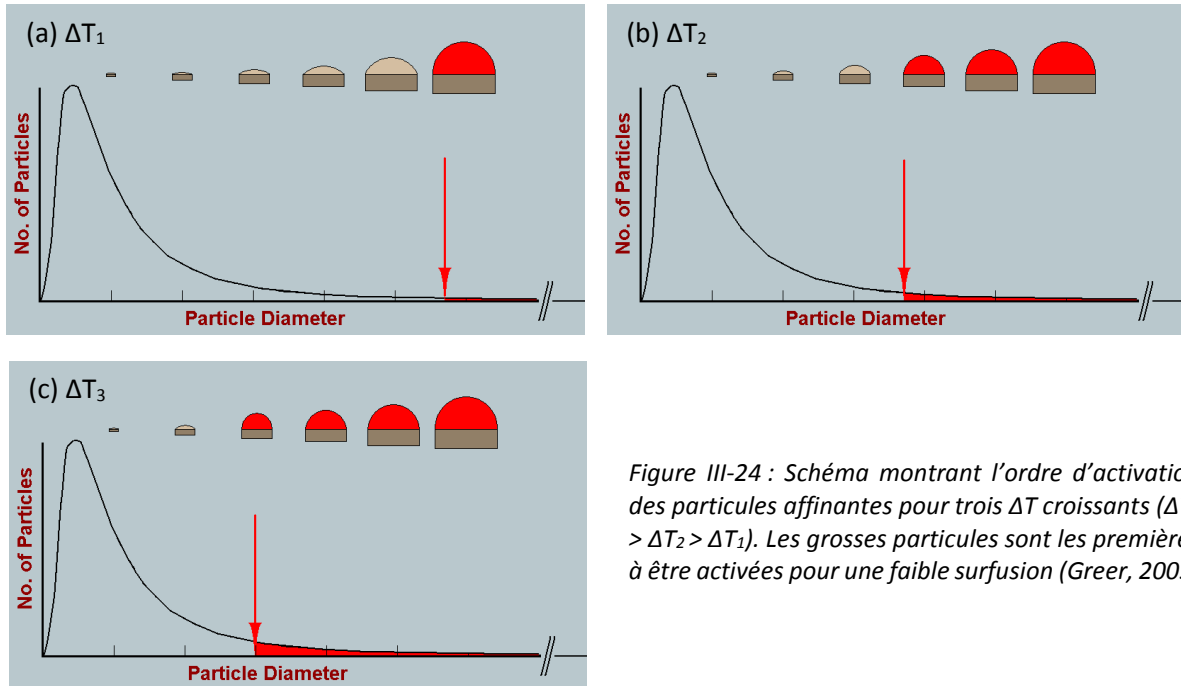


Figure III-24 : Schéma montrant l'ordre d'activation des particules affinantes pour trois ΔT croissants ($\Delta T_3 > \Delta T_2 > \Delta T_1$). Les grosses particules sont les premières à être activées pour une faible surfusion (Greer, 2003)

La Figure III-16 suggère une valeur limite de la taille pour les grandes vitesses de solidification. Le faible nombre de Lewis ($L_e = D_L/D_{th}$) des alliages métalliques signifie que les effets dû à la diffusion de soluté sont les effets limitant la germination/croissance des grains équiaxes. Par conséquent, la saturation de la taille des grains peut être attribuée au phénomène de blocage solutale ou « effet d'empoisonnement » (Billia et al. 2010) (Bogno et al. 2013). Ce phénomène qui limite la croissance des grains est provoqué par le rejet du soluté par les grains équiaxes au cours de leur solidification, qui enrichit le liquide inter-dendritique environnant. L'augmentation de la composition du liquide inter-dendritique réduit localement l'intensité de la surfusion de constitution et empêche l'activation des particules affinantes dans une zone autour des grains. Cette zone autour des grains où la germination des particules affinantes ne peut avoir lieu a été appelée « *Inhibited Nucleation Zone* » (INZ) par Y. Xu et al. (Xu et al. 2018).

Un raisonnement identique pourrait être fait pour la thermique : quand de nouveaux grains germent et croissent, ils libèrent de la chaleur latente qui augmente la température autour des grains, ce qui réduit localement la surfusion et empêche l'activation des particules affinantes dans une zone autour des grains (Maxwell and Hellawell, 1975). Cependant, dans nos expériences, aucun pic de recalescence n'a été détecté au niveau des thermocouples même pour les vitesses de refroidissement les plus rapides. Ceci suggère que cet effet est négligeable comparée à l'effet solutal.

b) Effet de la vitesse de solidification sur la morphologie des grains

La morphologie des grains est principalement dictée par le nombre de grains qui ont germé, l'interaction entre grains voisins et le gradient thermique appliqué. La radiographie X in situ permet une analyse détaillée de la formation de la microstructure équiaxe au cours du temps. Nous observons que, après leur germination, les grains vont se développer librement jusqu'à leur interaction avec des grains voisins (*Bogno et al. 2013*).

Cette interaction est différente suivant la direction considérée :

- La croissance d'un grain équiaxe vers la zone froide est rapidement stoppée par les grains déjà existants (Figure III-25b, bras B1).
- La croissance latérale d'un grain équiaxe cesse ensuite par interaction avec les grains voisins, qui ont germé sensiblement au même instant (Figure III-25b, bras B2) ou avec les bras primaires des grains existants (Figure III-25c, d, Bras B3).
- La croissance du bras primaire pointant vers la zone chaude (Figure III-25b, bras B4), dans le sens opposé au flux de chaleur, va créer une nouvelle couche solutale devant la pointe de la dendrite. Quand la surfusion atteint une valeur suffisante, une nouvelle couche de grains équiaxes va germer et bloquer la croissance du grain considéré.

Cette « histoire » du grain explique le grand allongement des grains et leur orientation privilégiée dans le sens du gradient de température à faible vitesse, quand peu de particules sont activées.

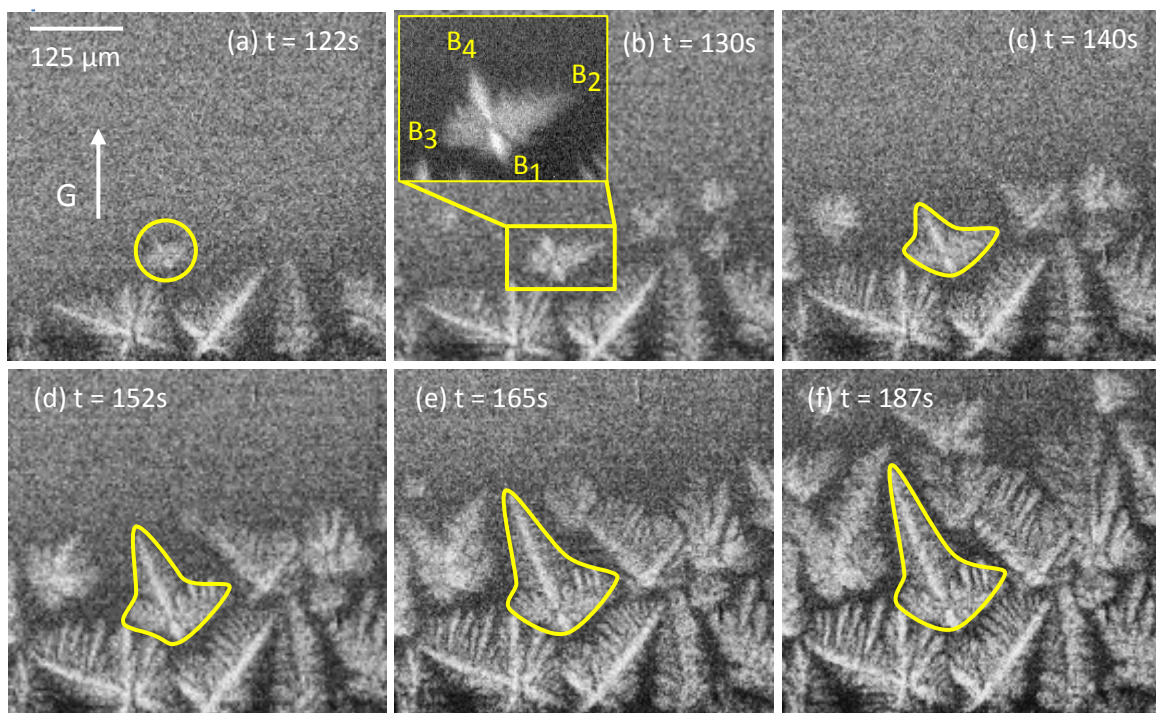


Figure III-25 : Série de radiographies montrant les étapes de blocage d'un grain équiaxe : (a) germination du grain (b) blocage de la croissance du grain vers le bas par les grains déjà existants, (c)(d)(e) blocage de la croissance latérale du grain par les grains voisins et enfin (f) blocage de la croissance du grain vers le haut.

Pour des vitesses de solidification plus élevées, l'intensité de la zone surfondue devant le front de germination ainsi que sa longueur augmentent et une gamme plus large de tailles de particules affinantes sera activée. À cause du grand nombre de grains formés, les effets induits par l'interaction d'un grain équiaxe avec ses grains voisins seront plus intenses. Ceci aura pour conséquence de limiter son allongement. Les grains auront donc des formes qui se rapproche du type équiaxe ($\phi \sim 1$).

c) Distance de germination l_g

Dans la mesure où la longueur de la couche de liquide surfondue l_s est plus grande à grandes vitesses de solidification qu'à faibles vitesses de solidification (Figure III-23b). La germination des grains devrait avoir lieu plus loin du front de solidification à grande vitesse. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons mesuré la distance entre la pointe d'une dendrite et le centre d'un grain qui a germé devant cette pointe (Figure III-26), que nous appellerons « distance de germination l_g ». La configuration « idéale » pour pouvoir réaliser ce type de mesure n'a été observée que dans certaines expériences et pour quelques rares dendrites (Tableau III-3). Les mesures ne montrent pas de variation significative de la distance de germination en fonction de la vitesse de solidification.

De plus, les valeurs obtenues, de l'ordre de 200 μm , sont deux fois plus grandes que les prédictions du modèle hémisphérique. Ce désaccord peut être attribué à l'épaisseur finie de nos échantillons alors que le modèle hémisphérique considère une situation 3D. Dans nos expériences, la quantité de soluté rejeté est probablement transportée plus loin en avant du front de solidification, ce qui provoque la germination des grains plus loin que prévu par le modèle hémisphérique.

Figure III-26 : Exemples de mesure de la distance entre la pointe d'une dendrite et le centre de grains germé devant la pointe pour $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 16,1 \mu\text{m/s}$.

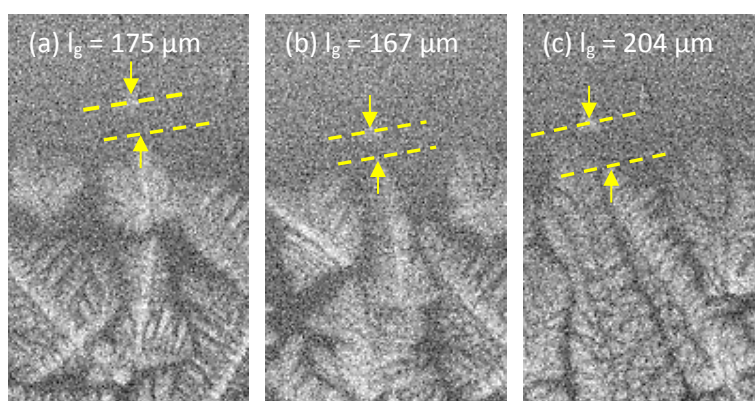


Tableau III-3 : Mesures de la distance entre la pointe d'une dendrite et le centre du plus proche grain ayant germé devant la pointe pour $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et trois vitesses de solidification.

	l_g : dendrite1 (μm)	l_g : dendrite2 (μm)	l_g : dendrite3 (μm)	l_g : dendrite4 (μm)
$\langle V \rangle = 16,1 \mu\text{m/s}$	175	167	204	/
$\langle V \rangle = 32,6 \mu\text{m/s}$	280	180	79	/
$\langle V \rangle = 47,2 \mu\text{m/s}$	213	169	240	173

III.3 Effet du gradient de température sur la structure de grain

Dans la partie précédente nous avons analysé les effets de la vitesse de solidification sur la structure de grains pour un gradient de température fixe de $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. Dans cette seconde partie, nous allons discuter des effets du gradient de température sur la formation des microstructures durant des expériences réalisées avec des vitesses de solidification identiques ou proches.

III.3.1 Comparaison des microstructures pour des gradients de température différents.

À partir des mêmes expériences décrites dans la partie III-1, nous avons sélectionné cinq couples d'expériences pour lesquels les vitesses de solidification sont très proches voire identiques, mais avec des valeurs différentes pour le gradient de température :

- La Figure III-27 montre trois de ces couples d'expériences, pour des vitesses intermédiaires à grandes (comme défini dans la section III.2.1), $\langle V \rangle = 25 \pm 1 \text{ } \mu\text{m/s}$, $75 \pm 1 \text{ } \mu\text{m/s}$ et $210 \pm 4 \text{ } \mu\text{m/s}$. Pour ces vitesses, nous comparerons les effets induits par une différence du gradient de température entre $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ (colonne de gauche) et $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ (colonne de droite).
- La Figure III-28 montre deux autres couples d'expériences réalisées à plus basse vitesses de solidification. La Figure III-28a1 et b1, correspond à une vitesse de $11 \pm 0.6 \text{ } \mu\text{m/s}$ et pour des gradients de température de 4 K/mm et 10 K/mm . La Figure III-28 a2 et b2, correspond à une vitesse de $17.0 \pm 0.9 \text{ } \mu\text{m/s}$ et pour des gradients de température de 6 K/mm et 10 K/mm .

La comparaison qualitative deux à deux des expériences montre que, quel que soit la vitesse de solidification :

- La proportion de liquide inter-dendritique est plus importante quand le gradient de température est faible et donc la distance de germination entre les grains est plus importante.
- À vitesse identique, un gradient de température plus fort semble donner des grains dendritiques plus allongés.

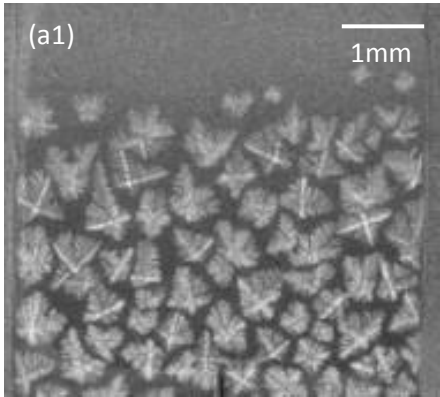
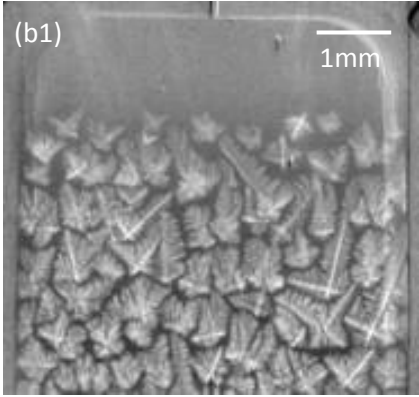
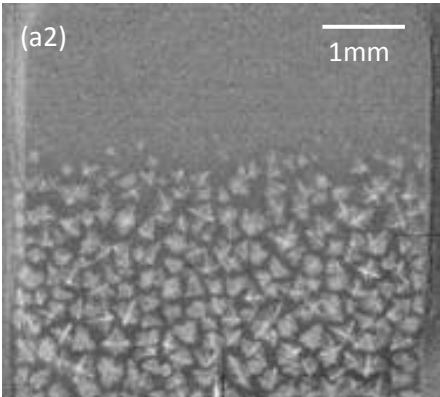
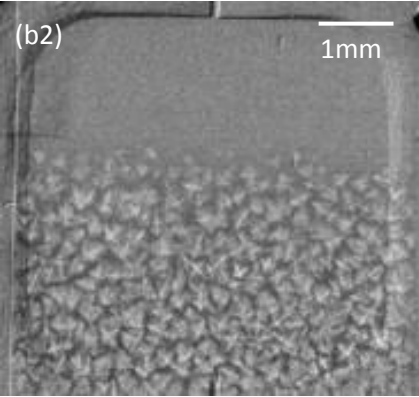
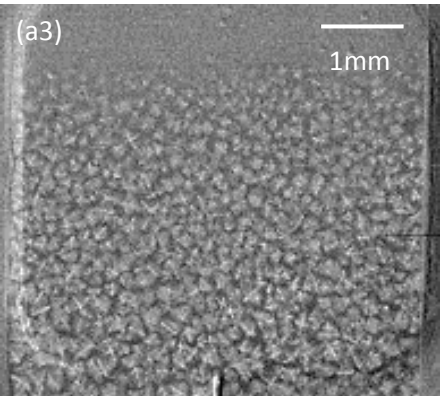
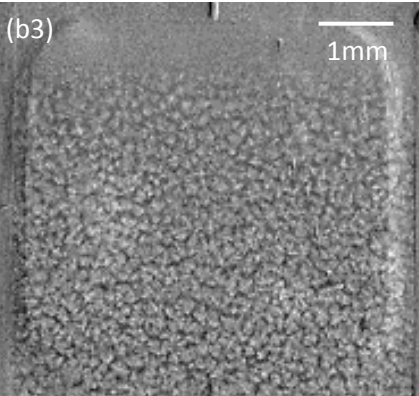
$\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$	$\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$
(a1)  $\langle V \rangle = 25 \text{ }\mu\text{m/s}$	(b1)  $\langle V \rangle = 24.6 \text{ }\mu\text{m/s}$
(a2)  $\langle V \rangle = 76.3 \text{ }\mu\text{m/s}$	(b2)  $\langle V \rangle = 74 \text{ }\mu\text{m/s}$
(a3)  $\langle V \rangle = 206 \text{ }\mu\text{m/s}$	(b3)  $\langle V \rangle = 214 \text{ }\mu\text{m/s}$

Figure III-27 : Radiographies des expériences réalisées à des vitesses de solidification (intermédiaire et rapides) proches et pour des gradients de température $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ (colonne de gauche) et $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ (colonne de droite).

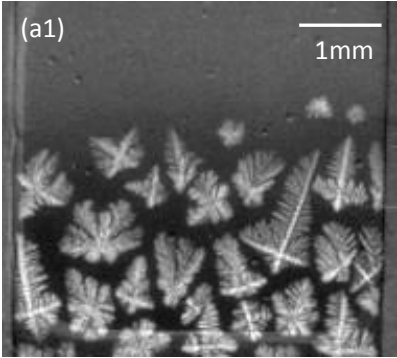
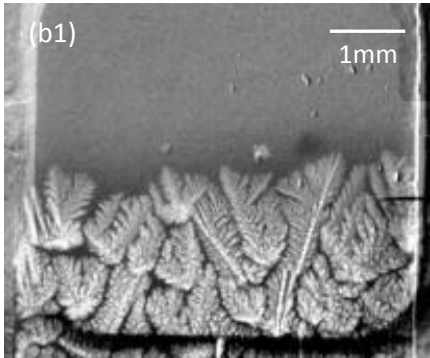
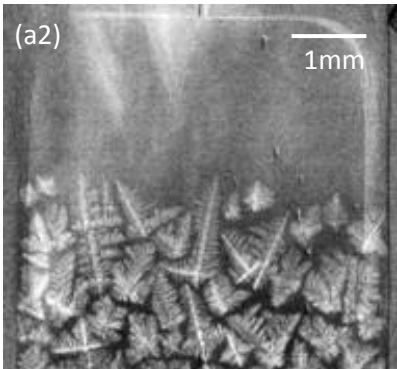
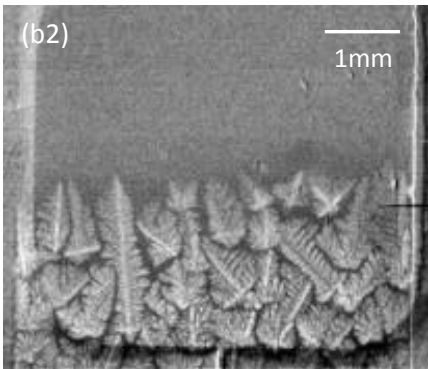
$\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$	$\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$
(a1)  $\langle V \rangle = 11.7 \text{ } \mu\text{m/s}$	(b1)  $\langle V \rangle = 10.6 \text{ } \mu\text{m/s}$
$\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$	$\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$
(a2)  $\langle V \rangle = 17.9 \text{ } \mu\text{m/s}$	(b2)  $\langle V \rangle = 16.1 \text{ } \mu\text{m/s}$

Figure III-28 : Radiographies des expériences réalisées à des basses vitesses de solidification proches pour l'alliage Al-20%*pds* Cu : (a1) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et (b1) $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$; (a2) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et (b2) $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$.

III.3.2 Effet du gradient de température sur la distance de germination

Sur les radiographies, l'observation la plus remarquable est qu'un gradient de température plus faible donne naissance à une structure de grain avec une plus forte proportion de liquide inter-dendritique, ce qui suggère une plus grande distance de germination. Pour quantifier cet effet, nous avons effectué des mesures de la distance de germination, défini comme la distance entre le centre de germination du grain et la pointe dendritique la plus proche (Figure III-29a), pour les expériences réalisées à $\langle V \rangle = 25 \mu\text{m/s}$. Les histogrammes des distances de germination sont présentés Figure III-29b, avec la valeur moyenne pour chacun des gradients de température (en gris clair pour $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et gris foncé pour $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$). Les mesures montrent un facteur 1.5 entre les deux expériences réalisées avec deux gradients de température différents et confirment l'impression visuelle des microstructures.

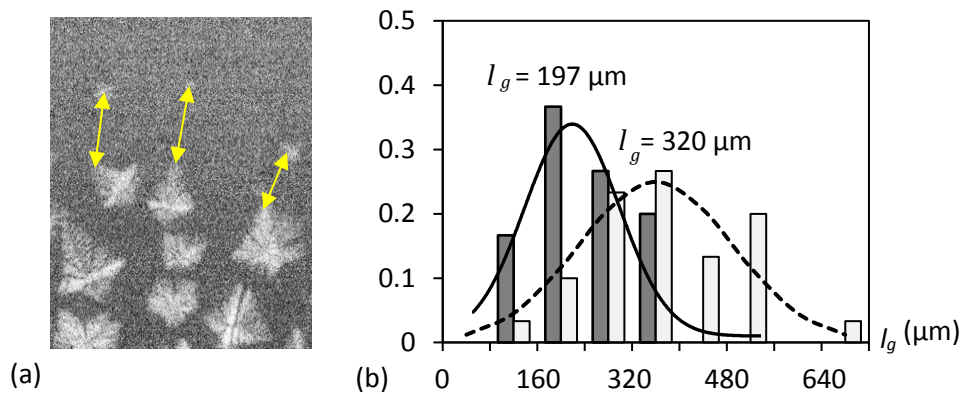


Figure III-29 : (a) Exemple de mesure de la distance entre la pointe dendritique d'un grains et le centre d'un grains qui germe près de celle-ci ; (b) histogramme de la distribution des distances mesurées pour deux expériences réalisées à $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 25 \mu\text{m/s}$ (en gris clair) et à $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$ (en gris foncé).

L'augmentation de la distance de germination pour les autres couples est aussi confirmée mais moins importante à cause de l'augmentation de la vitesse de solidification. De plus, la résolution temporelle utilisée ne nous permet pas d'effectuer des mesures précises de la distance de germination pour les vitesses élevées. Cependant, une estimation « grossière » de cette distance de germination est faisable pour le couple d'expériences réalisées à $\langle V \rangle = 75 \mu\text{m/s}$ (Figure III-27 a2 et b2), qui montre que l_g diminue de $\sim 200 \mu\text{m}$ à $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ à $\sim 180 \mu\text{m}$ à $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$.

À basses vitesses de solidification l'augmentation de la distance de germination avec la diminution du gradient de température est encore plus importante. Pour le couple d'expériences à $\langle V \rangle \sim 10 \mu\text{m/s}$ (La Figure III-28 a1 et b1), la distance de germination décroît d'un facteur 2, de $\sim 540 \mu\text{m}$ pour $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ à $\sim 270 \mu\text{m}$ pour $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. De même pour le couple d'expériences à $\langle V \rangle \sim 17 \mu\text{m/s}$ (La Figure III-28 a2 et b2), l_g diminue de $\sim 370 \mu\text{m}$ à $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ à $\sim 270 \mu\text{m}$ à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$. L'origine de cet effet du gradient de température sur la distance de germination sera discutée en détails dans la section III.3.5.

III.3.3 Effet de G sur la taille des grains

Les mesures des valeurs moyennes pour la taille de grains $\langle d \rangle$ pour les différents couples d'expériences sont reportées dans la Figure III-30a. Nous pouvons voir deux comportements différents pour l'influence du gradient de température sur la taille de grains selon la gamme de vitesse de solidification. Pour les vitesses de solidification intermédiaire et rapide (trois couples du bas dans la Figure III-30a), la taille de grains diminue avec l'augmentation du gradient de température, alors que pour les basses vitesses de solidification (deux couples du haut dans la Figure III-30a), l'effet opposé est observé : la taille de grains augmente avec l'augmentation du gradient de température. Ces observations sont également visibles sur le graphe donnant la densité de grains, qui est l'inverse de la taille des grains, en fonction du gradient de température (Figure III-30b).

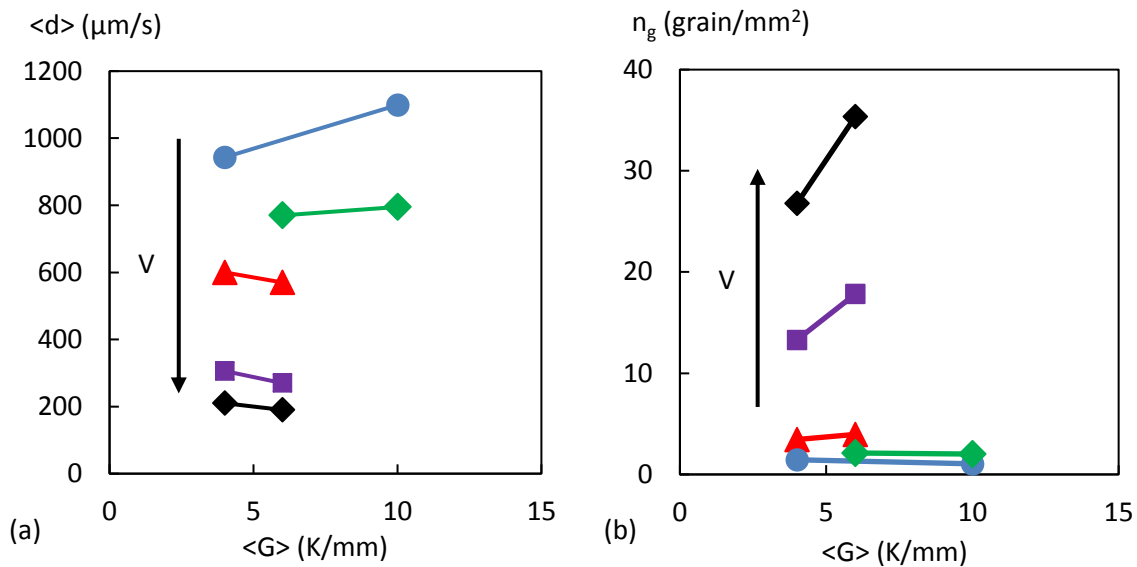


Figure III-30 : (a) Variation de la taille de grains en fonction du gradient de température pour cinq couples des expériences ; (b) Variation de la densité de grains en fonction du gradient de température pour cinq couples des expériences.

Pour chaque expérience, nous avons déterminé des histogrammes de la distribution de la taille des grains afin d'obtenir des informations complémentaires sur la microstructure en fonction du gradient de température.

a) Vitesses de solidification intermédiaire et rapides

La Figure III-31 montre les histogrammes de la distribution de la taille des grains pour des expériences réalisées à une vitesse de solidification intermédiaire (Figure III-31a, b) et rapide (Figure III-31c, d) et pour deux gradients de température $\langle G \rangle = 4$ K/mm et $\langle G \rangle = 6$ K/mm. Pour ces deux couples d'expériences, la taille des grains diminue de $\sim 10\%$ avec l'augmentation du gradient de température.

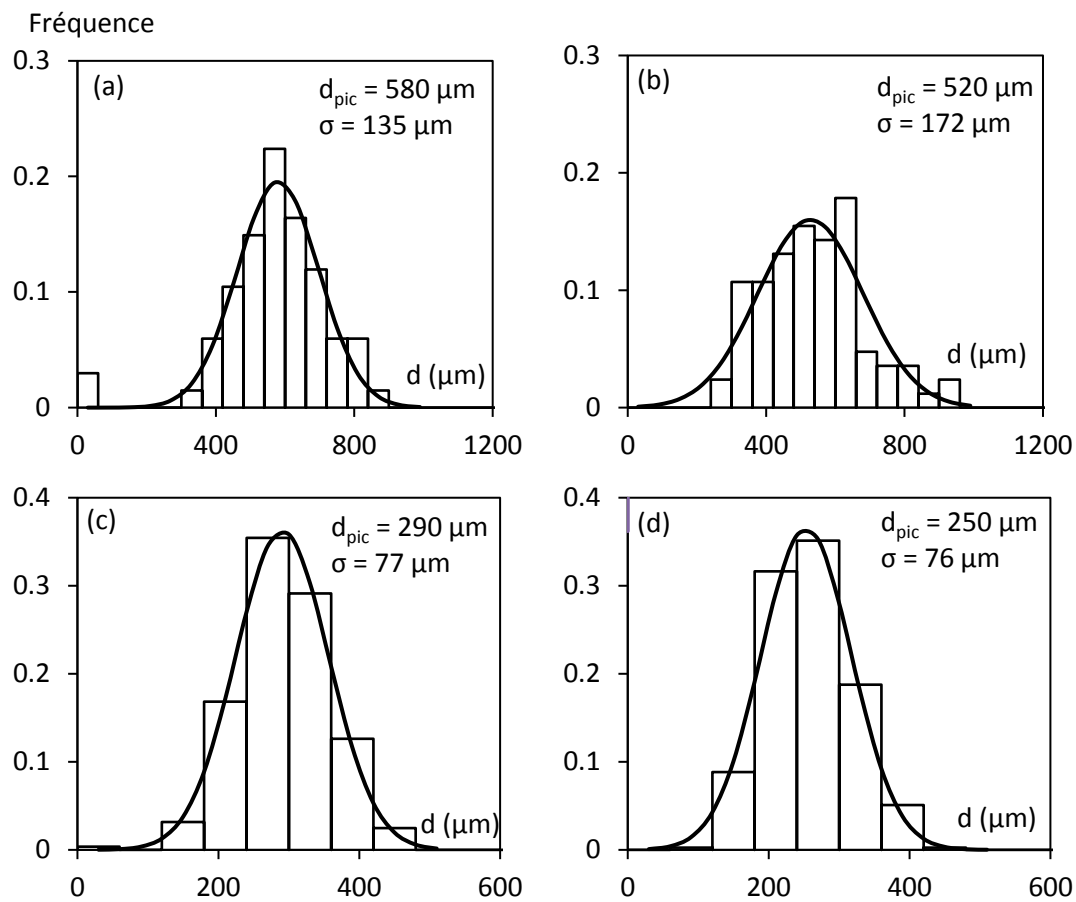


Figure III-31 : Histogrammes de la distribution de taille des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 25 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24,6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 76,3 \mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 74 \mu\text{m/s}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

Les deux histogrammes du haut ($\langle V \rangle \sim 25 \mu\text{m/s}$) montrent un élargissement de la distribution en taille quand le gradient de température augmente, alors que la largeur à mi-hauteur des deux histogrammes du bas ($\langle V \rangle \sim 75 \mu\text{m/s}$) ont sensiblement la même largeur à mi-hauteur. Ceci suggère que l'impact du gradient de température sur la distribution de taille diminue avec l'augmentation de la vitesse.

b) Basses vitesses de solidification :

Contrairement aux cas des vitesses intermédiaire ou élevés, la Figure III-32 montre que pour les expériences à basses vitesses de solidification, la taille de grains augmente d'un facteur supérieur à 2 avec le gradient de température et également la largeur à mi-hauteur, ce qui est le signe d'une structure plus petite et plus uniforme en taille à faible gradient de température et basse vitesse de solidification.

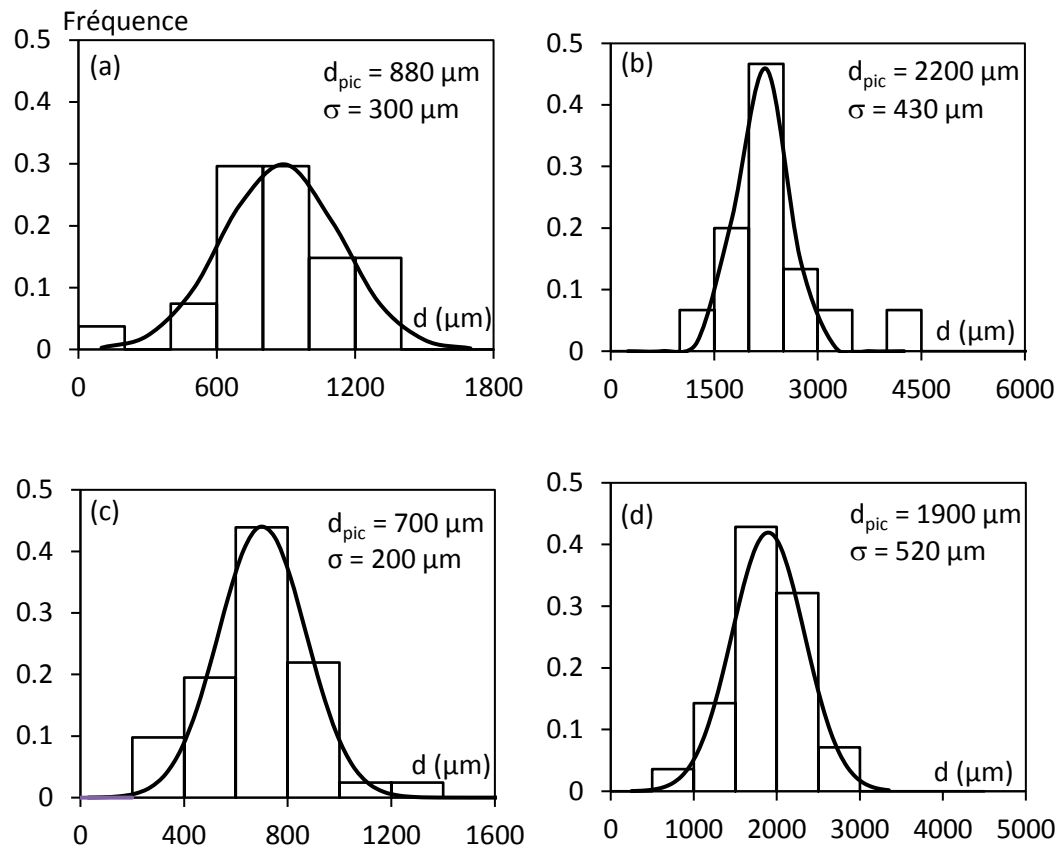


Figure III-32 : Histogrammes de distribution de taille des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 11.7 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 17.9 \mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 16.1 \mu\text{m/s}$. La ligne noire correspond à l'ajustement pour une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

III.3.4 Effet de G sur la morphologie des grains

Lors de la solidification en lingotière, Il est bien connu que la diminution graduelle du gradient de température de la paroi vers le centre du lingot provoque la transition colonnaire-équiaxe (*Hunt, 1984*). Il est donc important d'analyser l'influence du gradient de température sur la morphologie des grains (facteur d'allongement et orientation de grains). Il faut cependant souligner que la gamme de gradients de température dans nos expériences (entre 4 K/mm et 10 K/mm) n'est nullement comparable avec les variations qui peuvent avoir lieu lors des processus industriels.

a) Allongement de grains

La Figure III-33 montre les histogrammes du facteur d'allongement ϕ des grains pour les expériences réalisées pour les vitesses de solidification intermédiaires et élevées. La Figure III-34 montre les histogrammes de distribution du facteur d'allongement des expériences réalisées à basses vitesses de solidification.

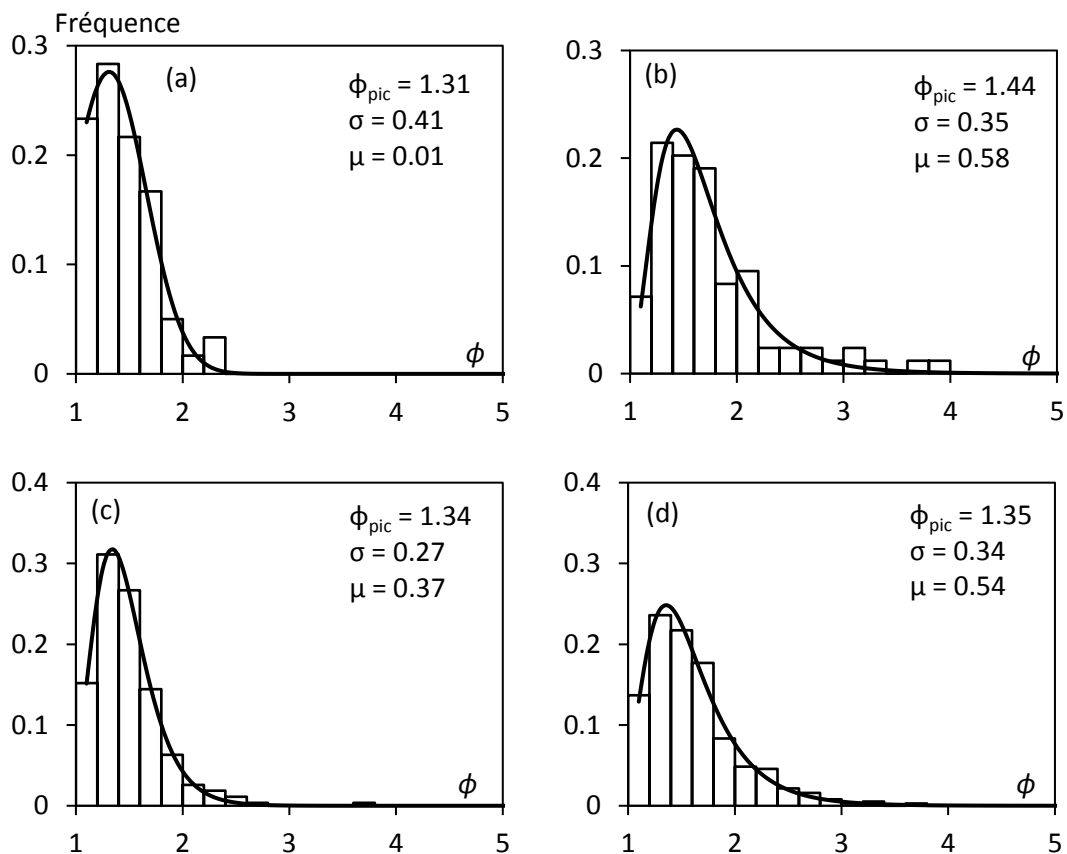


Figure III-33 : Histogrammes de distribution du rapport d'aspect des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4$ K/mm et $\langle V \rangle = 25$ $\mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 6$ K/mm et $\langle V \rangle = 24.6$ $\mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 4$ K/mm et $\langle V \rangle = 76.3$ $\mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 6$ K/mm et $\langle V \rangle = 74$ $\mu\text{m/s}$. La ligne rouge correspond à l'ajustement par une courbe de type log-normale. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

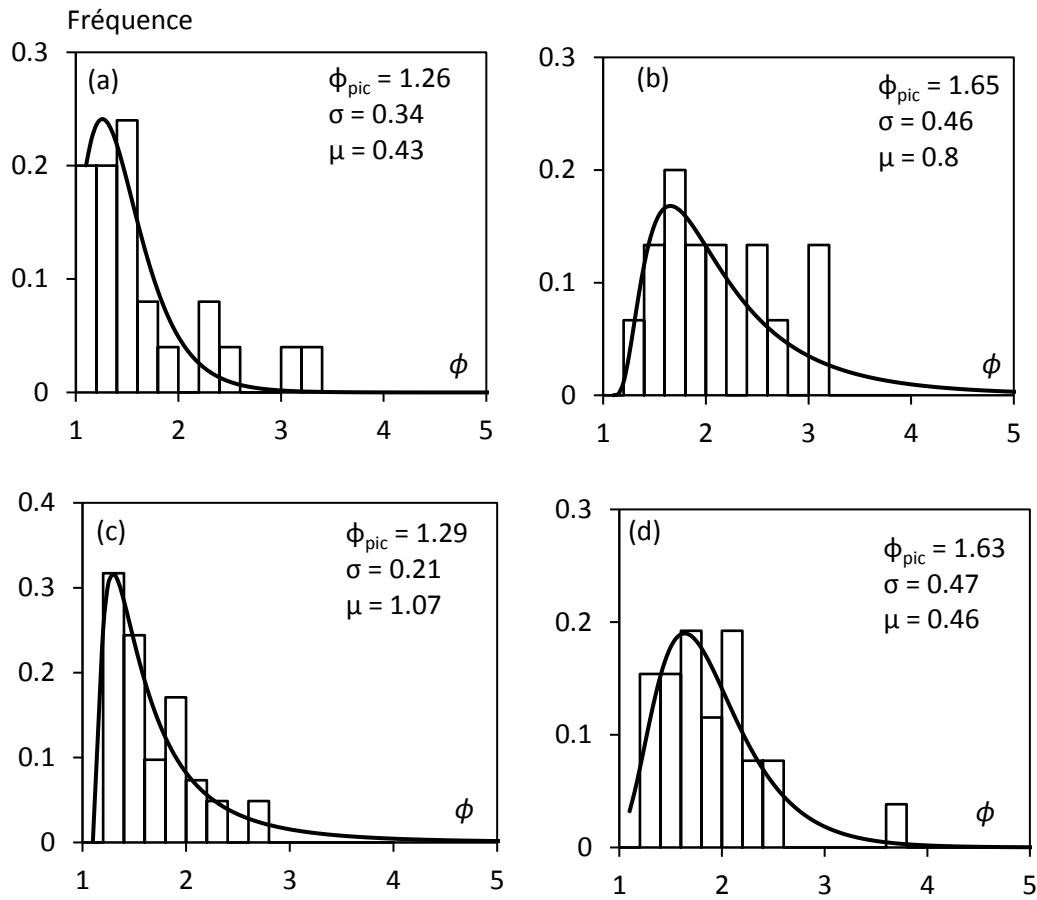


Figure III-34 : Histogrammes de distribution du rapport d'aspect des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4$ K/mm et $\langle V \rangle = 11.7 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 10$ K/mm et $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 6$ K/mm et $\langle V \rangle = 17.9 \mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 10$ K/mm et $\langle V \rangle = 16.1 \mu\text{m/s}$. La ligne rouge correspond à l'ajustement par une courbe de type log-normale. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

Pour toutes les gammes de vitesse de solidification, l'allongement des grains est plus important à fort gradient de température qu'à faible gradient de température, ce qui était attendu. Cependant, cet effet d'augmentation de la valeur du facteur d'allongement est d'autant plus fort que la vitesse de solidification est lente : $\Delta\phi/\phi$ décroît de 25 % pour la plus basse vitesse de solidification analysée, à 0,7 % pour la vitesse de solidification analysée la plus rapide.

b) Orientation des grains

Pour les séries d'expériences considérées, nous avons aussi déterminé les orientations des grains en fonction du gradient de température. Les distributions des orientations des grains pour des vitesses de solidification intermédiaires et grandes sont présentées par la Figure III-35.

À faible gradient de température la distribution de l'orientation des grains est large ($\sigma = 70^\circ$ et $\sigma = 94^\circ$ pour $\langle V \rangle = 25 \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 76.3 \mu\text{m/s}$ respectivement), ce qui signifie que la direction de croissance des grains est quelconque par rapport à la direction du gradient de température. Quand on augmente le gradient de température, la distribution s'affine ($\sigma = 45^\circ$ et $\sigma = 70^\circ$ pour $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 74 \mu\text{m/s}$ respectivement), ce qui signifie que les grains ont tendance à croître suivant la direction du gradient de température.

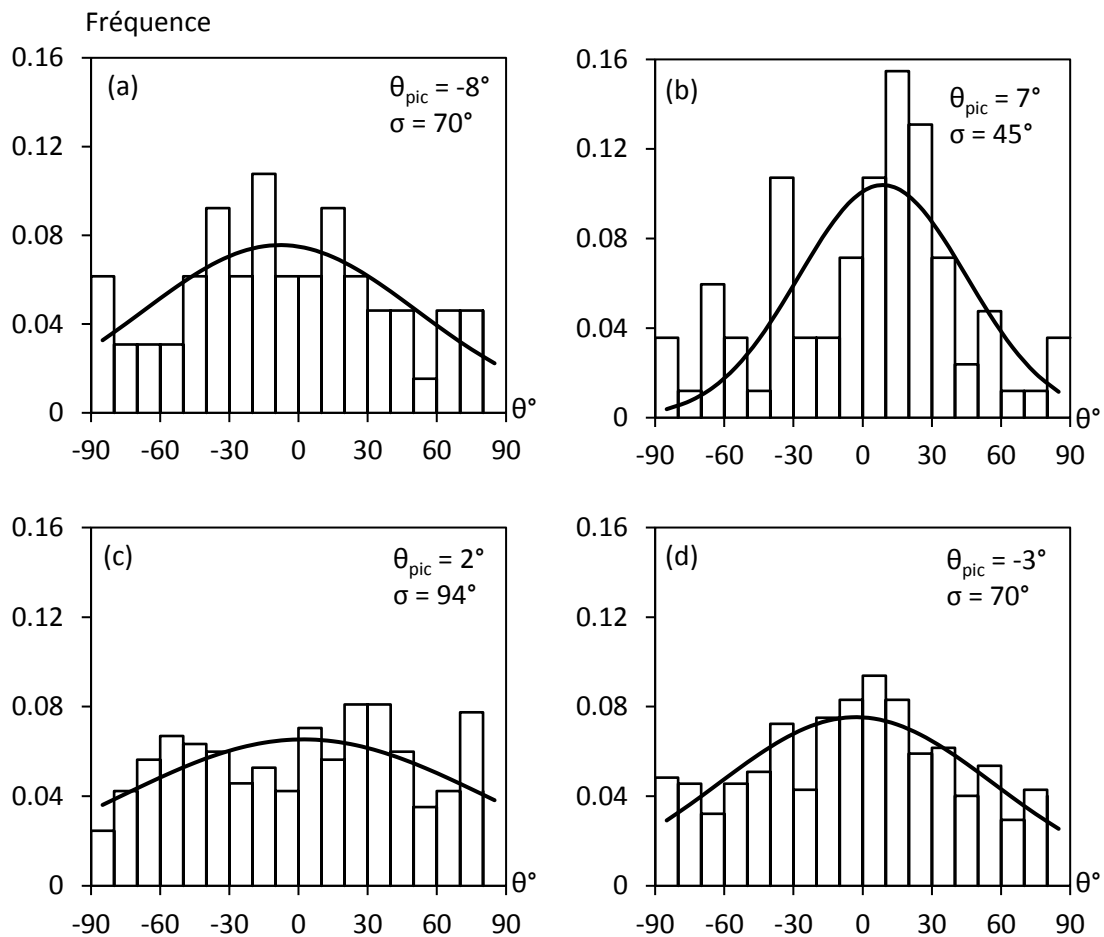


Figure III-35 : Histogrammes de distribution d'orientation des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 25 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 76.3 \mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 74 \mu\text{m/s}$. La ligne continue correspond à l'ajustement par une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

Les histogrammes de la Figure III-36 montrent la distribution des orientations des grains pour les expériences réalisées à basses vitesses de solidification. Nous pouvons voir que pour les quatre expériences, la majorité des grains sont orientés dans le sens du gradient de température.

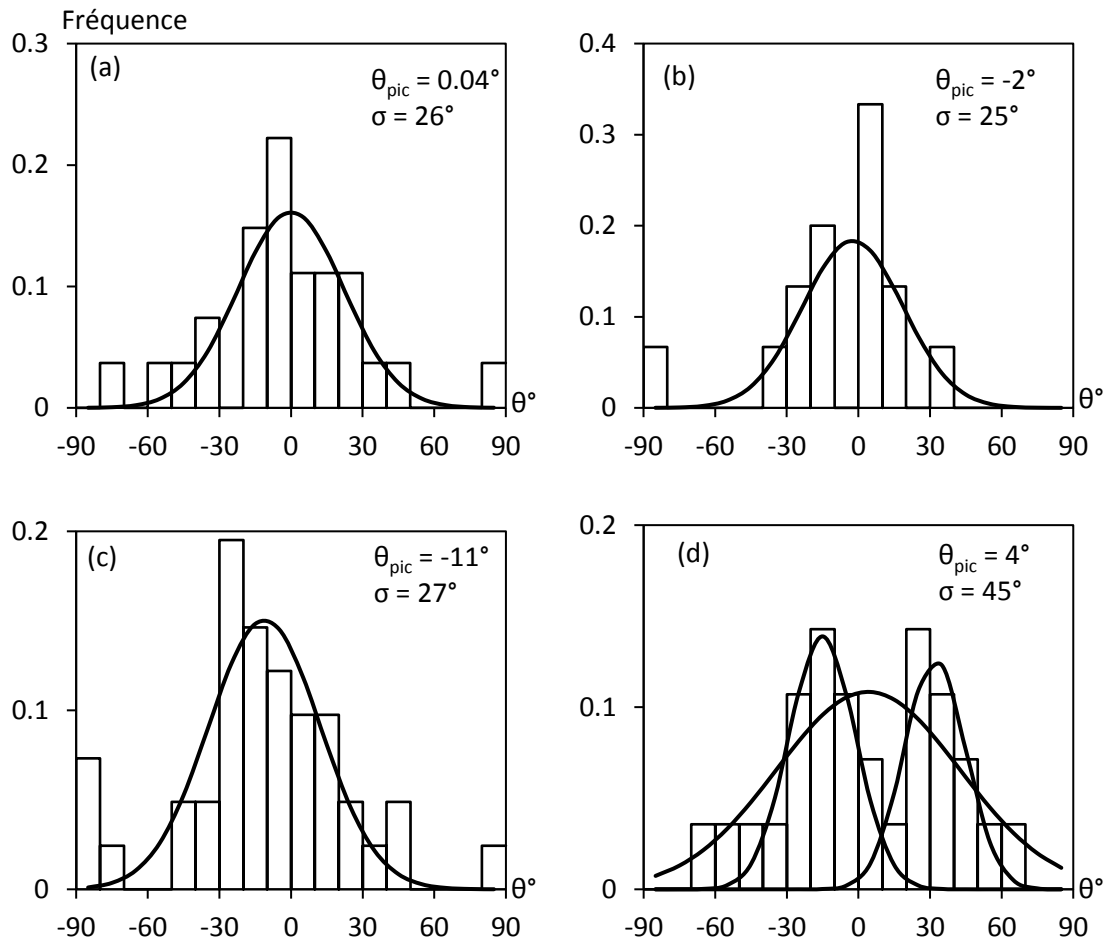


Figure III-36 : Histogrammes de distribution d'orientation des grains pour des expériences faites à : (a) $\langle G \rangle = 4$ K/mm et $\langle V \rangle = 11.7 \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 10$ K/mm et $\langle V \rangle = 10.6 \mu\text{m/s}$ et (c) $\langle G \rangle = 6$ K/mm et $\langle V \rangle = 17.9 \mu\text{m/s}$ et (d) $\langle G \rangle = 10$ K/mm et $\langle V \rangle = 16.1 \mu\text{m/s}$. La ligne continue correspond à l'ajustement par une courbe gaussienne. Les paramètres principaux de cet ajustement sont indiqués dans les graphiques.

III.3.5 Discussion sur les effets du gradient de température sur la microstructure.

Les principaux résultats de l'effet du gradient de température sur la structure de grains sont :

- La distance de germination est plus grande à faible gradient de température qu'à fort gradient de température, indépendamment de la vitesse de solidification.
- Pour des vitesses de solidification intermédiaires et élevées, le nombre de grains est plus grand à fort gradient de température (et la taille des grains plus petites), alors qu'à basse vitesse de solidification, le nombre de grains est plus grand à faible gradient de température (et la taille des grains plus petite).
- Les grains sont plus allongés et plus orientés dans le sens du flux de chaleur à fort gradient de température qu'à faible gradient de température, indépendamment de la vitesse de solidification.

a) *Influence du gradient de température sur la distance de germination*

Un effet visible du gradient de température est une diminution de la distance de germination quand le gradient de température augmente (voir Figure III-29). Cet effet est observable sur toutes les expériences mais il est d'autant plus important que la vitesse de solidification est faible (La Figure III-28). Ce phénomène peut être expliqué en considérant la variation de l'intensité et de la longueur de la zone surfondue devant le front de solidification.

Afin de bien comprendre l'effet du gradient de température sur ces paramètres, nous avons tracé à partir du modèle hémisphérique le profil thermique (Figure III-37a1, b1) et le profil de surfusion de constitution $\Delta T = (T_{eq} - T_L)$ (Figure III-37a2, b2) devant une pointe dendritique pour l'alliage Al-20%pdsCu, une vitesse de solidification $V = 25 \mu\text{m/s}$ et deux gradients de température $G = 4 \text{ K/mm}$ et $G = 6 \text{ K/mm}$.

À partir de ces graphes, nous pouvons déduire que, si l'intensité maximale de la surfusion de constitution ΔT_{max} est relativement peu affectée (Figure III-38a), la longueur de la zone surfondue diminue de manière significative avec le gradient de température (Figure III-38b). La variation de la longueur solutale est à peu près la même quelle que soit la vitesse de solidification : 60 % entre $G = 4 \text{ K/mm}$ et $G = 10 \text{ K/mm}$ pour $V = 11 \mu\text{m/s}$, et 56 % entre $G = 4 \text{ K/mm}$ et $G = 10 \text{ K/mm}$ pour $V = 209 \mu\text{m/s}$. La germination des nouveaux grains ayant lieu dans la zone de liquide surfondue, la diminution de la longueur de la zone surfondue explique que les grains germent plus près les uns des autres quand le gradient de température augmente, comme observé expérimentalement. Comme conséquence directe, la proportion de liquide inter-dendritique diminue également de manière concomitante.

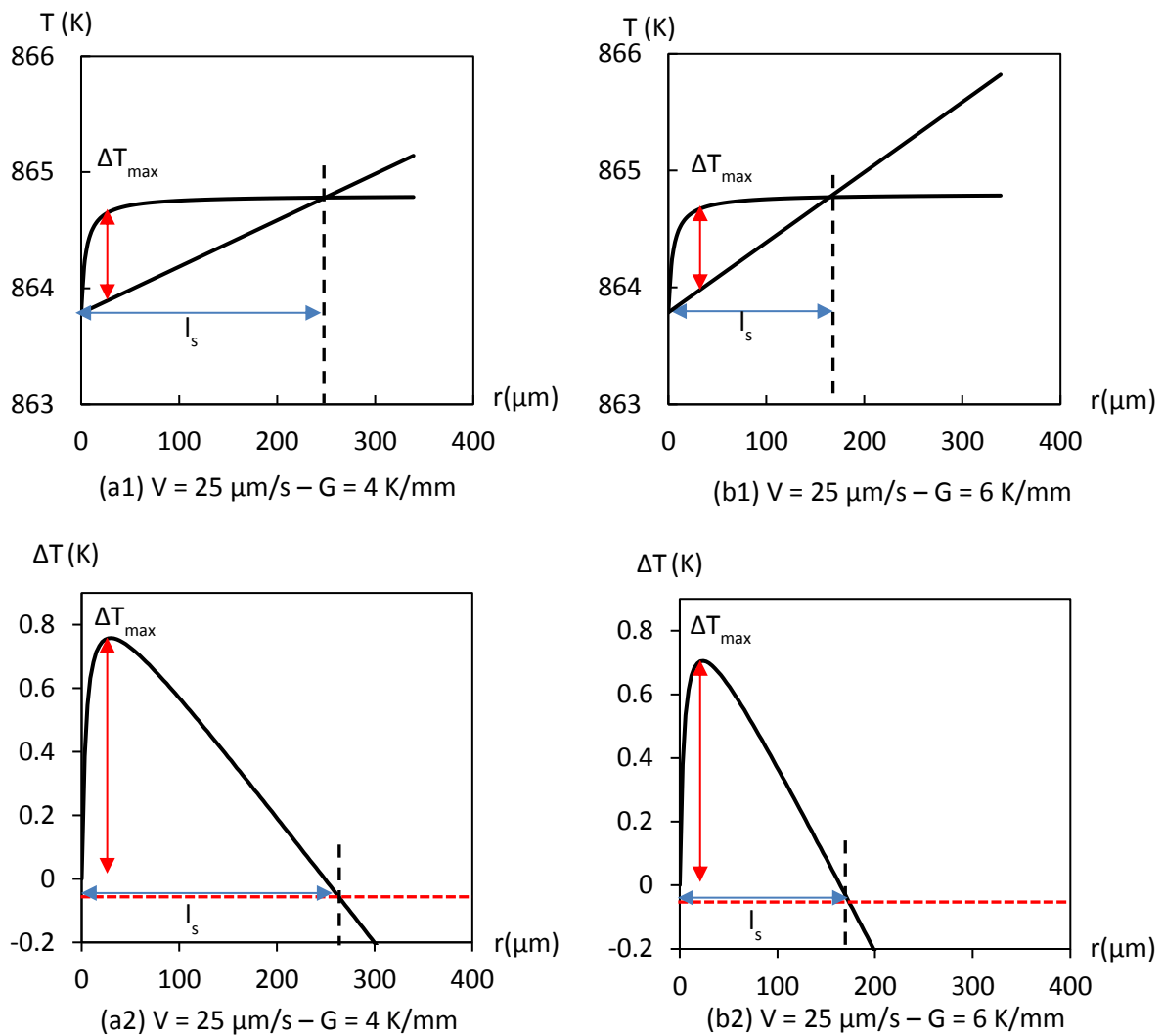


Figure III-37 : Variations de l'intensité de la surfusion de constitution et de la longueur de la zone du liquide surfondu devant une pointe hémisphérique en fonction de la distance devant cette pointe, calculées pour l'alliage Al-20%PdCu et $V = 25 \mu\text{m/s}$. (a1) et (a2) gradient de température faible $G = 4 \text{ K/mm}$; (b1) et (b2) gradient de température plus fort $G = 6 \text{ K/mm}$.

b) Influence du gradient de température sur la taille des grains

Nos expériences ont mis en évidence deux effets opposés du gradient de température sur la taille des grains suivant la gamme de vitesse de solidification (Figure III-30). A basses vitesses de solidification, la diminution de la densité de grain (ou l'augmentation de la taille des grains) peut encore être expliqué en considérant le modèle hémisphérique (Figure III-38). Les valeurs obtenues pour l'intensité maximale de la zone surfondu et la longueur de la zone de liquide surfondu pour les trois gradients de température étudiés prédites par ce modèle sont données dans le Tableau III-4.

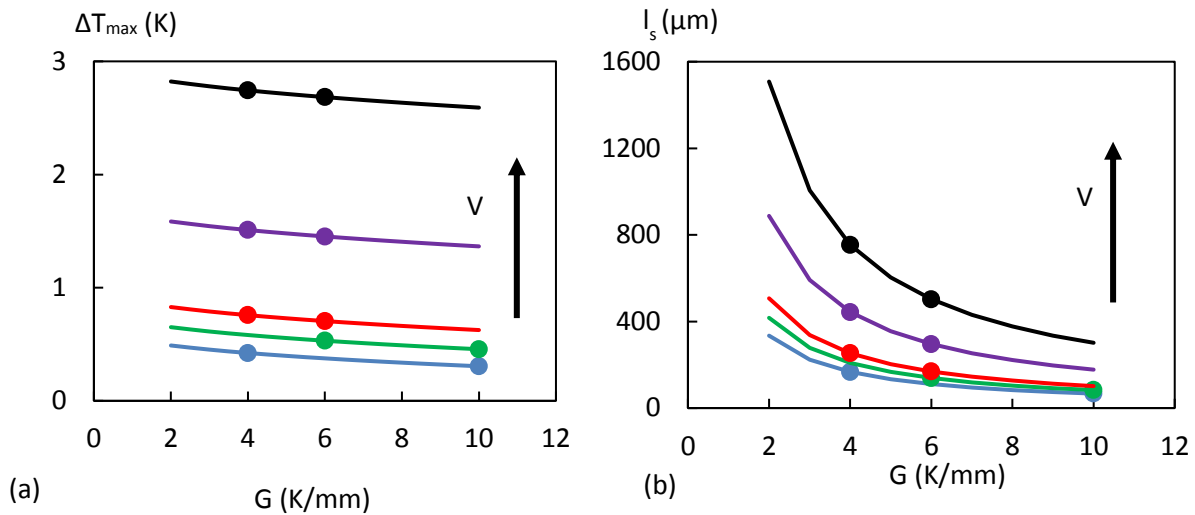


Figure III-38 : (a) Variation de l'intensité de la surfusion maximale en fonction du gradient de température ; (b) Variation de la longueur de la zone surfondue en fonction du gradient de température, pour cinq vitesses : du bas vers le haut $V = 11 \mu\text{m/s}$, $V = 17 \mu\text{m/s}$, $V = 25 \mu\text{m/s}$, $V = 75 \mu\text{m/s}$, $V = 209 \mu\text{m/s}$. Les deux points sur chacune des courbes correspondent aux paramètres expérimentaux.

La Figure III-38a montre que l'intensité maximale de surfusion diminue quand le gradient de température croît, ce qui entraîne une diminution du nombre de particules activées à cause de la distribution en taille des particules affinantes (Greer *et al.* 2003). En conséquence, le nombre de grain devrait diminuer et la taille des grains devrait augmenter avec des gradients de températures plus élevés, ce qui est en accord avec nos observations expérimentales mais uniquement pour les basses vitesses de solidification (Figure III-30).

Tableau III-4 : Intensité maximale de surfusion et longueur de la zone de liquide surfondu prédite par le modèle hémisphérique pour cinq vitesses proches des vitesses de solidification de nos expériences et pour trois gradients de température.

V ($\mu\text{m/s}$)		$G = 4 \text{ K/mm}$	$G = 6 \text{ K/mm}$	$G = 10 \text{ K/mm}$
11	ΔT_{max} (K)	0.42	0.38	0.31
	l_s (μm)	167	111	67
17	ΔT_{max} (K)	0.58	0.53	0.46
	l_s (μm)	208	139	93
25	ΔT_{max} (K)	0.75	0.71	0.63
	l_s (μm)	253	167	113
75	ΔT_{max} (K)	1.51	1.45	1.37
	l_s (μm)	444	296	197
209	ΔT_{max} (K)	2.74	2.68	2.59
	l_s (μm)	754	502	335

Pour les vitesses élevées, l'effet inverse est obtenu dans nos expériences : la densité de grains augmente (ou la taille des grains diminue) avec l'augmentation du gradient de température (Figure III-30). La différence de comportement suivant la gamme de vitesse de solidification ne peut donc pas être expliquée seulement avec une discussion sur la surfusion maximale de constitution. Cette tendance, augmentation du nombre de grains avec l'augmentation du gradient de température, est d'ailleurs celle prédite par des simulations en champ de phase 2D au cours d'une étude sur la CET par A. Badillo et C. Beckermann (*Badillo and Beckermann, 2006*) (Figure III-39). Les auteurs ont montré que la taille des grains diminue quand le gradient de température augmente, ce qui est en accord avec le diagramme de J. D. Hunt (*Hunt, 1984*).

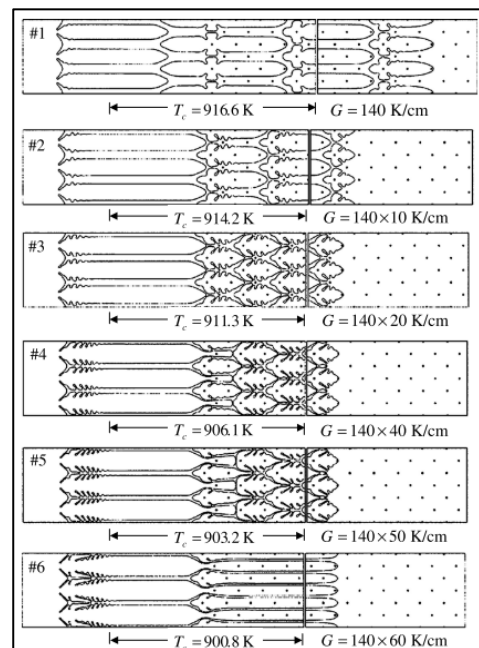


Figure III-39 : Effet du gradient de température G sur la Transition Colonnaire - Equiaxe pour Al-3%*pds*Cu, $V_p = 3000 \mu\text{m/s}$, $\Delta T_g = 8 \text{ K}$ (*Badillo and Beckermann, 2006*).

Une explication proposée pour cette diminution de la taille en fonction du gradient de température consiste à prendre en compte la réduction de la longueur solutale avec le gradient de température, simultanément avec la faible diminution de la surfusion maximale (Figure III-37). En effet, la réduction de la longueur de la zone de liquide surfondue réduit de manière significative la distance de germination et donne donc naissance à une structure de grains plus compacte, comme il a été expliqué dans la section III.3.5a. La germination très proche d'une nouvelle couche de grains va stopper la croissance de la couche existante et ainsi réduire la taille moyenne des grains. Ce mécanisme est illustré dans la Figure III-39 lorsque le gradient augmente pour les simulations numérotées #1 à #3 (*Badillo and Beckermann, 2006*).

c) Effet du gradient de température sur la morphologie des grains

L'effet du gradient de température sur la structure de grains a aussi été étudiée par des simulations numériques du type CA-FE (*Cellular Automaton – Finite Elements*) par M. Vandyoussefi et al. (*Vandyoussefi and Greer, 2002*). Comme pour les simulations de A. Badillo et C. Beckermann (*Badillo and Beckermann, 2006*), les auteurs concluent à une diminution de la taille de grains en fonction du gradient de température. Cependant, les auteurs prédisent également une augmentation visible de la disparité de taille et de forme avec le gradient de température (Figure III-40) avec certains grains très allongés et d'autres plus petits, ce qui est en accord avec nos résultats expérimentaux.

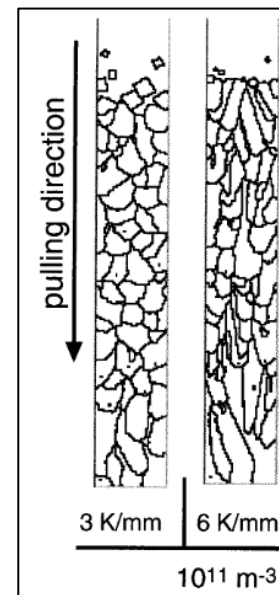


Figure III-40 : Effet du gradient de température G sur la structure de grains pour la solidification d'un alliage Al-4.15%PdMg, avec une vitesse de solidification de 0.1 mm/s et une densité de particules affinantes de 10^{11} part/m³ (*Vandyoussefi and Greer, 2002*) .

L'existence de grains très allongés quand le gradient de température est élevé peut être expliqué par l'impact de la variation de la longueur de la zone surfondue sur la distance de germination.

- À faible gradient de température, la grande longueur de la zone de liquide surfondue permet une germination des grains loin de la pointe de la dendrite. Cette dernière pourra être bloquée par les nouveaux grains (Figure III-41a) qui auront eu suffisamment de temps pour croître et se rapprocher. La Figure III-41b est un exemple d'observation qui illustre ce mécanisme de blocage d'un grain par les nouveaux grains, ce qui correspond à une expérience réalisée à faible gradient de température $\langle G \rangle = 4$ K/mm et une vitesse $\langle V \rangle = 35.6$ $\mu\text{m/s}$.

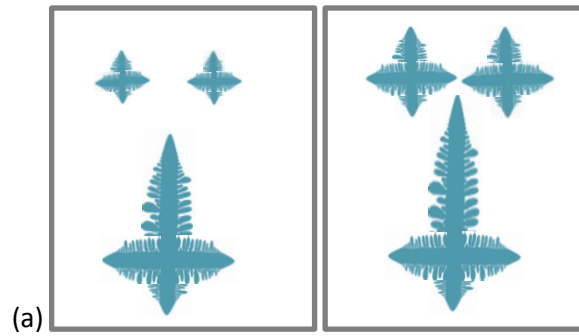
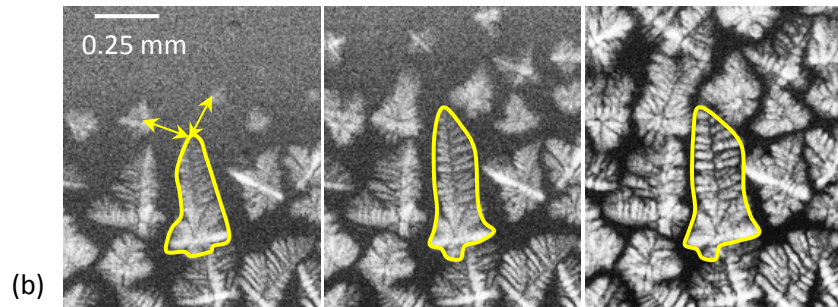


Figure III-41 : (a) Illustration de grains germant loin d'une pointe de dendrite et entraînant son blocage. (b) Séquence de radiographies montrant le blocage d'un grain dendritique lors d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 4 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 35.6 \text{ } \mu\text{m/s}$



- A plus fort gradient de température, la longueur de la zone de liquide surfondue est fortement réduite, ce qui provoque une germination des grains plus proche de la pointe de la dendrite. Dans certaines conditions, cette dernière pourra avoir le temps de croître entre les nouveaux grains Figure III-42a, comme illustré dans la Figure III-42b tirée d'une expérience réalisée avec un fort gradient de température $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 32.6$. Ce mécanisme permet expliquer l'existence de grains isolés très allongés au milieu de grains plus petits. La présence de ces grains très allongés conduit à une augmentation du rapport d'aspect moyen ϕ de la structure finale de grains.

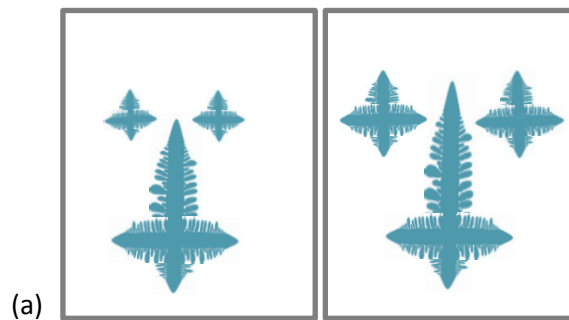
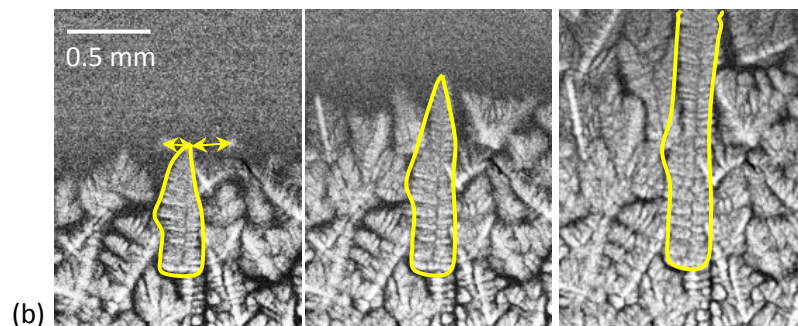


Figure III-42 : (a) Illustration d'une dendrite se faufilant entre des grains qui ont germé près de la pointe. (b) Séquence de radiographies montrant l'allongement d'un grain dendritique se développant entre plusieurs grains dendritiques lors d'une expérience réalisée à $\langle G \rangle = 10 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 32.6 \text{ } \mu\text{m/s}$



Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la solidification de l'alliage Al-20% pdsCu affiné avec le four en position horizontale, dans un régime qui se rapproche du régime diffusif. Dans cette configuration, les effets dus à la gravité tels que la convection et la poussée d'Archimède sur les grains sont limités ce qui permet d'obtenir des expériences plus simples à analyser. Nous avons aussi étudié en détails l'effet de deux paramètres de contrôle sur la structure des grains: la vitesse de solidification et le gradient de température.

Cette étude a été effectuée *in situ* et en temps réel par radiographie X en utilisant le dispositif de laboratoire SFINX. L'observation *in situ* et en temps réel permet d'accéder à la dynamique de la solidification, ce qui est difficilement faisable par une métallographie post-mortem qui révèle uniquement une image figée de la structure en fin de solidification. La caractérisation de la formation de la structure de grains au cours du temps permet une analyse quantitative des expériences et de mesurer des grandeurs importantes comme le nombre, la taille et la morphologie des grains. L'interprétation de ces mesures a mis en évidence les principaux effets des paramètres expérimentaux sur la microstructure de solidification.

La première partie des résultats concerne l'effet de la vitesse de solidification sur la taille et la morphologie des grains pour un gradient de température fixé. Nous avons ainsi montré que la taille de grains diminue avec l'augmentation de la vitesse de solidification et que la morphologie des grains devient de plus en plus uniforme et de type équiaxe, avec une orientation aléatoire à grandes vitesses. Nous avons aussi montré que pour des vitesses de solidification élevées, il y a un phénomène de saturation de la taille et de leur allongement. Cependant, l'allongement reste toujours supérieur à l'unité à cause de la présence du gradient de température. L'interprétation physique de ces tendances a été donnée en analysant la variation de l'intensité de la surfusion de constitution en fonction de la vitesse, et son influence sur l'activation des particules affinantes.

La seconde partie des résultats présentés dans ce chapitre concerne l'effet du gradient de température sur la distance de germination, la taille, l'allongement et l'orientation des grains. Pour cette étude nous avons montré que, pour toutes les gammes de vitesse de solidification, les grains sont plus espacés entre eux à faible gradient de température et plus « tassés » à fort gradient de température. Ce résultat s'explique par la diminution de la longueur de la zone de liquide surfondu quand le gradient de température augmente. Cette variation de la distance entre les grains entraîne de la ségrégation de soluté liée à la présence du liquide inter-dendritique entre les grains et qui peut être très importante à faible gradient de température et réduite si on augmente le gradient de température.

Nous avons montré aussi que le gradient de température modifie simultanément l'intensité de la surfusion de constitution et la longueur de la zone du liquide surfondu, ce qui affecte par conséquent le nombre et la morphologie des grains. Mais, selon la gamme de vitesse de solidification, l'influence de l'un des deux facteurs est plus importante que l'autre :

- À basse vitesse de solidification, l'intensité de la zone surfondue est le facteur qui affecte le plus le processus de germination et de croissance : le nombre de grains diminue avec l'augmentation du gradient de température.
- À grandes vitesses de solidification, la variation de la longueur de la zone de liquide surfondu est le facteur principal qui affecte le plus la structure de grains : les grains germent plus près les uns des autres et le nombre de grains augmente avec le gradient de température.

L'ensemble de ces résultats montrent que la vitesse de solidification et le gradient de température ont une influence importante sur la formation de la structure de grain. Par une analyse quantitative nous montrons que, pour expliquer toutes nos observations expérimentales, il faut prendre en compte non seulement la variation de l'intensité de la surfusion de constitution mais aussi la variation de la longueur de la zone de liquide surfondu en fonction des paramètres de contrôle. Ces résultats, obtenus avec des effets réduits de la gravité, pourront servir de bases pour des comparaisons avec des simulations numériques afin de mieux comprendre et prédire la formation de la structure de grain.

Dans le futur, il serait également important d'arriver à caractériser la distribution en taille des particules affinant dans les échantillons, en utilisant par exemple la méthode de dissolution de l'échantillon présentée par (Xu et al. 2017) ou bien par des méthodes d'imagerie microscopique. Ceci permettrait également de mieux comprendre les tendances observées expérimentalement et serait utilisé pour la comparaison avec des modèles théoriques de germination (Men and Fan, 2011) (Fan, 2013).

Enfin, Il ne faut pas oublier que, pendant la solidification des lingots dans les processus industriels, les effets de la gravité sont toujours présents et vont modifier la distribution des particules affinant ainsi que perturber le développement des grains. Les expériences présentées dans ce chapitre vont pouvoir servir de référence pour des comparaisons avec des configurations expérimentales où les effets de la gravité sont présents, ce qui est l'objectif du chapitre suivant de ce travail de thèse.

Références

- Akamatsu, S, and G Faivre. 1998. "Anisotropy-Driven Dynamics of Cellular Fronts in Directional Solidification in Thin Samples." *Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics* 58 (3): 3302–15. doi:10.1103/PhysRevE.58.3302.
- Badillo, Arnaldo, and Christoph Beckermann. 2006. "Phase-Field Simulation of the Columnar-to-Equiaxed Transition in Alloy Solidification." *Acta Materialia* 54 (8): 2015–26. doi:10.1016/j.actamat.2005.12.025.
- Becker, M., J.A. Dantzig, Kolbe, S.T. M.Wiese, and F. Kargl. 2018. "Dendrite Orientation Transition in Al Ge Alloys." *Acta Materialia* 165: 666–77. doi:10.1016/j.actamat.2018.12.001.
- Billia, Bernard, Henri Nguyen-Thi, Nathalie Mangelinck-Noel, Nathalie Bergeon, Hyejin Jung, Guillaume Reinhart, Aziz Bogno, et al. 2010. "In Situ Synchrotron X-Ray Characterization of Microstructure Formation in Solidification Processing of Al-Based Metallic Alloys." *ISIJ International* 50 (12): 1929–35. doi:10.2355/isijinternational.50.1929.
- Blair, Malcolm, Raymond Monroe, Christoph Beckermann, Richard Hardin, Kent Carlson, and Charles Monroe. 2005. "Predicting the Occurrence and Effects of Defects in Castings." *Jom* 57 (5): 29–34. doi:10.1007/s11837-005-0092-3.
- Bogno, A., H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, B. Billia, and J. Baruchel. 2013. "Growth and Interaction of Dendritic Equiaxed Grains: In Situ Characterization by Synchrotron X-Ray Radiography." *Acta Materialia* 61 (4). Acta Materialia Inc.: 1303–15. doi:10.1016/j.actamat.2012.11.008.
- Deschamps, J., M. Georgelin, and A. Pocheau. 2008. "Growth Directions of Microstructures in Directional Solidification of Crystalline Materials." *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* 78 (1): 1–13. doi:10.1103/PhysRevE.78.011605.
- Dupouy, M. D., and D. Camel. 1998. "Effects of Gravity on Columnar Dendritic Growth of Metallic Alloys: Flow Pattern and Mass Transfer." *Journal of Crystal Growth* 183 (3): 469–89. doi:10.1016/S0022-0248(97)00415-6.
- Eiken, J. 2009. "Dendritic Growth Texture Evolution in Mg-Based Alloys Investigated by Phase-Field Simulation." *International Journal of Cast Metals Research* 22 (1–4): 86–89. doi:10.1179/136404609x367399.
- Fan, Zhongyun. 2013. "An Epitaxial Model for Heterogeneous Nucleation on Potent Substrates." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 44 (3): 1409–18. doi:10.1007/s11661-012-1495-8.
- Greer, A.I. 2003. "Manufacturing High Integrity Aluminium and Magnesium Castings."
- Greer, a L, P S Cooper, M W Meredith, W Schneider, P Schumacher, J a Spittle, and a Tronche. 2003. "Grain Refinement of Aluminium Alloys by Inoculation." *Advanced Engineering Materials* 5 (12): 81–91. doi:10.1002/adem.200390013.
- Hunt, J. D. 1984a. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. doi:10.1016/0025-5416(84)90201-5.
- . 1984b. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. doi:10.1016/0025-5416(84)90201-5.

- Maxwell, I., and A. Hellawell. 1975. "A Simple Model for Grain Refinement during Solidification." *Acta Metallurgica* 23 (2): 229–37. doi:10.1016/0001-6160(75)90188-1.
- Men, H., and Z. Fan. 2011. "Effects of Solute Content on Grain Refinement in an Isothermal Melt." *Acta Materialia* 59 (7). Acta Materialia Inc.: 2704–12. doi:10.1016/j.actamat.2011.01.008.
- Nguyen Thi, H., B. Drevet, J. M. Debierre, D. Camel, Y. Dabo, and B. Billia. 2003. "Preparation of the Initial Solid-Liquid Interface and Melt in Directional Solidification." *Journal of Crystal Growth* 253 (1–4): 539–48. doi:10.1016/S0022-0248(03)01041-8.
- Nguyen Thi, H., G. Reinhart, A. Buffet, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, N. Bergeon, B. Billia, J. Härtwig, and J. Baruchel. 2008. "In Situ and Real-Time Analysis of TGZM Phenomena by Synchrotron X-Ray Radiography." *Journal of Crystal Growth* 310 (11): 2906–14. doi:10.1016/j.jcrysgr.2008.01.041.
- Prasad, A., E. Liotti, S. D. McDonald, K. Nogita, H. Yasuda, P. S. Grant, and D. H. Stjohn. 2015. "Real-Time Synchrotron x-Ray Observations of Equiaxed Solidification of Aluminium Alloys and Implications for Modelling." *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 84 (1). doi:10.1088/1757-899X/84/1/012014.
- Prasad, A, S D. McDonald, H Yasuda, K Nogita, and D. StJohn. 2015. "A Real-Time Synchrotron X-Ray Study of Primary Phase Nucleation and Formation in Hypoeutectic Al–Si Alloys." *Journal of Crystal Growth* 430 (November): 122–37. doi:10.1016/j.jcrysgr.2015.06.024.
- Takaki, Tomohiro, Munekazu Ohno, Yasushi Shibuta, Shinji Sakane, Takashi Shimokawabe, and Takayuki Aoki. 2016. "Two-Dimensional Phase-Field Study of Competitive Grain Growth during Directional Solidification of Polycrystalline Binary Alloy." *Journal of Crystal Growth* 442. Elsevier: 14–24. doi:10.1016/j.jcrysgr.2016.01.036.
- Tourret, D., and A. Karma. 2015. "Growth Competition of Columnar Dendritic Grains: A Phase-Field Study." *Acta Materialia* 82. Acta Materialia Inc.: 64–83. doi:10.1016/j.actamat.2014.08.049.
- Tourret, D., Y. Song, A. J. Clarke, and A. Karma. 2017. "Grain Growth Competition during Thin-Sample Directional Solidification of Dendritic Microstructures: A Phase-Field Study." *Acta Materialia* 122. Elsevier Ltd: 220–35. doi:10.1016/j.actamat.2016.09.055.
- Vandyoussefi, M., and A. L. Greer. 2002. "Application of Cellular Automaton-Finite Element Model to the Grain Refinement of Directionally Solidified Al-4.15 Wt% Mg Alloys." *Acta Materialia* 50 (7): 1693–1705. doi:10.1016/S1359-6454(02)00015-0.
- Xu, Yijiang, Daniele Casari, Qiang Du, Ragnvald H. Mathiesen, Lars Arnberg, and Yanjun Li. 2017. "Heterogeneous Nucleation and Grain Growth of Inoculated Aluminium Alloys: An Integrated Study by in-Situ X-Radiography and Numerical Modelling." *Acta Materialia* 140. Elsevier Ltd: 224–39. doi:10.1016/j.actamat.2017.08.053.
- Xu, Yijiang, Daniele Casari, Ragnvald H Mathiesen, and Yanjun Li. 2018. *Revealing the Heterogeneous Nucleation and Growth Behaviour of Grains in Inoculated Aluminium Alloys During Solidificatio*. Springer International Publishing. doi:10.1007/978-3-319-72526-0.

Chapitre IV:

Influence de la gravité sur la dynamique de formation des grains dendritiques lors de la solidification dans un gradient de température

Introduction	135
IV.1 Effets de la gravité sur la formation de la microstructure de solidification	137
IV.1.1 La convection naturelle lors de la solidification verticale	137
IV.1.2 Sédimentation et flottaison du solide	140
IV.1.3 Effets mécaniques	142
IV.1.4 Pression hydrostatique.....	144
IV.2 Description des expériences.....	146
IV.2.1 Orientation du dispositif expérimental	146
IV.2.2 Paramètres de solidification appliqués	147
IV.3 Solidification vers le haut.....	151
IV.3.1 Description de la formation des microstructures de solidification.....	151
IV.3.2 Effet de la flottaison des grains sur la microstructure équiaxe de solidification	156
IV.3.3 Effet du gradient de température sur la structure de grains	163
IV.4 Solidification vers le bas.....	165
IV.4.1 Description des microstructures de solidification.....	165
IV.4.2 Effet des plumes sur la cinétique de croissance des dendrites.....	167
IV.4.3 Effet de la convection thermosolutale sur la structure de grains	171
Conclusion.....	177
Références	179

Introduction

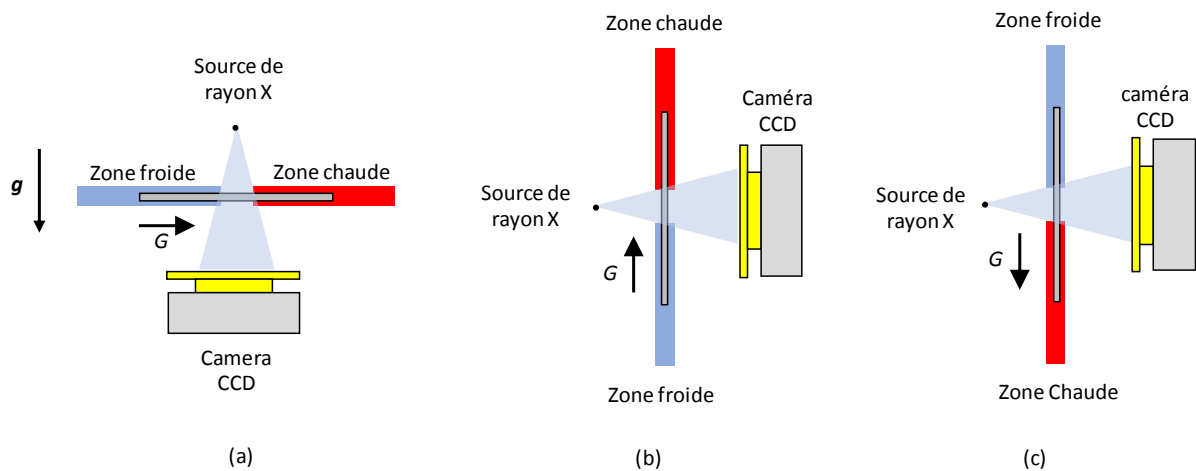
Les propriétés finales des métaux sont fortement liées aux microstructures formées pendant l'étape de solidification (*Spittle, 2006*). Lors de la solidification d'un alliage, les conditions de transport dans le bain fondu (purement diffusifs ou convecto-diffusifs) ont un rôle essentiel sur les microstructures interfaciales et la distribution en soluté dans le solide élaboré (i.e. les macroségrégations à l'échelle de la pièce, et les microségrégations à l'échelle des structures de solidification). La force motrice des mouvements du liquide fondu est la gravité, qui est toujours présente sur Terre. Par conséquent, la compréhension des effets de la gravité sur la dynamique de formation des microstructures de solidification est cruciale tant du point de vue des applications que de la science des Matériaux.

Le couplage entre les effets induits par la gravité et la dynamique du front de solidification a fait l'objet de nombreux travaux expérimentaux, théoriques et numériques. Les principaux effets liés à la gravité sont : La convection naturelle induite par les gradients thermiques longitudinaux ou transverses, les gradients de soluté dans le métal fondu (*Nguyen-Thi et al. 2011*), la sédimentation ou la flottaison des particules solides due à la poussée d'Archimède, les effets mécaniques qui provoquent le fléchissement ou la fragmentation des bras secondaires ou tertiaires des dendrites (*Reinhart et al. 2014*). Signalons aussi que des variations de la pression hydrostatique dans le bain fondu peuvent impacter le processus de solidification (*Abou-Khalil et al. 2016*).

Afin d'augmenter notre compréhension des effets de la gravité sur la formation des microstructures lors de la solidification, nous avons réalisé des expériences de solidification verticale d'alliages Al-20pds%Cu affiné avec deux configurations différentes (voir figure ci-dessous) :

- Solidification verticale vers le haut (gradient de température antiparallèle à la gravité), avec le liquide chaud au-dessus du solide ce qui correspond à un cas, a priori, stable thermiquement et solutalement.
- Solidification verticale vers le bas (gradient de température parallèle à la gravité), avec le liquide chaud en-dessous du solide ce qui correspond à un cas instable thermiquement et solutalement.

Comme pour les expériences du Chapitre III, ces expériences sont analysées grâce à l'utilisation de l'observation *in situ* et en temps réel par radiographie X dans le dispositif SFINX.



(a) Schéma montrant la position du dispositif en configuration horizontale du four ; (b) Schéma montrant la position du dispositif en configuration verticale du bas vers le haut, (c) Schéma montrant la position en configuration verticale du haut vers le bas.

La comparaison des expériences en configuration verticale avec les expériences du chapitre III (configuration horizontale) permet de mettre en évidence les effets de la gravité sur la formation des microstructures. Ces effets sont présentés dans ce chapitre, qui comporte quatre parties : la première est un rappel de l'ensemble des effets induits par la gravité. La deuxième partie est consacrée à la description des expériences que nous avons réalisées en configuration verticale. Dans la troisième partie nous discuterons des effets de la flottaison des grains sur la microstructure dans le cas de la solidification verticale vers le haut. Enfin la dernière partie sera une analyse des effets de la convection thermosolutale sur la microstructure dans le cas de la solidification vers le bas, avec la formation de « plumes de soluté ».

IV.1 Effets de la gravité sur la formation de la microstructure de solidification

IV.1.1 La convection naturelle lors de la solidification verticale

La convection naturelle dans le phase liquide au cours de la solidification est induite par les variations de la masse volumique dans le bain fondu dues à des variations de la température et de la composition. La convection a un fort impact sur la microstructure en solidification dirigée : changement de l'espacement primaire et de la direction de croissance des dendrites (*Okamoto et al. 1975*)(*Murakami et al. 1983*), désordre dans les réseaux de cellules ou de dendrites (*Nguyen thi, et al. 1989*) (*Nguyen Thi et al, 1990*) (*Billia et al, 1991*), perturbation du front de solidification (*Nguyen Thi et al, 1989*)(*Drevet et al., 2000*)(*Bogno et al., 2011*) et forte ségrégation longitudinale (*Drevet et al., 1995*) (*Dupouy et al, 1997*).

En présence de la convection naturelle, les équations de la solidification dirigée sont complétées par les équations qui gouvernent le mouvement hydrodynamique :

- Conservation de la quantité de mouvement : dans l'approximation de Boussinesq, la densité dans le liquide est considérée comme constante sauf dans l'équation de Navier – Stokes qui s'écrit alors :

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \nabla \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \frac{\rho}{\rho_0} \mathbf{g} \quad \text{Eq. IV-1}$$

$\mathbf{u}$ est le vecteur vitesse du fluide, p est la pression dynamique, ν est la viscosité dynamique, ρ est la masse volumique et $\mathbf{g}$ l'accélération gravitationnelle. L'indice 0 indique l'état de référence.

- Conservation de la masse : L'équation de continuité dans le cas d'un fluide incompressible :

$$\nabla \mathbf{u} = 0 \quad \text{Eq. IV-2}$$

- Les équations hydrodynamiques sont complétées par une équation d'état pour la masse volumique dans la phase liquide. En présence des gradients de température et de concentration, cette équation d'état s'écrit en approximation linéaire :

$$\rho = \rho_0 [1 - \beta_T (T - T_0) + \beta_C (C - C_0)] \quad \text{Eq. IV-3}$$

Où β_T est le coefficient de dilatation thermique et β_C l'opposé du coefficient de dilatation solutale :

$$\beta_T = -\frac{1}{\rho_0} \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_C \quad \text{et} \quad \beta_C = \frac{1}{\rho_0} \left(\frac{\partial \rho}{\partial C} \right)_T \quad \text{Eq. IV-4}$$

Dans le cas de la solidification verticale, la convection naturelle peut avoir des sources (et donc des effets) très différentes, que nous allons décrire qualitativement maintenant.

a) Convection d'origine thermique lors de la solidification dirigée verticale

Dans le cas d'une expérience de solidification dirigée idéale (sans gradient transverse de température ou de concentration), la première cause possible de convection est le changement de la masse volumique du liquide avec la température (convection thermique). Si on ne considère que l'effet du gradient de température, à cause de la poussée d'Archimède s'exerçant sur les particules fluides, le liquide chaud (plus léger) a tendance à s'élever alors que le liquide froid (plus lourd) a tendance à s'écouler.

Suivant la direction de la solidification, le bain fondu sera en configuration stable thermiquement (Figure IV-1a) pour la solidification vers le haut ou instable thermiquement dans le cas de la solidification vers le bas (Figure IV-1b). Dans la Figure IV-1b, les mouvements de convection sont illustrés par une boucle simple en jaune.

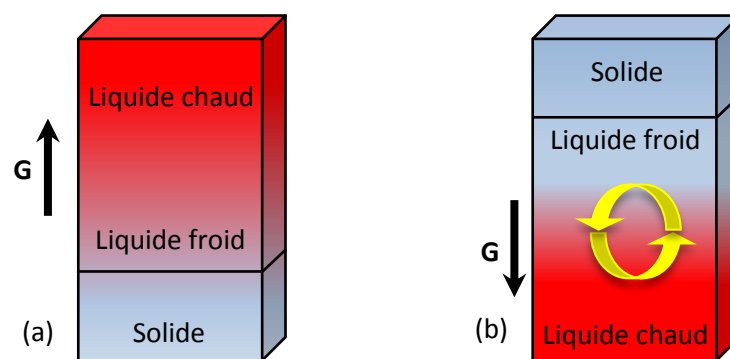


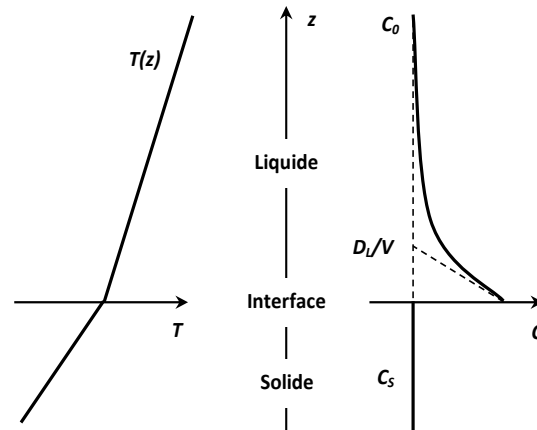
Figure IV-1 : Convection d'origine thermique dans une solidification dirigée idéale (sans gradient transverse). (a) Cas stable pour la solidification dirigée vers le haut, (b) Cas instable pour la solidification dirigée vers le bas.

b) Convection thermosolutale lors de la solidification dirigée vers le haut

Considérons maintenant le cas stable thermiquement de la solidification dirigée vers le haut pour lequel le gradient de température vertical est toujours stabilisant (le liquide chaud est situé en dessus du liquide froid).

En solidification d'alliages binaires, la variation de la densité du fluide est aussi reliée au gradient de concentration devant l'interface solide-liquide, qui se forme à cause du rejet de soluté (en supposant $k < 1$) pendant le changement de phase (Figure IV-2).

Figure IV-2: Profils de température et de concentration dans le liquide en amont de l'interface lors de la solidification unidirectionnelle stationnaire.



Comme pour le gradient de température, le gradient de concentration peut être stabilisant ou déstabilisant, suivant le rapport des masses volumiques du soluté et du solvant :

- Si le soluté est plus léger que le solvant : la configuration statique de base devient instable. La question qui se pose alors est de connaître la stabilité hydrodynamique de la couche liquide adjacente à l'interface quand les deux gradients longitudinaux (thermique et solutal) sont antagonistes. Pour répondre à cette question, nous devons considérer le nombre de Lewis $Le = D_{th}/D_L$.

Pour les systèmes métalliques, $Le \gg 1$ (Drevet et al. 2000) et l'effet déstabilisant associé au gradient de concentration sera prédominant par rapport à celui stabilisant associé au gradient de température qui disparaît très rapidement. Cette instabilité solutale est à l'origine de la formation de plume de soluté devant le front de solidification ainsi que du développement de canaux ségrégés dans la zone pâteuse (Figure IV-3) qui sont à l'origine du défaut appelé « freckle » en anglais (Auburtin et al. 1996)(Auburtin et al. 2000)

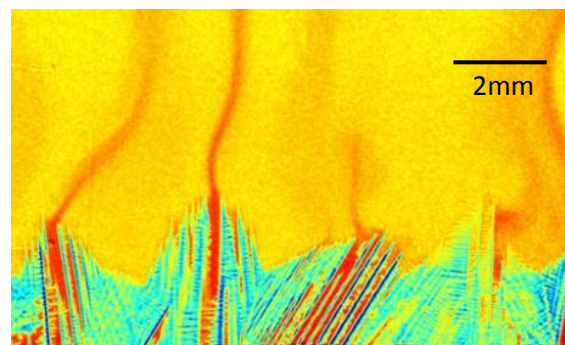


Figure IV-3: Formation de plumes durant la solidification de l'alliage Ga-25%PdSn (Shevchenko et al. 2015)

- Lorsque le soluté est plus lourd que le solvant (Figure IV-2), ce qui est le cas de l'alliage Al-Cu, la configuration statique de base est *a priori* stable et il ne devrait pas y avoir de mouvements convectifs. Ce n'est pourtant pas le cas à cause des gradients transverses de température, toujours présents dans des configurations réelles.

c) Convection d'origine radiale ou transverse lors de la solidification dirigée vers le haut

Si on se place dans la configuration thermo-solutalement stable (gradients de température dirigé vers le haut et soluté rejeté plus lourd que le solvant), on s'attendrait à ce qu'il n'y ait aucun mouvement convectif. Toutefois, dans les conditions expérimentales réelles, les expériences montrent des effets forts de la convection (Burden, et al. 1973)(Nguyen-Thi, al. 2005). Cette convection, appelée « convection d'origine transverse », est due aux différences de conductivité thermiques entre la phase solide, la phase liquide et le creuset qui créent un gradient de température transverse. Ce gradient de température transverse induit une courbure de l'interface solide-liquide (Figure IV-4a).

La présence d'un écoulement transverse de fluide est alors inévitable (Figure IV-4d), lequel va s'amplifier au cours de la solidification, pouvant provoquer une déformation macroscopique importante de l'interface solide-liquide, appelée *steeping* en anglais. La convection transverse induit une forte macroségrégation latérale dans l'échantillon solidifié comme le montre la figure IV-3d. On peut également remarquer un gradient de microstructure le long de l'interface solide-liquide, appelé *clustering*, à cause du gradient transverse de concentration. Il a été montré que les effets de cette convection diminuent fortement avec la vitesse de croissance et disparaissent en microgravité (Dupouy et al. 1989)(Nguyen-Thi et al. 2005).

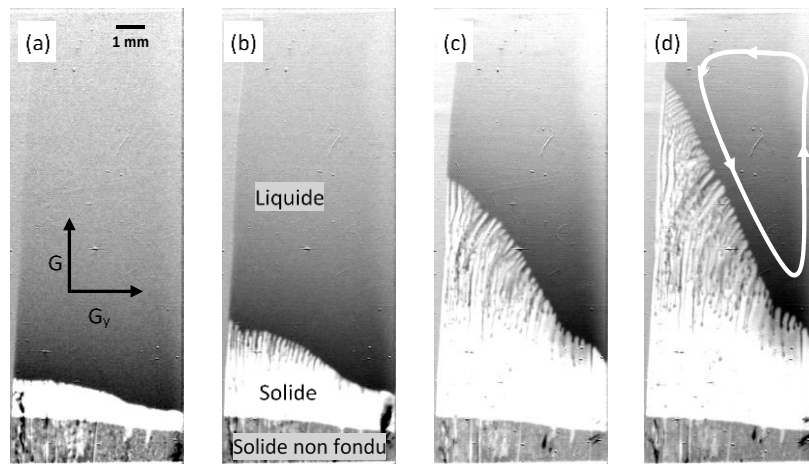


Figure IV-4: Séquence de quatre images montrant la déformation progressive de l'interface solide-liquide au cours du transitoire initial de la solidification pour Al-4%PdsCu ($R = 0.3 \text{ K/min}$; $G = 35.5 \text{ K/cm}$). (a) $t \approx 17 \text{ min}$; (b) $t \approx 34 \text{ min}$; (c) $t \approx 70 \text{ min}$; (d) $t \approx 88 \text{ min}$ (Bogno et al. 2011)

IV.1.2 Sédimentation et flottaison du solide

Un second effet lié à la présence de gravité est la poussée d'Archimède qui dit que :

« Tout corps plongé dans un fluide au repos, entièrement mouillé par celui-ci ou traversant sa surface libre, subit une force verticale, dirigée de bas en haut et opposée au poids du volume de fluide déplacé. ».

Pendant la solidification d'un alliage, la masse volumique du solide formé ρ_s est généralement différente de celle du liquide environnant ρ_L . En présence de gravité, cette différence de masse volumique conduit à la flottaison ($\rho_s < \rho_L$) ou à la sédimentation ($\rho_s > \rho_L$) des grains équiaxes ou des fragments de solides détachés. Si on assimile le solide (grain équiaxe ou fragment dendritique) à une sphère, cette sphère est soumise à deux forces opposées (Figure IV-5) :

- Le poids apparent (poids réel diminué de la poussée d'Archimède) :

$$F_g = (\rho_s - \rho_L)g \frac{4}{3}\pi r_s^3 \quad \text{Eq. IV-5}$$

avec ρ_s et ρ_L les masses volumiques de la sphère (solide) et du fluide (liquide) respectivement, r_s le rayon de la sphère et g l'accélération gravitationnelle.

- La force de friction F_d . Dans nos expériences, la petite taille des grains équiaxes (10-200 μm) et les vitesses relativement faibles de déplacement des grains (100-200 $\mu\text{m/s}$) donnent des nombres de Reynolds (Eq. IV-4) très petit (≈ 0.07) devant l'unité.

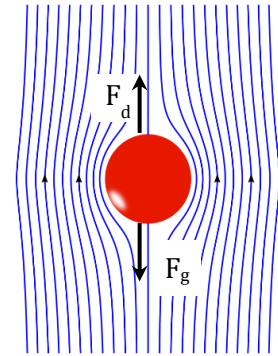
$$\text{Re} = \frac{\rho_L 2r_s U}{\nu} \quad \text{Eq. IV-6}$$

avec U la vitesse et ν la viscosité dynamique du fluide.

Par conséquent, la force de friction est donnée par la force de traînée de Stokes :

$$F_d = 6\pi\nu r_s U \quad \text{Eq. IV-7}$$

Figure IV-5 : Écoulement rampant sur une sphère tombant dans un fluide : lignes de flux, force de traînée F_d et gravité F_g .

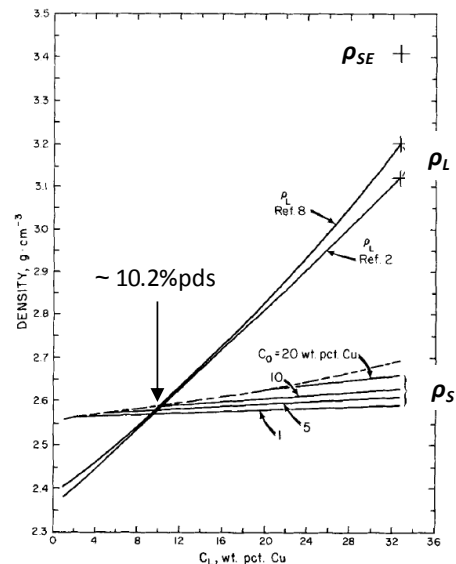


À l'équilibre mécanique, les deux forces se compensent et la vitesse asymptotique de la sphère U_{r_s} est proportionnelle au carré du diamètre de la particule solide :

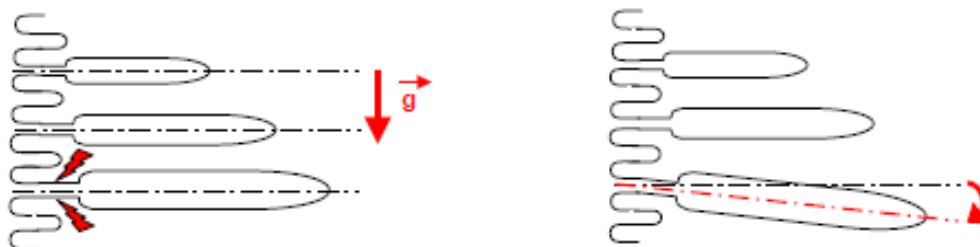
$$U_{r_s} = \frac{2}{9} \frac{(\rho_s - \rho_L)}{\nu} g r_s^2 \quad \text{Eq. IV-8}$$

Il faut noter que dans le cas d'un grain dendritique sédimentant dans un échantillon en lame mince (ce qui est notre cas), la vitesse du solide est fortement ralentie à cause de la présence de la paroi de l'échantillon (Coutanceau, 1987) (Faxen, 1992) et aussi à cause de la morphologie des grains (Zakhem et al. 1992).

Figure IV-6: Courbe montrant le changement de densité du liquide et du solide durant la solidification d'un alliage Al-Cu (Ganesan et al, 1987)



La poussée d'Archimède est aussi à l'origine du fléchissement des bras secondaires des structures dendritiques. En effet, la poussée d'Archimède crée un moment sur le bras secondaire qui augmente au fur et à mesure que les bras se développent. Au-delà d'une valeur critique, la limite d'élasticité est dépassée au niveau du cou reliant les bras secondaires au tronc primaire, ce qui cause la soudaine et irréversible rotation des bras secondaires comme schématisé dans la Figure IV-7 (dans cette figure, la densité du solide est supposée plus grande que la densité du liquide inter-dendritique ce qui est le cas des alliages Al-Ni ou Al-Si).



142

Ce phénomène de déformation mécanique a été révélé *in situ* et en temps réel par radiographie X synchrotron pendant la solidification dirigée dendritique de Al – 3.5 %pds Ni et Al – 7 pds% Si (Figure IV-8) (Reinhart et al. 2008)(Reinhart et al., 2014). Les auteurs montrent que la faible contrainte causée par la gravité est suffisante pour provoquer des fléchissements de plusieurs degrés des bras secondaires. De plus, ces effets mécaniques peuvent avoir des conséquences importantes sur la microstructure finale :

- Le fléchissement des bras primaires peut éventuellement mener à des désalignements entre dendrites, comparables à ceux observés au cours de la croissance de superalliages par J. W. Aveson et al. (Aveson et al. 2012).
- De plus, dans certaines conditions, le fléchissement des bras secondaires induit par la gravité peut aboutir au phénomène de fragmentation, c'est-à-dire le détachement du bras secondaire du tronc primaire (Figure IV-8c).



Figure IV-8 : Séquence de radiographies montrant le fléchissement d'un bras secondaire et son détachement pendant la solidification de l'alliage Al – 7 %pds Si à $G = 15 \text{ K/cm}$ et $R = 0.15 \text{ K/min}$.

Une comparaison d'expériences de solidification d'Al – 20 %pds Cu conduites sur terre (gravité normale) et en microgravité (mission MASER-12), et observées *in situ* et en temps réel, a été effectuée par G. Salloum-Abou-Jaoude et al. (Salloum-Abou-Jaoude et al., 2014). Les résultats soulignent le fort impact de la gravité sur le nombre de fragmentations au cours de la solidification, suivi par le mouvement des fragments (Figure IV-9) :

- Lors de la solidification verticale vers le haut à gravité normale, de nombreuses fragmentations se produisent au sommet de la zone pâteuse, proche des pointes de dendrites. Après leur détachement, les fragments de dendrites flottent vers le haut de l'échantillon sous l'effet de la poussée d'Archimède (flèches blanches dans la Figure IV-9b2 et b3).
- En comparaison, lors de la solidification en microgravité, le nombre de fragmentations détectées dans le haut de la zone pâteuse est drastiquement diminué.

Cette différence de comportement entre les deux expériences montre que la gravité a un rôle non négligeable sur le phénomène de fragmentation.

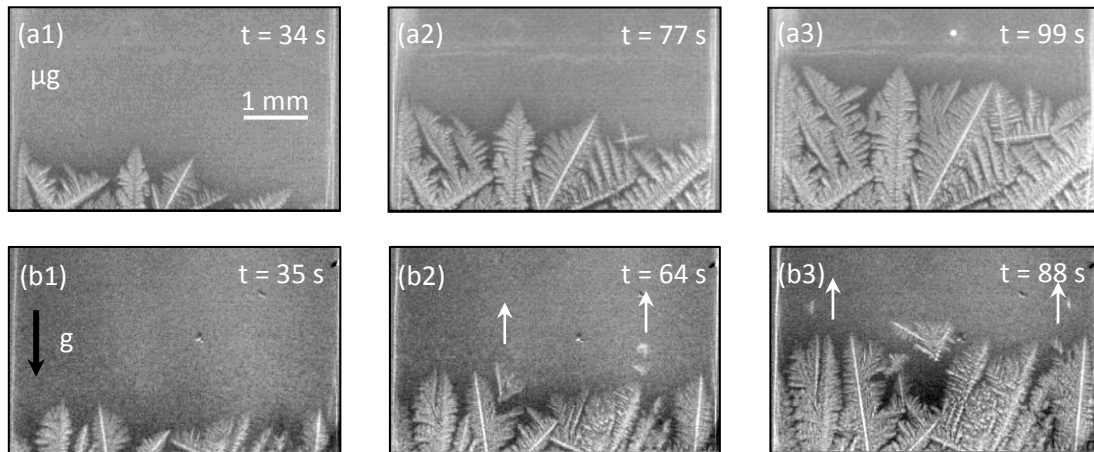


Figure IV-9 : Solidification colonnaire de l'alliage Al-20 %pds Cu avec un gradient de température d'environ 150 K/cm et un taux de refroidissement de 0.15 K/s pour les 2 éléments chauffants : (a) dans des conditions de microgravité, (b) échantillon en position verticale (le temps de référence est arbitraire). Pendant la solidification vers le haut, après leur détachement des troncs primaires, certains fragments de dendrites étaient libres de flotter dans la région chaude de l'échantillon (flèches blanches).

IV.1.4 Pression hydrostatique

Un autre effet relié à la gravité est la pression hydrostatique dans le liquide, qui dépend de la masse volumique du liquide ρ , de la gravité g et de la profondeur de liquide z . Elle est donnée par :

$$P(z) = P_{atm} + \rho g z \quad \text{Eq. IV-9}$$

P_{atm} étant la pression atmosphérique. Dans les conditions usuelles de solidification, la pression atmosphérique reste constante et son effet est pris en compte dans les équations de Navier-Stokes.

Dans certains procédés industriels de fonderie, l'augmentation volontaire de la pression hydrostatique durant la solidification permet de réduire significativement la formation de porosités. Dans nos expériences, l'effet de la pression hydrostatique entraîne un épaissement de la partie basse de nos échantillons, qui exerce alors une force horizontale résultante F_V sur les parois du creuset (Figure IV-10) :

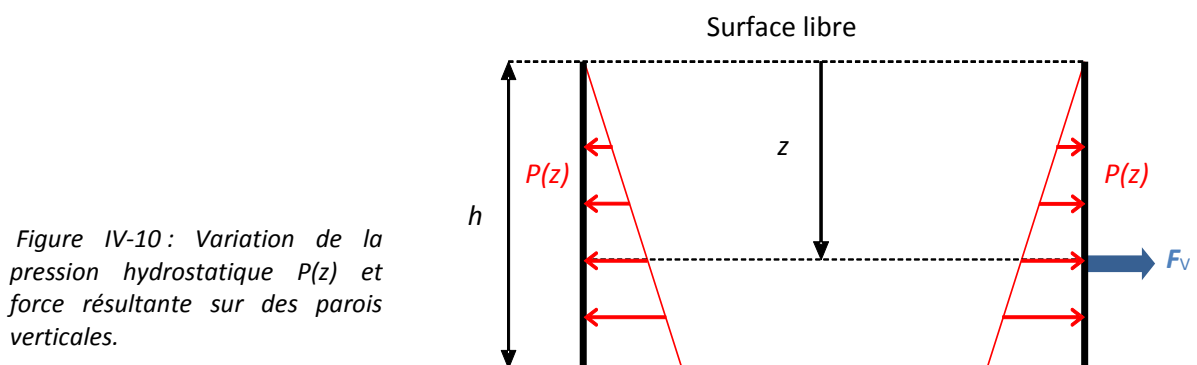


Figure IV-10 : Variation de la pression hydrostatique $P(z)$ et force résultante sur des parois verticales.

On peut montrer que cette force est donnée en fonction de h la hauteur de la paroi par :

$$F_V = \rho \cdot g \cdot h^2 / 2 \quad \text{Eq. IV-10}$$

À l’opposé, dans des conditions de microgravité, la force résultante F_V tend vers zéro et la forme du liquide est seulement déterminée par la tension de surface et l’effet de mouillage du liquide sur les surfaces solides. Ainsi, la perte de la pression hydrostatique dans le liquide peut être à l’origine de rétrécissements ou de la formation de cavités le long de l’échantillon durant les expériences de microgravité (Drevet *et al.* 1995).

Dans un article récent, L. Abou-Khalil *et al.* (Abou-Khalil *et al.* 2016) ont montré que des variations de la pression hydrostatique au cours de vols paraboliques pouvaient induire des variations d’épaisseur de l’échantillon, ce qui entraînait un mouvement du liquide et provoquaient ensuite une transition colonnaire – équiaxe lors de la solidification d’alliages Al-20%pdsCu affinés (Figure IV-11).

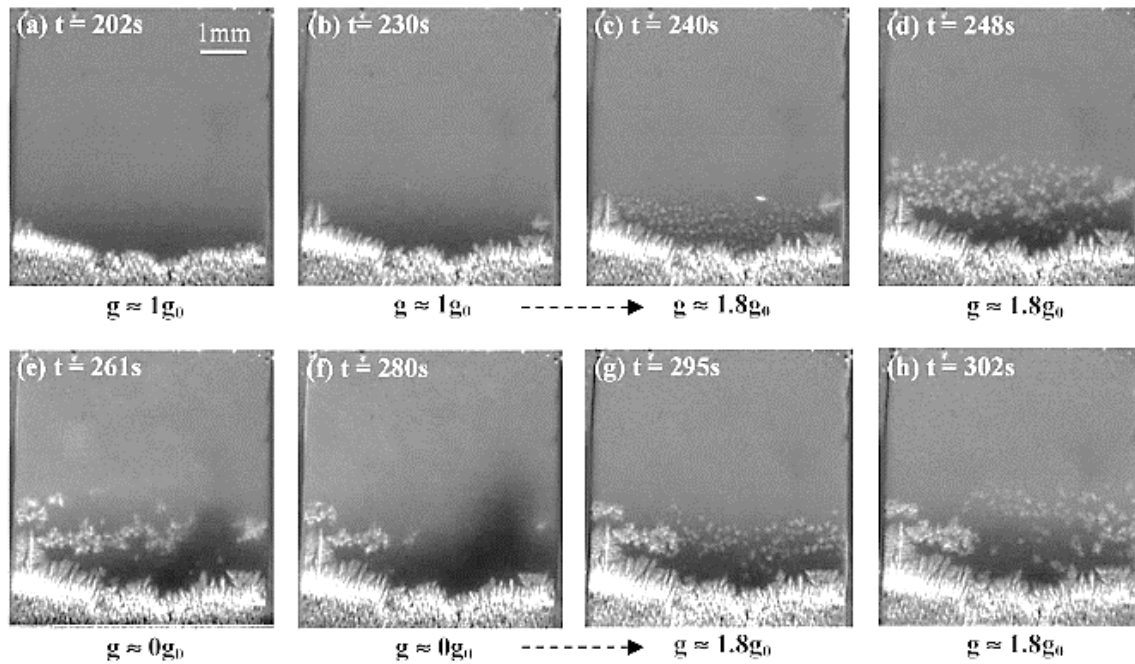


Figure IV-11 : Séquence des radiographies montrant la transition colonnaire-équiaxe (CET) durant la solidification d’un alliage Al-20%pds Cu affiné, produit par la variation du niveau de gravité lors d’une campagne de vol parabolique.

IV.2 Description des expériences

Les expériences présentées dans ce chapitre ont été réalisées en utilisant des échantillons en lame mince d'épaisseur $\approx 230 \pm 10 \mu\text{m}$, d'un alliage hypoeutectique Al-20%pdsCu affiné avec 0.1%pds Al-Ti-B. Pour cet alliage, la masse volumique du solide est inférieure à celle du liquide (Figure IV-6) et les grains dendritiques flotteront sous l'action de la poussée d'Archimède. Ce comportement permettra une mise en évidence aisée des effets de la gravité sur la dynamique de formation des microstructures durant la solidification.

Pour analyser les effets induits par la gravité, nous avons réalisé des expériences de solidification avec différentes orientations du dispositif SFINX par rapport à la gravité. La comparaison des observations et des mesures entre les différentes séries d'expériences va permettre de caractériser les effets de la gravité sur la dynamique de formation de la microstructure dendritique dans un gradient de température.

IV.2.1 Orientation du dispositif expérimental

Les expériences présentées dans ce chapitre sont faites avec le four dans une configuration verticale (Figure IV-12), c'est-à-dire que la surface principale de l'échantillon est parallèle à la gravité. Avec cette position du four, deux types d'expériences peuvent être réalisées.

- Expérience de solidification verticale vers le haut.

Dans ce cas le gradient de température est dans le sens inverse (antiparallèle) de la gravité (Figure IV-12a). Lors de ces expériences, le liquide est dans une configuration stable thermiquement (liquide chaud au-dessus du liquide froid) et solutalement (soluté rejeté lourd).

- Expérience de solidification verticale vers le bas.

Dans ce cas le gradient de température est dans le même sens (parallèle) que la gravité (Figure IV-12b). Lors de ces expériences, le liquide est dans une configuration instable thermiquement, avec le liquide chaud « léger » sous le liquide froid « lourd » ce qui va donner naissance à des mouvements convectifs d'origine thermique, mais aussi d'origine solutale car le soluté lourd va sédimenter.

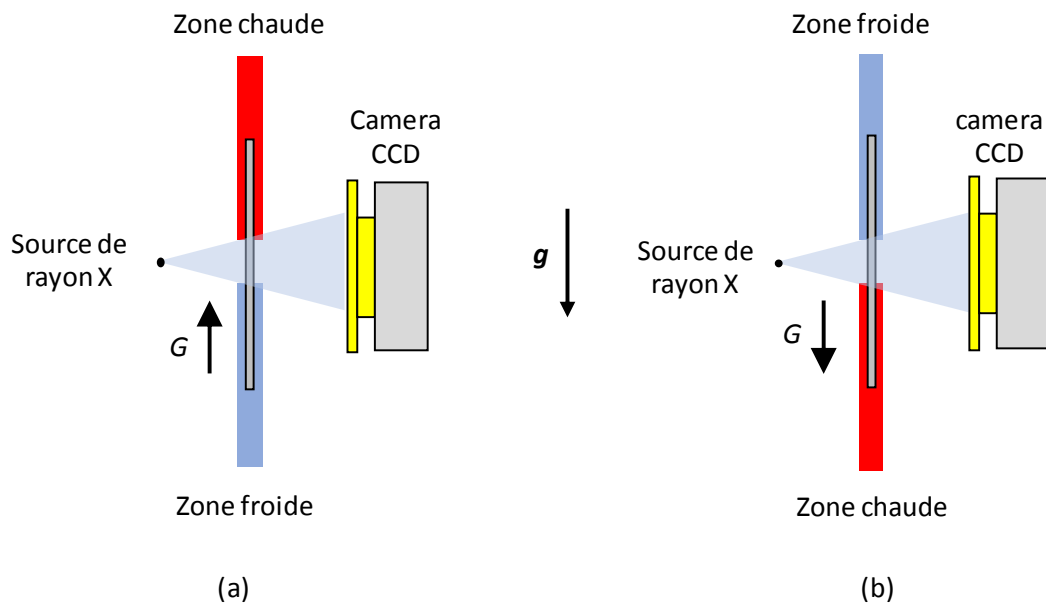


Figure IV-12 : Schéma montrant les configurations d'expérience de solidification en verticale (a) du bas vers le haut et (b) du haut vers le bas.

IV.2.2 Paramètres de solidification appliqués

Pour étudier l'influence des paramètres de contrôle (vitesse de solidification et gradient de température) en présence de la gravité sur la formation de la microstructure, nous avons réalisé pendant cette thèse quatre séries d'expériences, trois séries de solidification vers le haut avec des gradients de température différents et une série de solidification vers le bas.

a) Solidification dirigée vers le haut

Afin de déterminer l'influence des paramètres de solidification en présence de la gravité sur la dynamique de formation des microstructures nous avons réalisé trois séries d'expérience dirigée de bas vers le haut, sur trois échantillons différents. Pour ces expériences, les gradients de température moyens sont $\langle G \rangle = 3.6$ K/mm, $\langle G \rangle = 5.8$ K/mm et $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm respectivement. Les paramètres sont donnés dans le Tableau IV-1.

Pour chaque série d'expériences, l'expérience avec une vitesse de refroidissement $R = -0.15$ K/s a été répétée au début, au milieu et à la fin de la série, pour vérifier la reproductibilité des expériences. La Figure IV-13 montre la structure de grains des trois expériences pour les trois gradients de température appliqués : (a) $\langle G \rangle = 3.6$ K/mm, (b) $\langle G \rangle = 5.8$ K/mm et (c) $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm. En comparant les microstructures, nous pouvons voir une très bonne reproductibilité des expériences, en termes de structure de grains et de vitesse de solidification ($\Delta V/V$ varie de 2% à 15%). Ces variations de vitesse peuvent être attribuées à la déformation progressive de l'échantillon au cours des cycles successifs de fusion – solidification.

Tableau IV-1 : Paramètres de solidification des expériences dirigées du bas vers le haut

Le sens de solidification	Expériences	$\langle G \rangle$ (K/mm)	R (K/s)	$\langle V \rangle$ ($\mu\text{m/s}$)	G_{moy} (K/mm)
<i>Du bas vers le haut</i>	1	~ 3.6	0.05	13.3	3.75
			0.1	30.6	3.3
			0.15	45.1	3.3
			0.15	38.5	3.9
			0.15	42.4	3.4
			0.3	84	3.6
			0.45	128	3.5
			0.9	264	3.4
			1.35	323	4.2
	2	~ 5.8	0.05	7.9	6.3
			0.1	17.2	5.8
			0.15	24.8	6
			0.15	26	5.8
			0.15	27.2	5.5
			0.3	50	6
			0.45	83	5.4
			0.9	164	5.5
			1.35	246	5.5
	3	~ 7.2	0.05	5.7	8.8
			0.1	14.8	6.8
			0.15	23.4	6.4
			0.15	23	6.5
			0.15	22	6.8
			0.3	44	6.8
			0.9	117	7.7
			1.35	174	7.8

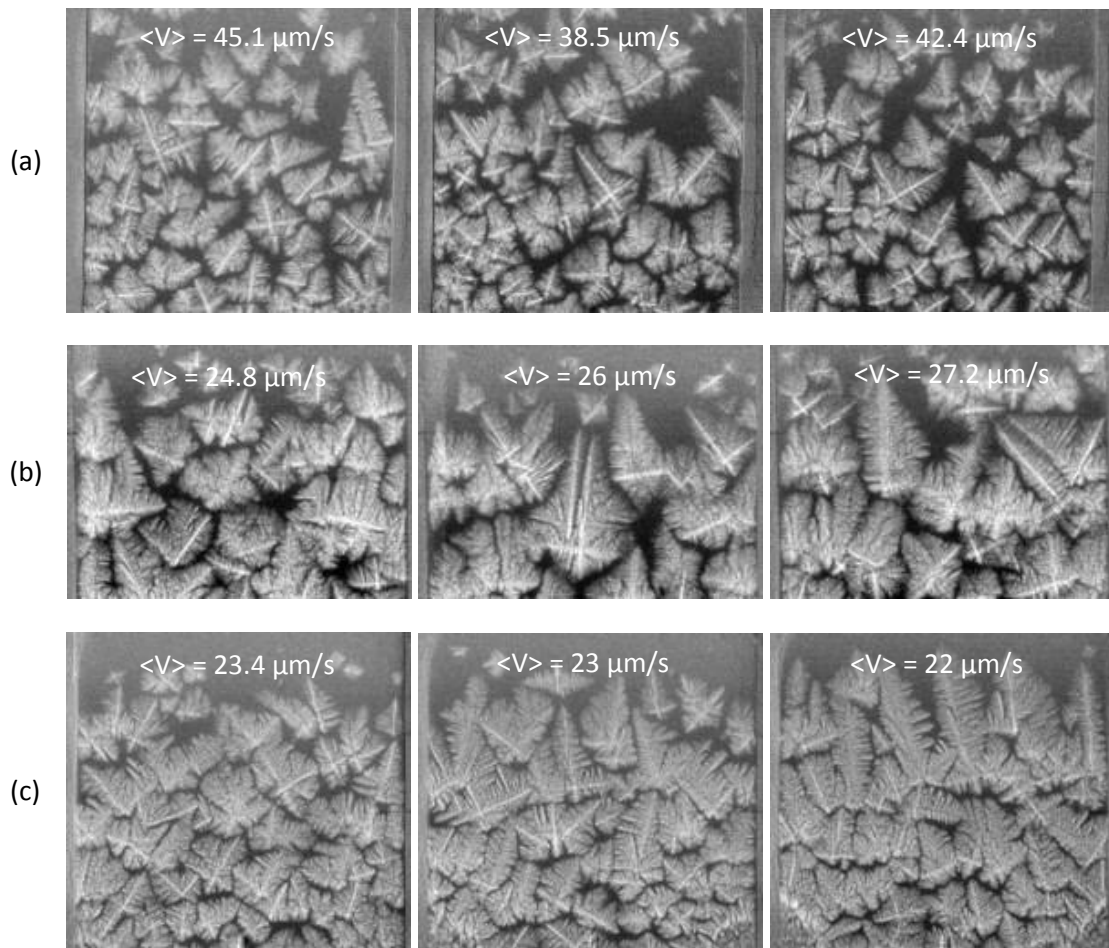


Figure IV-13 : Radiographies montrant les microstructures obtenues pour les trois expériences avec une vitesse de refroidissement de $R = - 0.15 \text{ K/s}$ répétée pour chaque gradient de température en solidification dirigée du bas vers le haut (a) $\langle G \rangle = 3.6 \text{ K/mm}$; (b) $\langle G \rangle = 5.8 \text{ K/mm}$ et (c) $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$. De gauche à droite, les radiographies correspondent aux expériences faites au début, au milieu et à la fin de chaque série d'expériences.

b) Solidification dirigée verticale vers le bas

Un des objectifs est d'étudier l'effet de la gravité sur la dynamique de formation de microstructure des grains dans le cas d'une configuration thermo-solutalement instable. Dans ce but, nous avons réalisé une série d'expériences de solidification verticale vers le bas, sur un échantillon en lame mince d'épaisseur $230 \pm 10 \text{ μm}$, avec un gradient de température moyen $\langle G \rangle = 7.4 \text{ K/mm}$. Les données expérimentales sont données dans le Tableau IV-2

Tableau IV-2 : Paramètres de la série d'expérience dirigée de haut vers le bas.

Le sens de solidification	Expériences	$\langle G \rangle$ (K/mm)	R (K/s)	$\langle V \rangle$ ($\mu\text{m/s}$)	G_{moy} (K/mm)
Du haut vers le bas	4	~ 7.4	0.05	6.4	7.8
			0.1	13.3	7.5
			0.15	21.4	7
			0.15	20.8	7.2
			0.15	20	7.5
			0.3	40	7.5
			0.45	62.4	7.21
			0.9	117	7.7
			1.35	190	7.11

Pour cette série d'expérience nous avons aussi refait l'expérience à $R = - 0.15$ K/s au début, au milieu et à la fin de la série pour voir la reproductibilité de nos expériences. Les microstructures obtenues sont visibles dans la Figure IV-14. Qualitativement les microstructures sont similaires, avec des vitesses de solidification proches ($\Delta V/V$ varie de 3% à 7%).

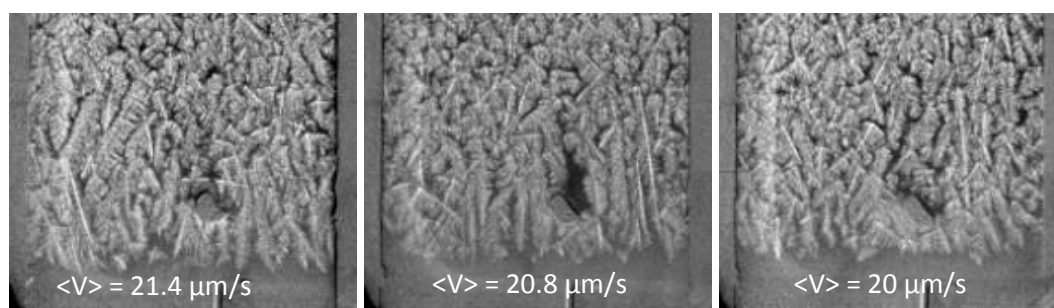


Figure IV-14 : Radiographies montrant les microstructures obtenues pour la vitesse de refroidissement $R = - 0.15$ K/s répétée pour la série d'expérience dirigée du haut vers le bas, réalisée à $\langle G \rangle = 7.4$ K/mm. De gauche à droite, les radiographies correspondent aux expériences faites au début, au milieu et à la fin de la série d'expériences.

IV.3 Solidification verticale vers le haut

IV.3.1 Description de la formation des microstructures de solidification

Pour caractériser qualitativement l'influence de la flottaison des grains sur la dynamique de formation des microstructures de solidification en fonction des paramètres de contrôles, nous allons décrire les expériences réalisées avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et des vitesses de solidification croissantes variant de $\langle V \rangle = 5.7 \text{ } \mu\text{m/s}$ à $\langle V \rangle = 174 \text{ } \mu\text{m/s}$. Le choix de cette série d'expérience pour faire la description des expériences de solidification verticale vers le haut est justifié par le fait qu'elle montre parfaitement les effets induits par la flottaison des grains. De plus, ce gradient de température permettra de comparer les expériences de solidification verticale vers le haut avec les expériences de solidification horizontale pour mettre d'autant mieux en évidence l'effet de la gravité.

a) Croissance colonnaire à très basse vitesse de solidification

Durant la solidification à très basse vitesse $\langle V \rangle = 5.7 \text{ } \mu\text{m/s}$, seulement 6 grains (flèches bleues dans la Figure IV-15) ont germé dans le champ de vue tout au long de l'expérience qui a duré 27 minutes, malgré le fait que l'alliage soit affiné. Selon leur site de germination (particules affinantes ou défauts de la paroi), ces grains peuvent (i) simplement croître sans se déplacer, (ii) commencer à flotter puis être bloqués dans l'épaisseur de l'échantillon où ils continuent ensuite de croître, ou (iii) flotter vers la partie chaude du liquide où ils refondent.

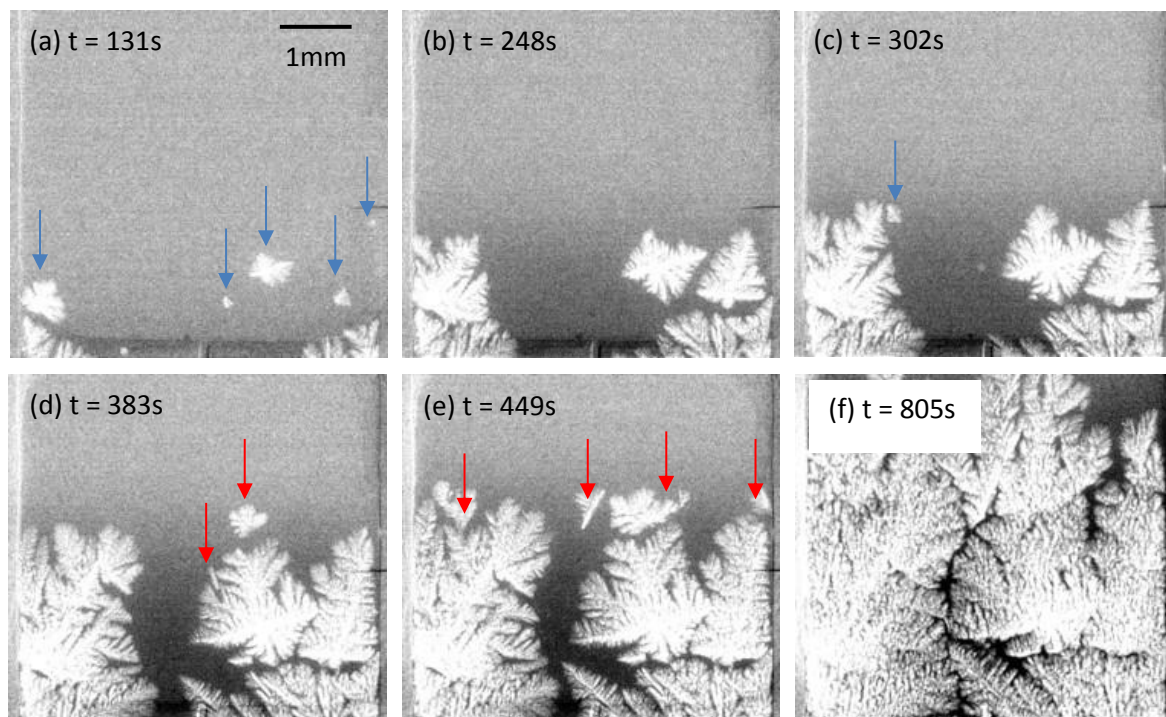


Figure IV-15 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 5.7 \text{ } \mu\text{m/s}$.

Par ailleurs, contrairement au cas de la solidification horizontale, on observe un nombre important de fragmentations de branches secondaires de dendrites. Cette différence de comportement liée à la présence de gravité avait été mentionnée par G. Salloum-Abou-Jaoude et al. (G. Salloum-Abou-Jaoude et al. 2014) grâce à une comparaison entre des expériences en microgravité et au sol. Nous avons aussi remarqué qualitativement que le nombre de fragmentations augmente avec le gradient de température pour des vitesses de solidification proches.

À cause de la poussée d'Archimède, les fragments de dendrites se déplacent vers le haut de l'échantillon. La plupart des fragments refondent, mais d'autres sont bloqués dans l'épaisseur de l'échantillon et continuent ensuite de croître (Figure IV-15, flèches rouges) comme observés précédemment par G. Zimmermann et al. (Zimmermann et al. 2017) dans un alliage Al-10%pdsCu non-affiné. L'ensemble des grains qui ont germés et survécus à l'action combinée de la flottaison et de la refusion donne finalement lieu à une structure avec quelques gros grains allongés dans le sens du gradient de température, très similaire à une structure colonnaire. Cette structure fait apparaître des canaux et des poches de liquides très riches en cuivre, qui se solidifieront ensuite sous forme d'eutectique.

b) Formation des microstructures à basse vitesse de solidification

La Figure IV-16 et la Figure IV-17 montrent les microstructures des expériences réalisées avec les vitesses de solidification $\langle V \rangle = 14.8 \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 23 \mu\text{m/s}$ respectivement. Ces expériences présentent un comportement identique, mais l'augmentation de la vitesse de solidification entraîne une augmentation du nombre de germinations de grains.

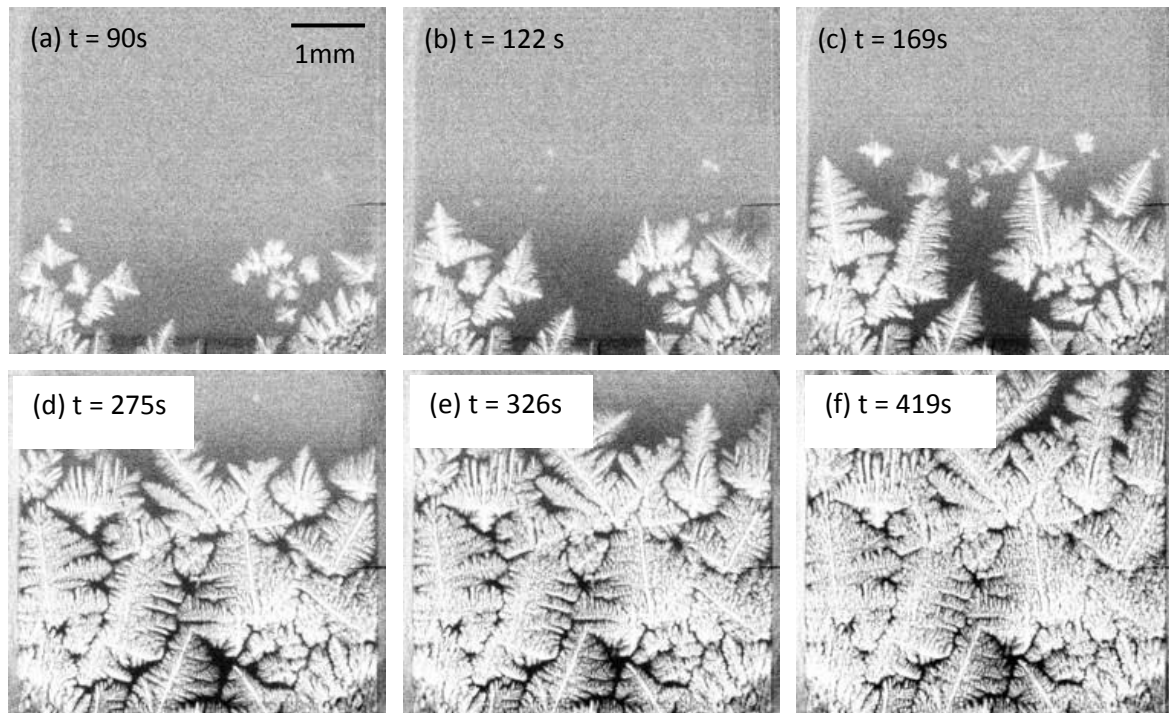


Figure IV-16 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 14.8 \mu\text{m/s}$.

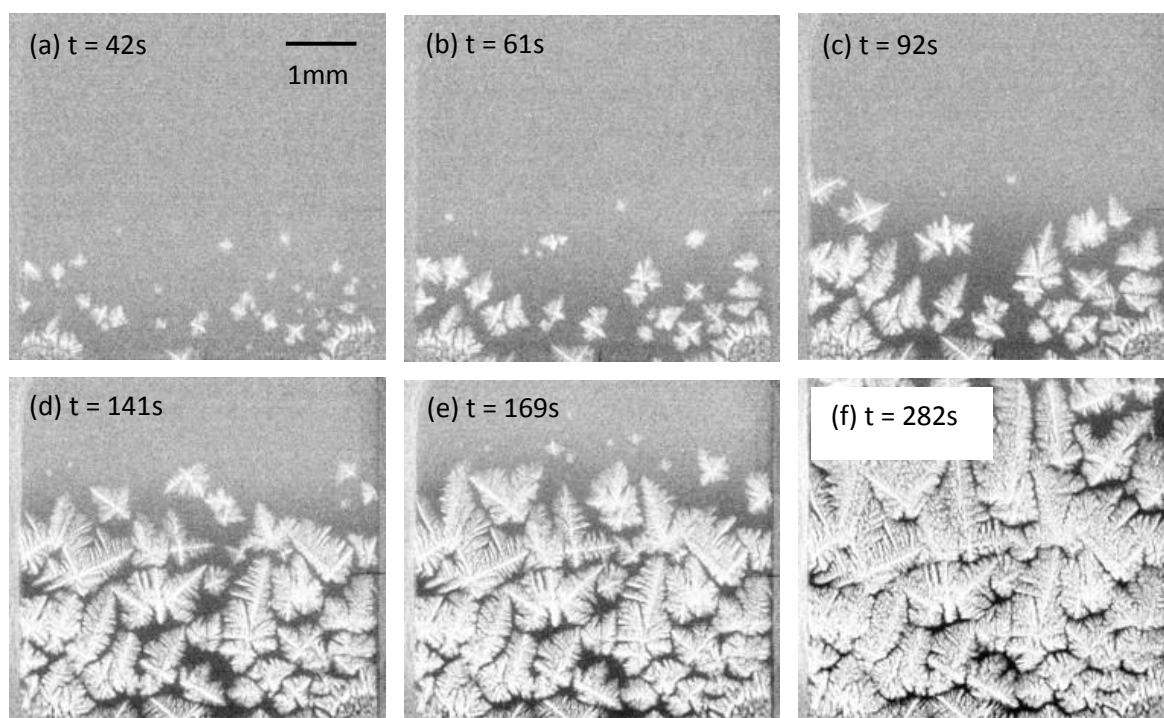


Figure IV-17 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 23 \text{ } \mu\text{m/s}$.

On peut noter que le nombre de germinations est sensiblement le même que pour les expériences réalisées avec les mêmes paramètres en configuration horizontale. Par exemple, pour une vitesse de solidification $\langle V \rangle \sim 24 \text{ } \mu\text{m/s}$ et un gradient de température moyen $\langle G \rangle \sim 6 \text{ K/mm}$, le nombre de grains qui ont germés en solidification horizontale est de l'ordre de 98 ± 5 grains et de 87 ± 10 grains en solidification verticale vers le haut. Cependant, dans la configuration verticale vers le haut, la majorité des nouveaux grains flottent sous l'action de la poussée d'Archimède et refondent dans la partie chaude de l'échantillon. Par conséquent, seuls les grains coincés dans l'épaisseur de l'échantillon ont pu continuer à croître. Il en résulte pour ces expériences une structure de grain finale avec moins de grains que dans les expériences effectuées avec les mêmes conditions mais en horizontale. Soulignons aussi la présence de petites zones ségrégées réparties dans tout le champ de vue.

c) Formation des microstructures pour des vitesses de solidification intermédiaires

L'augmentation de la vitesse de solidification (par exemple ici $\langle V \rangle = 44 \text{ } \mu\text{m/s}$) entraîne une augmentation du nombre de particules affinant activées, et donc du nombre de nouveaux grains germés. Comme pour les expériences précédentes, certains grains vont flotter et refondre dans la partie chaude de l'échantillon. La majorité des autres grains sont bloqués et vont continuer à croître. Cependant, contrairement aux expériences précédentes, un grand nombre de grains ne sont pas bloqués par un effet de confinement dans l'épaisseur de l'échantillon mais par la présence des nouveaux grains qui germent devant eux, ce qui

donne une structure plus compacte (Figure IV-18) qu'à basses vitesses. Comme il a été reporté dans la thèse de L. Abou-Khalil (*Abou-khalil, 2017*), la formation d'une nouvelle couche de grains bloque la couche de grains formée précédemment, ce qui laisse derrière une bande de liquide riche en cuivre (rectangles blancs Figure IV-18 b et c). Dans nos expériences, cette bande de liquide riche en cuivre disparaît progressivement à cause de la croissance des grains. Dans cette expérience, nous avons aussi observé la fragmentation de bras secondaire de dendrites. Néanmoins, ces fragments de dendrite restent piégés dans le réseau dendritique et ne donnent pas naissance à des nouveaux grains.

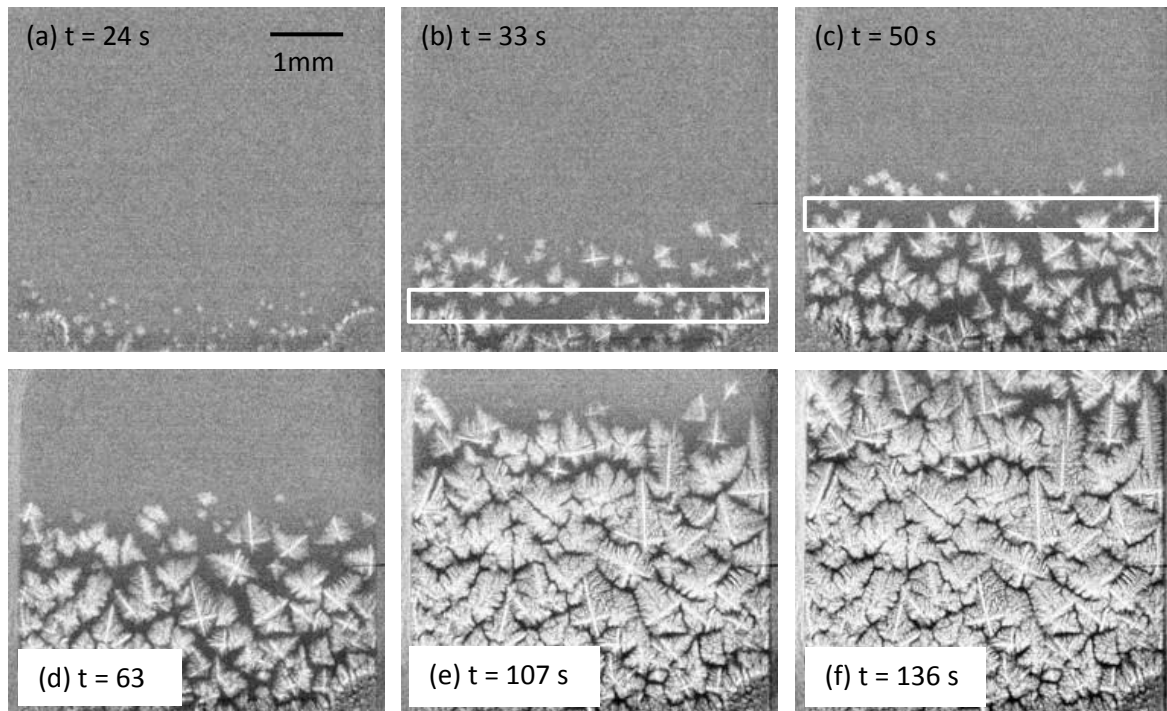


Figure IV-18 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2\text{K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 44\text{ }\mu\text{m/s}$

d) Formation des microstructures pour des grandes vitesses de solidification

La Figure IV-19 et la Figure IV-20 présentent les microstructures de solidification obtenues à des grandes vitesses de solidification : $\langle V \rangle = 117\text{ }\mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 174\text{ }\mu\text{m/s}$ respectivement. La microstructure formée est maintenant uniforme et homogène, constituée d'un très grand nombre de grains et avec un liquide inter-dendritique uniformément distribué dans le champ de vue. Pour ces expériences la période de flottaison de grains est très brève car ceux-ci sont rapidement bloqués par une nouvelle couche des grains qui se forme devant eux. Les grains se déplacent ensuite vers le bas, probablement à cause d'un effet d'aspiration lié au changement de phase liquide-solide qui entraînent une contraction du bas de l'échantillon.

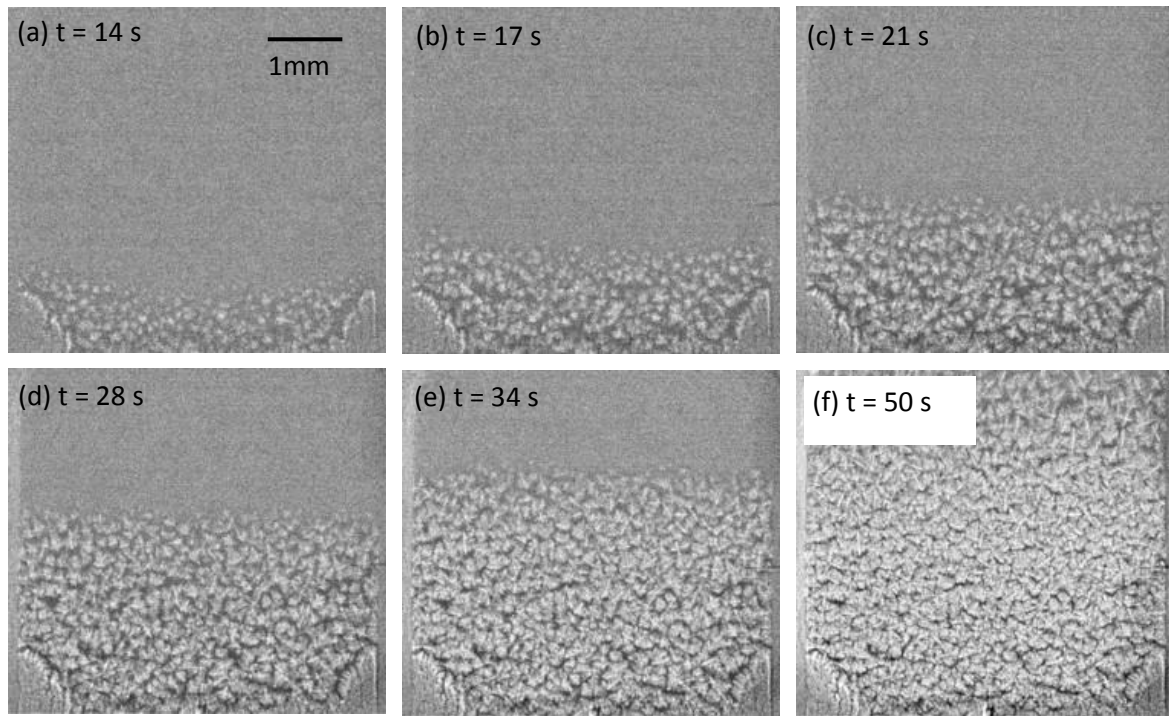


Figure IV-19 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 117 \mu\text{m/s}$.

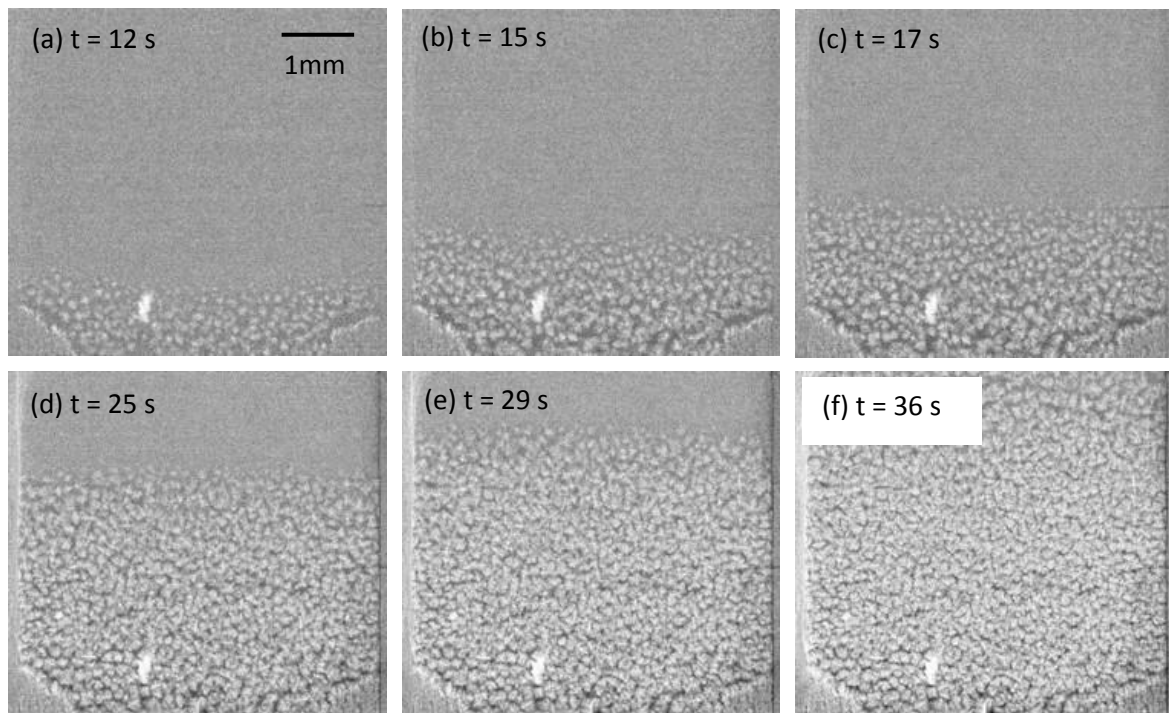


Figure IV-20 : Série de radiographies montrant la dynamique de formation de la microstructure pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et une vitesse de croissance $\langle V \rangle = 174 \mu\text{m/s}$.

IV.3.2 Effet de la flottaison des grains sur la microstructure équiaxe de solidification

La solidification de l'alliage Al-20%pdsCu donne naissance à des grains dont la masse volumique est inférieure à la masse volumique du liquide (riche en cuivre) qui les entoure. Durant la solidification verticale vers le haut, les grains d'aluminium vont se déplacer du bas (zone froide) vers le haut (zone chaude) de l'échantillon, ce qui va fortement impacter la dynamique de formation de la microstructure de solidification. Par conséquent, il est important d'analyser la flottaison des grains en fonction des paramètres de solidification et de déterminer par la suite l'impact de cette flottaison sur la structure finale des grains.

a) Étude de la flottaison de grains isolés en fonction des paramètres de solidification

Pour les vitesses de solidification basses et intermédiaires, les grains parcourent des distances suffisamment longues pour que nous puissions effectuer une caractérisation quantitative de leur mouvement. Pour les très grandes vitesses de solidification, les grains déjà présents sont rapidement bloqués par les nouveaux grains qui germent devant eux, ce qui limite leur déplacement et ne permet pas de mesurer leur vitesse de déplacement.

La Figure IV-21a montre les positions successives d'un grain au cours de son mouvement, à intervalle de temps régulier. La figure montre que la vitesse des grains n'est pas constante au cours du déplacement. Ceci est dû au fait que les grains vont initialement croître sous l'effet du refroidissement (Figure IV-21a1 → Figure IV-21a2) puis vont diminuer en taille dans la partie chaude de l'échantillon (Figure IV-21a2 → Figure IV-21a3). La poussée d'Archimède variant en r^2 , ceci implique que la vitesse de déplacement du grain variera au cours du mouvement.

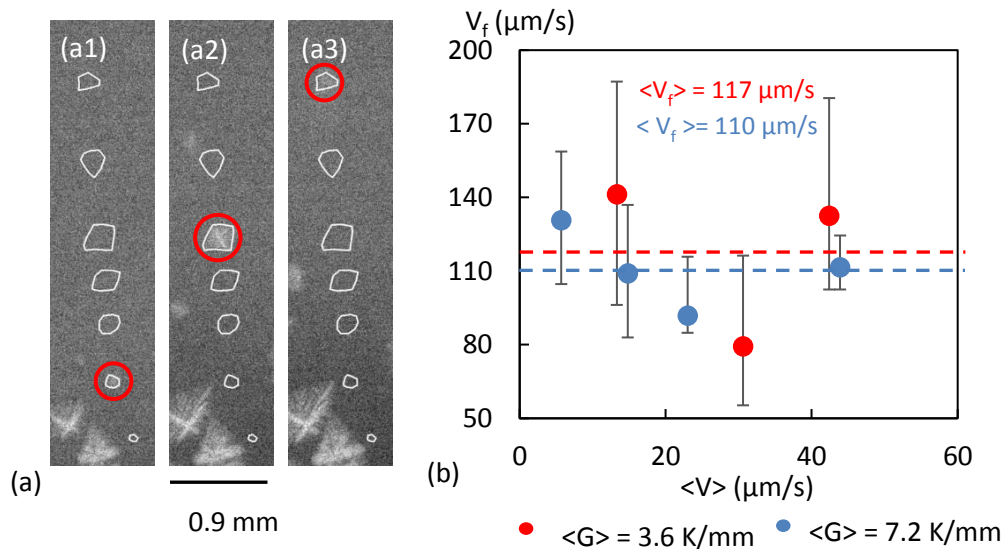


Figure IV-21: (a) Série de radiographies montrant les positions occupées (contour blanc) par un grain lors de sa flottaison ; (b) Courbe montrant la variation de la vitesse de flottaisons de grains V_f moyenne en fonction de vitesse de solidification pour des expériences réalisées à $\langle G \rangle = 3.6$ K/mm et $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm.

À partir de ce type d'images, nous avons mesuré une vitesse de flottaison moyenne pour les grains qui flottent librement, en supposant les variations de la vitesse suffisamment faible pour être négligées. La Figure IV-21b montre la variation de la vitesse de flottaison V_f en fonction de la vitesse de solidification pour deux gradients de température, $\langle G \rangle = 3.6$ K/mm et $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm. Les valeurs sont déterminées pour une dizaine de grains isolés. Les barres d'erreurs correspondent aux valeurs de vitesses de flottaison minimales et maximales mesurées pour un ensemble de grains.

La dispersion des valeurs est relativement importante. Ceci est dû à plusieurs facteurs que nous ne pouvons pas contrôler tels que la variation locale de l'épaisseur de l'échantillon (Faxen, 1992) (Abou-khalil, 2017) et le contact éventuel avec la paroi pendant le mouvement, la variation de la composition du liquide autour du grain qui intervient dans la poussée d'Archimède, la morphologie du grain et les mouvements de rotation du grain. Il ressort de ces mesures qu'aucune tendance claire n'est observée et que la vitesse de flottaison des grains semble indépendante de la vitesse solidification, pour un gradient de température donné.

Si on compare les séries de mesure de la vitesse de flottaison pour les deux gradients de température, il est également difficile de voir un effet du gradient de température. Une variation du gradient de température pourrait avoir un effet sur le mouvement d'un grain en modifiant sa morphologie, qui sera plus équiaxe (facteur d'allongement proche de l'unité) pour les faibles gradients de température. A fort gradient de température, la morphologie plus asymétrique des grains pourrait provoquer leur rotation au cours de la flottaison et donc ralentir leur déplacement moyen.

La gamme de vitesse de flottaison se situe entre 80 et 200 $\mu\text{m/s}$, ce qui est du même ordre de grandeur que les vitesses de flottaison mesurées par G. Salloum-Abou-Jaoude et al, (G Salloum-Abou-Jaoude et al. 2014) et L. Abou-Khalil et al, (Abou-Khalil et al. 2016). Cette gamme de vitesse peut être comparée à un calcul théorique de la vitesse de Stokes en régime stationnaire pour un grain sphérique (IV.1.2) en prenant en compte l'effet des parois et l'effet de la morphologie. L'effet des parois a été étudié par (Faxen, 1992) qui a déterminé que l'expression de la vitesse de flottaison pour une sphère entre deux parois parallèles est donnée par la formule suivante :

$$U_{\text{parois}} = U_{r_s} \left[1 - 1.004 \left(\frac{2r_s}{e} \right) + 0.418 \left(\frac{2r_s}{e} \right)^3 - 0.169 \left(\frac{2r_s}{e} \right)^5 \right] \quad \text{Eq. IV-11}$$

Avec $e \approx 230$ μm l'épaisseur de l'échantillon et r_s le rayon de la sphère.

De la même façon, l'impact de la morphologie des grains sur leur flottaison a été étudiée par R. Zakhem et al. (Zakhem et al. 1992) qui ont fait des expériences sur 34 modèles des dendrites uni-axiales et tri-axiales (Figure IV-22) dans un liquide de viscosité connue. Les auteurs de l'article ont enregistré les vitesses de l'écoulement U_s de ces dendrites dans le

liquide, qu'ils ont divisé par les vitesses de Stokes U_{rs} dans le cas des grains sphériques. Le rapport obtenu est le coefficient correctif KS . Dans notre cas, les grains sont de type tri-axiales avec un facteur correctif $KS = 0.6$.

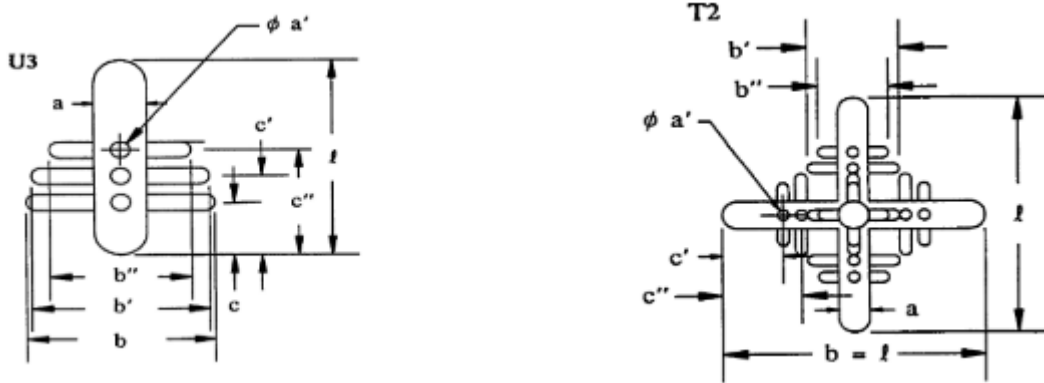


Figure IV-22 : Deux configurations de modèles dendritiques où U désigne la forme uni-axiale et T tri-axiales et les numéros représentent le système des branches dendritiques secondaires (Zakhem et al.1992) .

Le calcul prédit des vitesses de flottaison de l'ordre de $70 \mu\text{m/s}$ pour un grain de $50 \mu\text{m}$ de diamètre et de $360 \mu\text{m/s}$ pour un grain de $150 \mu\text{m}$ de diamètre. Ces valeurs sont sensiblement du même ordre de grandeur que les vitesses de flottaison mesurées expérimentalement.

b) Comparaison des microstructures en solidification horizontale et verticale vers le haut

La flottaison des grains au cours de la solidification devrait affecter la taille et la morphologie des grains, par conséquent la structure finale de solidification. Nous avons donc réalisé une étude comparative entre les expériences effectuées en configuration horizontale et en configuration verticale.

La Figure IV-23 montrent les microstructures pour deux expériences faites avec un gradient de température mesuré $\langle G \rangle \approx 6 \text{ K/mm}$ et deux vitesses de solidification très proches, la première en configuration horizontale (Figure IV-23a) et la seconde en configuration verticale (Figure IV-23b). La comparaison de ces deux expériences met en évidence un impact important de la flottaison des grains sur l'apparence des microstructures.

Visuellement, nous pouvons constater que :

- La structure de grains semble plus uniforme en absence de mouvement des grains,
- La fraction liquide inter-dendritique semble distribuée de manière moins uniforme dans l'expérience en solidification verticale vers le haut.

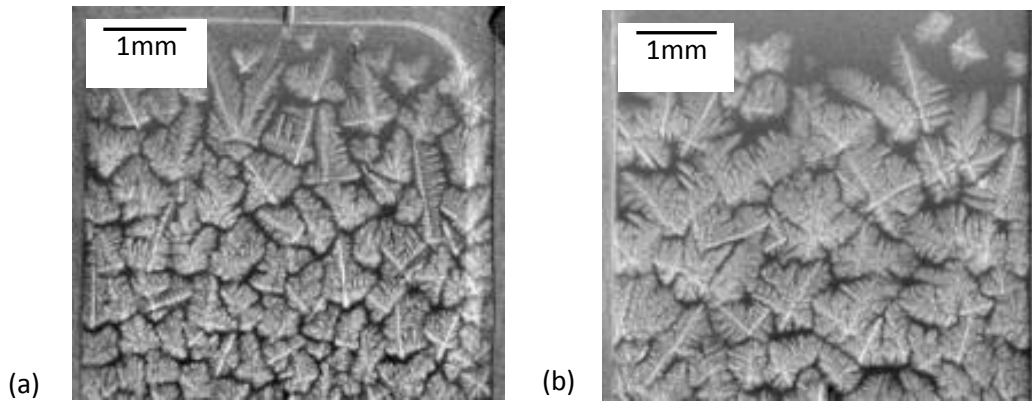


Figure IV-23 : Radiographies des deux expériences faites avec des paramètres de solidification presque identiques et deux configurations du four différentes (a) solidification en configuration horizontale avec $\langle V \rangle = 24.2 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 6.1 \text{ K/mm}$; (b) solidification en configuration verticale du bas vers le haut réalisée avec $\langle V \rangle = 23.4 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 6.4 \text{ K/mm}$.

L'effet de la flottaison des grains dû à la gravité est évidemment plus important à faible vitesse de solidification qu'à grande vitesse de solidification. Par exemple, pour les vitesses les plus élevées, les radiographies de deux expériences réalisées pour les deux configurations (horizontale et verticale vers le haut) avec un gradient de température et une vitesse de solidification proches (Figure IV-24) montrent des structures de grains très similaires, que ce soit en taille (de l'ordre de $170 \mu\text{m}$), ou en morphologie.

Cette similitude montre que l'impact de la flottaison des grains est négligeable pour les grandes vitesses de solidification ($174 - 214 \mu\text{m/s}$), quand celles-ci sont supérieures à la vitesse de flottaison des grains (qui est de l'ordre de $100 \mu\text{m}$) (Soltani et al. 2019). Dans ce cas, les grains qui ont germé sont rapidement bloqués par les nouveaux grains qui germent devant eux, ce qui limite leur déplacement. Dans la suite, l'analyse des effets de la flottaison des grains concernera principalement les expériences à basse vitesses de solidification.

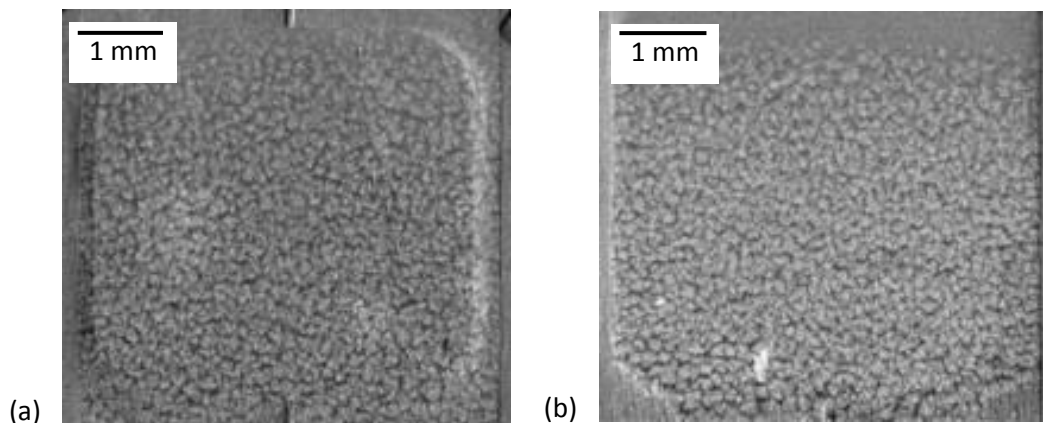


Figure IV-24 : Radiographies de deux expériences faites à grande vitesse de solidification (a) solidification en configuration horizontale avec $\langle V \rangle = 214 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 6.3 \text{ K/mm}$; (b) solidification en configuration verticale du bas vers le haut réalisée avec $\langle V \rangle = 174 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 7.8 \text{ K/mm}$.

c) Effet de la flottaison des grains sur la distribution de la taille des grains

Les mesures de la taille des grains pour les deux expériences réalisées à la même vitesse moyenne $\langle V \rangle \sim 24 \pm 0.6 \mu\text{m/s}$ en solidification horizontale et verticale vers le haut permettent de dessiner la cartographie de la distribution en taille des grains pour ces deux expériences (Figure IV-25). Ces cartographies confirment que la taille moyenne est plus grande en solidification verticale vers le haut ($\langle d \rangle = 550 \mu\text{m}$, Figure IV-25b1), qu'en solidification horizontale ($\langle d \rangle = 500 \mu\text{m}$, Figure IV-25a1), avec une différence relative de 10%.

Les histogrammes de la distribution en taille (Figure IV-25 a2 et b2) montre également une distribution plus étendue en solidification verticale vers le haut ($\sigma = 275 \mu\text{m}$) qu'en solidification horizontale ($\sigma = 195 \mu\text{m}$). La flottaison des grains provoque l'apparition de petits grains ($< 300 \mu\text{m}$) mais aussi de quelques très gros grains ($> 800 \mu\text{m}$).

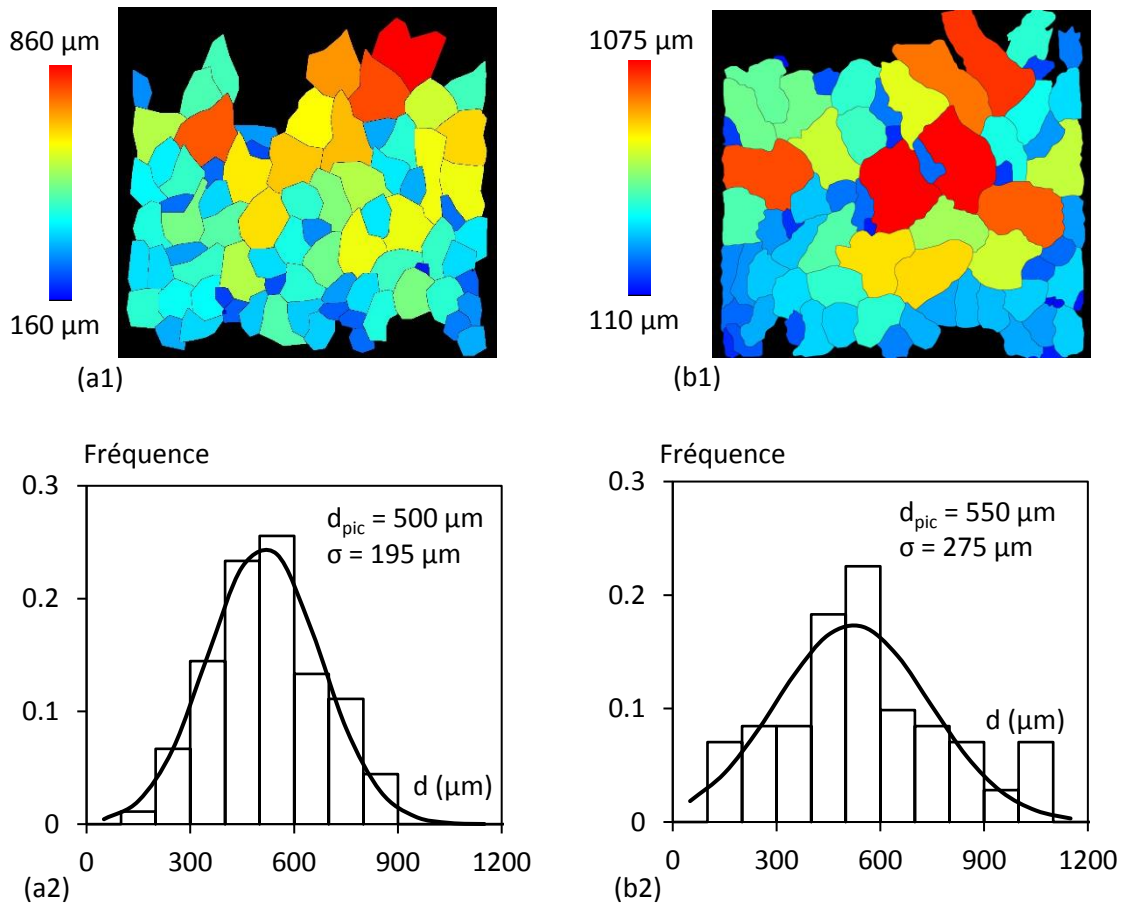


Figure IV-25 : Cartographies et histogrammes de distribution de taille des deux expériences faites avec des paramètres de solidification presque identiques et deux configurations de solidification différentes (a1 et a2) solidification en configuration horizontale avec $\langle V \rangle = 24.2 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 6.1 \text{ K/mm}$; (b1 et b2) solidification en configuration verticale du bas vers le haut réalisée avec $\langle V \rangle = 23.4 \mu\text{m/s}$, $G_{\text{moy}} = 6.4 \text{ K/mm}$

La distribution de la taille des grains dans le cas de la solidification vers le haut est moins uniforme, à cause du phénomène de flottaison des grains après leur germination. La Figure IV-26 montre par exemple la formation d'un gros grain dans l'expérience de solidification vers le haut. Le grain (entouré d'un liseré blanc) se déplace vers le haut de l'échantillon après sa germination (Figure IV-26a et b) mais est ensuite bloqué dans l'épaisseur de l'échantillon, loin de la microstructure, où il continue de croître (Figure IV-26b et c). Le grain est alors libre de croître et peut atteindre une taille millimétrique (Figure IV-26d). La présence de ces gros grains en avant de la microstructure bloque ensuite le déplacement des grains qui ont germé dans la zone liquide située entre la microstructure et le gros grain. La croissance de ces nouveaux grains est alors limitée par l'interaction entre proches voisins.

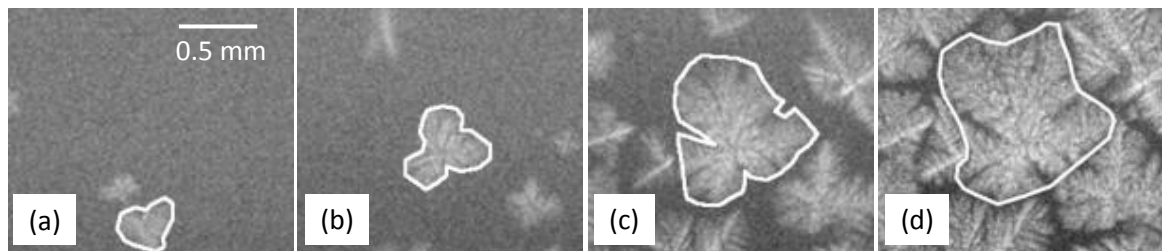


Figure IV-26 : Série de radiographies illustrant le mécanisme de formation d'un gros grain (entouré en blanc)

La Figure IV-27 montre la variation de la taille de grains en fonction de la vitesse de solidification pour les deux séries d'expérience faites en configuration horizontale (barres rouges $\langle G \rangle = 6$ K/mm) et en configuration verticale vers le haut (barres bleues $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm), pour des gradients de température relativement proches. Chaque barre représente la gamme de taille des grains pour chacune des expériences. Comme expliqué au-dessus, les gammes de valeurs de taille sont globalement plus larges pour les expériences de solidification verticale vers le haut, à vitesses identiques ou proches.

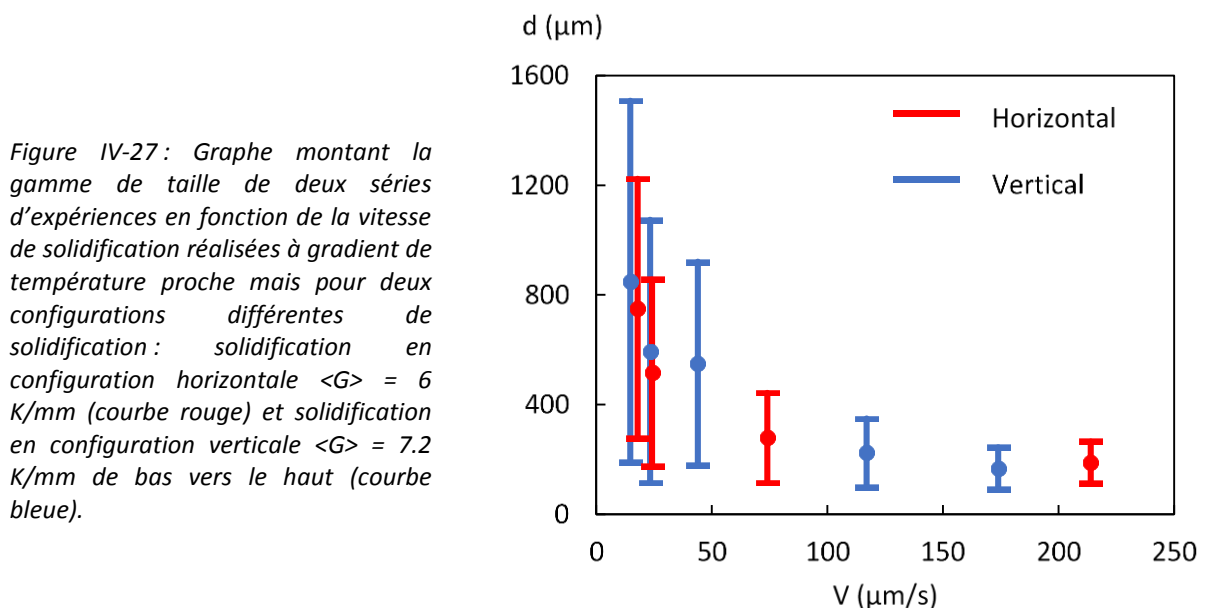


Figure IV-27 : Graphe montrant la gamme de taille de deux séries d'expériences en fonction de la vitesse de solidification réalisées à gradient de température proche mais pour deux configurations différentes de solidification : solidification en configuration horizontale $\langle G \rangle = 6$ K/mm (courbe rouge) et solidification en configuration verticale $\langle G \rangle = 7.2$ K/mm de bas vers le haut (courbe bleue).

En ce qui concerne la taille moyenne des grains, la tendance est identique pour les deux configurations expérimentales : celle-ci diminue avec l'augmentation de la vitesse de solidification et la largeur de la distribution diminue aussi. Comme expliqué dans le chapitre III, cette décroissance de la taille des grains est due à l'augmentation de l'intensité de la surfusion de constitution avec l'augmentation de la vitesse de solidification, qui augmente le nombre de particules affines activées. A priori, la flottaison des grains ne semble pas perturber significativement l'intensité de la surfusion de constitution devant le front de solidification.

d) Effet de la flottaison sur la morphologie de la structure de grain finale

La flottaison des grains peut affecter aussi la morphologie finale des grains (allongement et orientation des grains selon le sens du gradient de température), ceux-ci pouvant subir des rotations au cours de leur déplacement. Sur les radiographies (comme la Figure IV-23), il est difficile de tirer des conclusions de l'effet de la gravité sur l'allongement de grains ou leur orientation. Nous avons donc effectué une analyse quantitative de la microstructure pour apporter des éléments de réponse sur ce sujet.

L'analyse est faite sur les deux expériences à basse vitesse $\langle V \rangle = 24 \pm 0.6 \mu\text{m/s}$ et $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$. Pour les deux configurations, nous trouvons un allongement ϕ_{pic} inférieur à 2 ($\phi_{pic} = 1.45$ pour l'expérience en horizontale et $\phi_{pic} = 1.23$ pour l'expérience en verticale vers le haut). Par conséquent nous pouvons conclure que la structure de grains est de type équiaxe d'après le critère de J.D. Hunt (Hunt, 1984).

La Figure IV-28 montre la variation de l'allongement des grains en fonction de la vitesse de solidification pour deux séries d'expériences qui ont un gradient de température proches mais une faite en configuration horizontale et l'autre en configuration verticale. Les points bleus correspondent aux expériences de solidification verticale vers le haut alors que les points rouges correspondent aux expériences de solidification horizontale, les barres d'erreur correspondent à ϕ_{max} et ϕ_{min} de chacune des expériences. Ce graphe ne montre aucune tendance nette de l'effet de la flottaison sur l'allongement des grains.

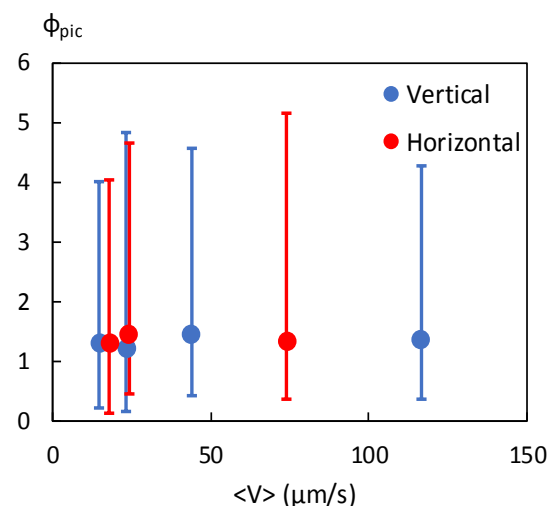


Figure IV-28 : Variation du facteur d'allongement ϕ en fonction de la vitesse de solidification pour une solidification en configuration horizontale (courbe rouge) $\langle G \rangle = 6 \text{ K/mm}$ et en configuration verticale du bas vers le haut (courbe bleue) $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$.

La détermination quantitative de l'orientation de croissance des grains pour les deux expériences à basse vitesse de solidification donne deux distributions assez semblables, sans effet significatif de la flottaison des grains (Figure IV-29). Cette constatation est également valable pour les vitesses plus élevées. Il semblerait que, dans nos expériences, la gravité a peu d'effet sur l'orientation moyenne des grains, qui ne dépend donc que des paramètres de contrôle, principalement le gradient de température.

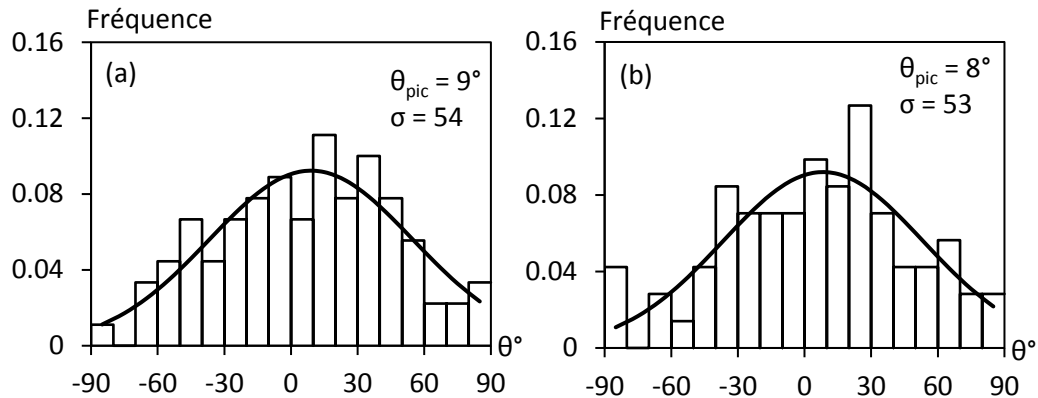
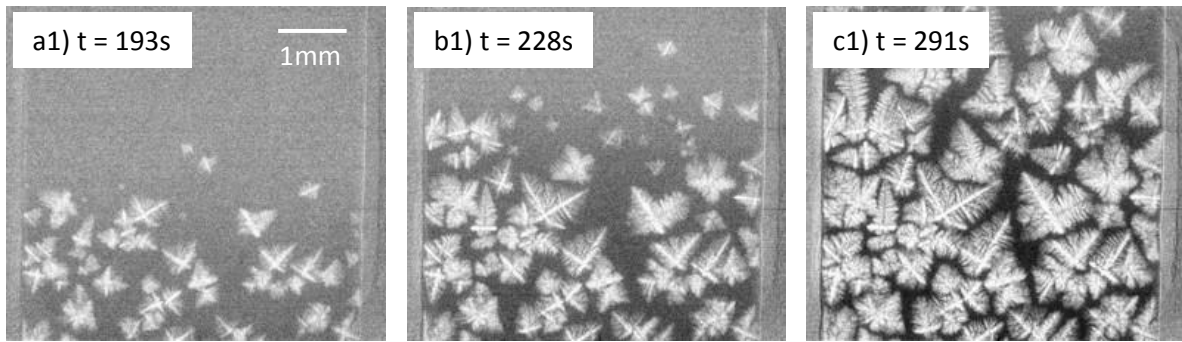


Figure IV-29 : Histogrammes montrant la distribution de l'orientation de croissance des grains pour deux expériences faites avec des paramètres de solidification presque identiques et deux configurations de solidification différentes (a) solidification en configuration horizontale avec $\langle V \rangle = 24.2 \mu\text{m/s}$, $G_{moy} = 6.1 \text{ K/mm}$; (b) solidification en configuration verticale du bas vers le haut avec $\langle V \rangle = 23.4 \mu\text{m/s}$, $G_{moy} = 6.4 \text{ K/mm}$.

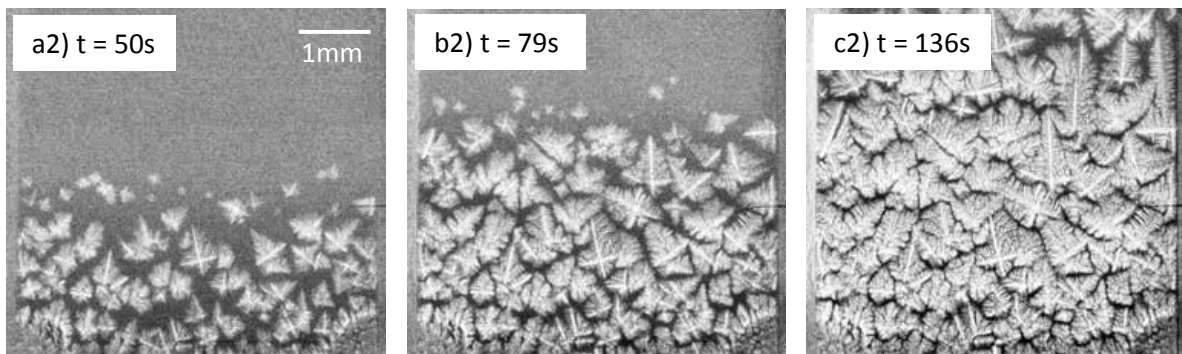
IV.3.3 Effet du gradient de température sur la structure de grains

Pour étudier l'influence du gradient de température sur les microstructures de solidification dans la configuration verticale vers le haut, nous avons effectué la comparaison d'un couple d'expériences réalisées avec des vitesses de solidification très proches ($\langle V \rangle = 42.4 \mu\text{m/s}$ et $\langle V \rangle = 43.9 \mu\text{m/s}$) mais avec deux gradients de température différents ($\langle G \rangle = 3.6 \text{ K/mm}$ et $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ respectivement). Comme pour les expériences faites en position horizontale (voir chapitre III), nous observons pour les deux expériences (Figure IV-30) une importante quantité de liquide inter-dendritique entre les grains, qui diminue avec l'augmentation du gradient de température à cause de la diminution de la distance de germination (III-3-2).

Un point important à souligner est qu'en solidification verticale vers le haut, le nombre de germinations est différent du nombre de grains dans la microstructure à cause du phénomène de flottaison. Une partie des grains est refondue par suite de leur déplacement dans la zone chaude de l'échantillon. Les mesures du nombre de grains qui ont germé lors de la solidification montrent que le nombre de germination est plus important à fort gradient (~ 150 grains) qu'à faible gradient de température (~ 100 grains). Le nombre de grains qui compose la structure finale dans le champ de vue est de 136 grains à fort gradient de température et de 73 grains à faible gradient de température.



(a) $\langle G \rangle = 3.6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 42.4 \text{ } \mu\text{m/s}$



(b) $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 43.9 \text{ } \mu\text{m/s}$

Figure IV-30 : Série de radiographies montrant l'influence du gradient de température sur la microstructure finale de solidification lors de la solidification verticale vers le haut : (a) $\langle G \rangle = 3.6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 42.4 \text{ } \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 43.9 \text{ } \mu\text{m/s}$

Les histogrammes que nous avons déterminés pour la distribution en taille de la structure finale indiquent que l'augmentation du gradient de température entraîne une diminution de la taille moyenne des grains, qui décroît de $480 \text{ } \mu\text{m}$ à $360 \text{ } \mu\text{m}$ (Figure IV-31). La largeur à mi-hauteur semble aussi diminuer avec l'augmentation du gradient de température. Ces sont encore une fois les mêmes tendances que celles obtenues au cours des expériences de solidifications horizontales pour les mêmes gammes de vitesse.

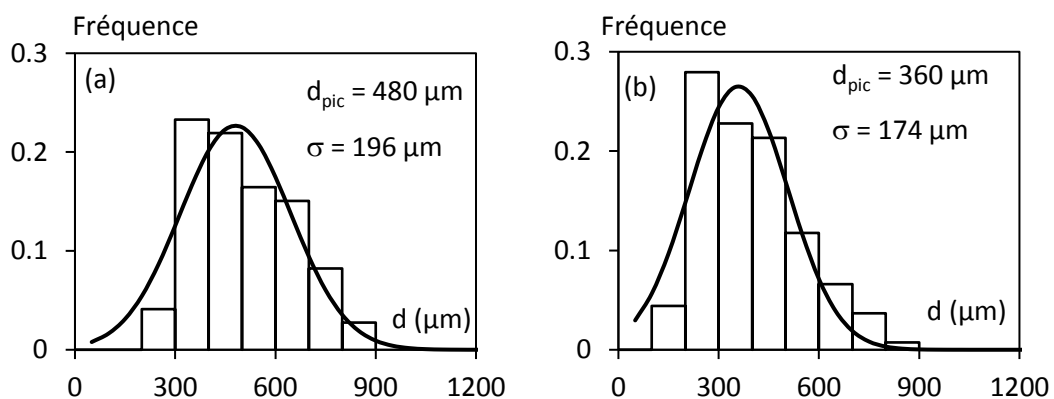


Figure IV-31 : Histogrammes de distributions de taille des deux expériences réalisées en configuration vers le haut à (a) $\langle G \rangle = 3.6 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 42.4 \text{ } \mu\text{m/s}$; (b) $\langle G \rangle = 7.2 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 43.9 \text{ } \mu\text{m/s}$

En conclusion, nous constatons que, malgré le phénomène de flottaison des grains, les effets induits par une augmentation du gradient de température sur la dynamique de formation de la microstructure sont sensiblement les mêmes qu'en solidification horizontale.

IV.4 Solidification verticale vers le bas

Pour compléter notre étude des effets de la gravité sur la formation des microstructures dendritiques, nous avons réalisé une série de sept expériences de solidification verticale vers le bas avec un gradient de température de $\langle G \rangle = 7.4 \text{ K/mm}$ et pour des vitesses de solidification croissantes. Cette configuration correspond au cas thermo-solutalement instable, qui est supposé induire de forts mouvements convectifs dans le liquide.

IV.4.1 Description des microstructures de solidification

La Figure IV-32 montre les différentes microstructures que nous avons obtenues en fonction de la vitesse de solidification. Nous allons décrire en détail la formation de ces microstructures en fonction de la vitesse de solidification.

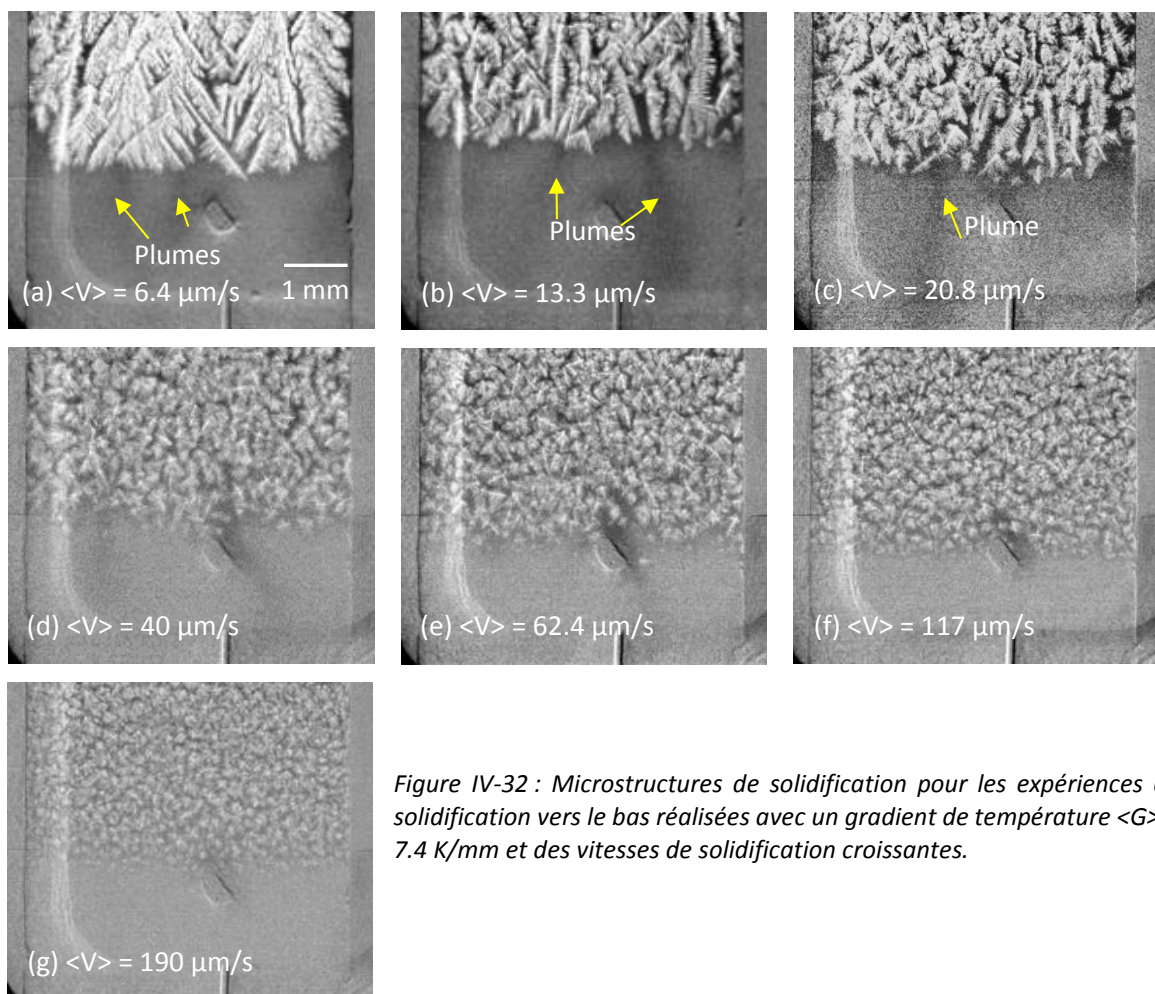


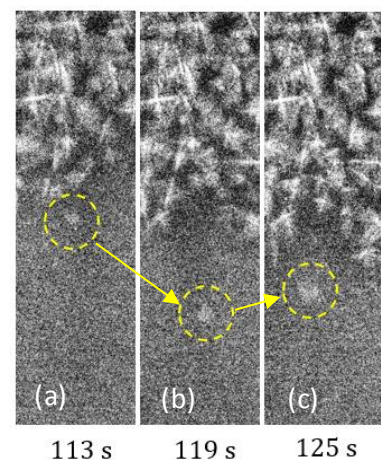
Figure IV-32 : Microstructures de solidification pour les expériences de solidification vers le bas réalisées avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.4 \text{ K/mm}$ et des vitesses de solidification croissantes.

a) Structures colonnaires et mixtes

À basse vitesse de solidification (Figure IV-32a), nous obtenons une structure colonnaire qui se développe de haut en bas, de manière très similaire aux deux autres configurations (horizontale et verticale vers le haut). Le résultat important que révèle la radiographie X *in situ* est la formation de zones plus sombres (donc plus riche en cuivre) dans le liquide devant le front de solidification, indiquées par les flèches jaunes dans la Figure IV-32a et Figure IV-32b et Figure IV-32c. Ces zones liquides enrichies en cuivre sont dues au rejet de soluté plus lourd qui sédimente au cours de la solidification et sont appelées « des plumes » (Copley *et al.* 1970)(Hellawell, *et al.* 1993). Dans nos expériences, les plumes s'écoulent vers le bas, dans le sens opposé des expériences réalisées par le groupe de S. Eckert (Helmholtz-Zentrum, Dresde) sur l'alliage à bas point de fusion Ga-In en solidification verticale vers le haut (Boden *et al.* 2010)(Shevchenko *et al.* 2015), pour lesquelles les plumes se formaient par rejet d'un soluté plus léger. L'écoulement des plumes devrait a priori affecter la cinétique de croissance des dendrites en modifiant la couche de soluté devant les pointes des dendrites. Ce point sera analysé en détail par la suite.

Pour une vitesse de solidification plus élevée ($\langle V \rangle = 13.3 \mu\text{m/s}$), la structure obtenue est de type « mixte » (Figure IV-32b) : Le front est globalement colonnaire mais avec l'addition de nouveaux grains équiaxes en avant du front colonnaire. Après leur germination, les grains subissent la poussée d'Archimède et se déplacent vers le haut de l'échantillon, qui est plus froid. Par conséquent, ils vont continuer de croître et seront ensuite incorporés dans la microstructure colonnaire de solidification. Cette flottaison des grains donne naissance à une structure de grain beaucoup plus compacte. La formation des plumes est aussi observée comme indiqué sur la Figure IV-32b. Lors de l'écoulement de ces plumes, il peut arriver que la plume emporte avec elle des grains vers le bas loin du front de solidification (Figure IV-33). Après passage de la plume, les grains entraînés vont flotter vers le haut jusqu'au front de solidification où ils seront incorporés. Ce mouvement fait partie de la dynamique de formation des grains et donc affecte la microstructure finale de solidification.

Figure IV-33 : Séries de radiographies montrant le transport d'un grain par une plume de soluté pour l'expérience réalisée à $\langle V \rangle = 13.3 \mu\text{m/s}$: (a) germination du grain ; (b) entraînement du grain par la plume de soluté ; (c) flottaison du grain après passage de la plume.



b) Structure de grains équiaxes allongés

Si on augmente la vitesse de solidification ($\langle V \rangle = 20.8 \mu\text{m/s}$), la structure est constituée d'un grand nombre de grains équiaxes allongés, c'est-à-dire avec un facteur d'allongement supérieur à 2 (Figure IV-32c). Cette structure se forme par germination de nouveaux grains devant le front de solidification. Après germination, les grains vont flotter vers le haut, continuer à croître et être incorporés dans la structure de solidification. Pour cette vitesse, nous observons encore la formation de plumes de soluté (Figure IV-32c).

c) Structure de grains équiaxes

Pour des vitesses de solidification encore plus élevées, le caractère équiaxe de la structure est de plus en plus marqué (Figure IV-32d, Figure IV-32e et Figure IV-32f) à cause de l'augmentation de l'intensité de la surfusion de constitution qui entraîne une augmentation du nombre de particules affinant actives. Les structures sont de plus en plus homogènes en taille et en morphologie, et se rapprochent d'une morphologie de type « globulaire » à très grande vitesse $\langle V \rangle = 190 \mu\text{m/s}$. Ces structures sont identiques aux structures obtenues en solidification horizontale et en solidification verticale vers le haut à grande vitesse de solidification.

Nous avons observé la formation des plumes de soluté pour les expériences avec une vitesse de solidification inférieure à $62.4 \mu\text{m/s}$, et les plumes sont de moins en moins développées en augmentant la vitesse de solidification. Pour les vitesses de solidification les plus élevées, nous n'avons plus observé la formation de plumes de soluté, probablement car la vitesse de solidification dépasse la vitesse caractéristique de l'écoulement du soluté.

IV.4.2 Effet des plumes sur la cinétique de croissance des dendrites

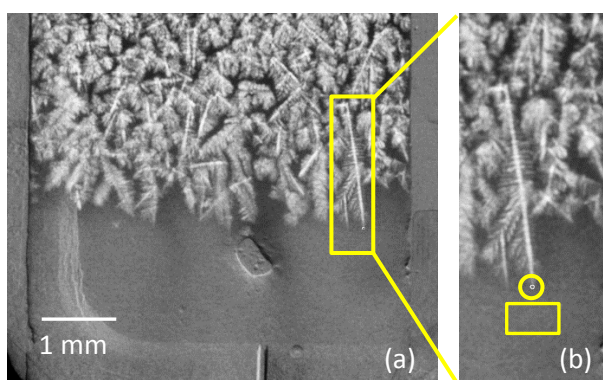
Le phénomène le plus remarquable des expériences de solidification verticale vers le bas est la formation des plumes riches en soluté. Ces plumes sont dues au rejet d'un soluté (cuivre) plus lourd que le solvant (aluminium), qui traverse la zone pâteuse si elle est suffisamment perméable (Nishimura et al, 2003) et s'écoule vers le bas. La formation de plumes n'est possible que lorsque la vitesse d'écoulement du soluté est plus grande que la vitesse de déplacement des isothermes (Fowler, 1985)(Jain, et al. 2007). Le mouvement et l'interaction de ces plumes avec les grains dendritiques modifient drastiquement les bilans locaux de concentration et de température et transportent les grains et/ou les fragments de dendrites dans la phase liquide. Ces mouvements sont à l'origine de ségrégations majeures dans les processus industriels (ex : canaux ségrégés et *freckles* (Copley et al. 1970)), et la compréhension de leur influence sur la formation de la microstructure de solidification est cruciale.

Pour étudier cet effet dans nos expériences, nous avons développé une « macro » dans le logiciel *ImageJ* qui permet de mesurer automatiquement :

- Les coordonnées de la position d'une pointe dendritique (cercle jaune Figure IV-34b). Connaissant la position de la pointe en fonction du temps, nous en déduisons sa vitesse de croissance.
- La variation du niveau de gris correspondant au liquide devant une pointe dendritique (cadre jaune Figure IV-34b) lors de sa croissance. Suite au traitement d'image par division appliqué aux images brutes pour supprimer l'image du détecteur et améliorer la lisibilité des images (cf. Chapitre II.3.4), la valeur 1 du niveau de gris correspond au liquide à la composition initiale (loin de l'interface), et les valeurs inférieures à 1 correspondent à du liquide sombre riche en cuivre.

La détermination de la valeur du niveau de gris au cours de la croissance permettra d'estimer de manière qualitative la variation de la concentration en cuivre devant la pointe dendritique. L'utilisation d'une source X polychromatique ne permet pas d'accéder simplement à la valeur exacte de la concentration sans effectuer au préalable un étalonnage à partir d'échantillon calibrés (*Becker et al. 2016*). Ce type d'étalonnage nécessite un contrôle très précis de l'épaisseur des échantillons, ce qui n'est pas le cas dans les expériences réalisées dans le cadre de cette thèse.

Figure IV-34 : Radiographies montrant : (a) une dendrite sélectionnée ; (b) un zoom sur la dendrite sélectionnée avec indiqués la position de la pointe (cercle jaune) et la zone de mesure de niveau du gris (cadre jaune) devant la pointe dendritique.



Pour la vitesse de solidification très basse $\langle V \rangle = 6.4 \mu\text{m/s}$, malgré la formation de plumes très intenses, ces mesures ne sont pas possibles car les bras des dendrites colonnaires obtenues ne croissent pas parallèlement à la direction du gradient de température (Figure IV-32a) ce qui rend difficile le suivi de la pointe par l'algorithme.

Des mesures de vitesse de croissance et de niveau de gris du liquide devant les pointes dendritiques ont pu être réalisées avec succès pour deux expériences dans lesquelles nous observons le passage de plumes de soluté devant des grains dendritiques allongés bien orientés dans le sens du gradient de température (cadres jaunes dans les Figure IV-35 et Figure IV-36).

La Figure IV-35 montre pour l'expérience réalisée avec un gradient de température $\langle G \rangle = 7.4 \text{ K/mm}$ et une vitesse de solidification $\langle V \rangle = 13.3 \text{ } \mu\text{m/s}$ les informations suivantes :

- Les images de la dendrite sur laquelle les mesures ont été effectuées (Figure IV-35a)
- La variation du niveau de gris devant la pointe en fonction du temps (l'origine des temps est choisi de manière arbitraire). Les minimums indiqués correspondant aux passages de plumes avec un enrichissement en cuivre du liquide (Figure IV-35b)
- La variation de la vitesse de la pointe de la dendrite (Figure IV-35c)

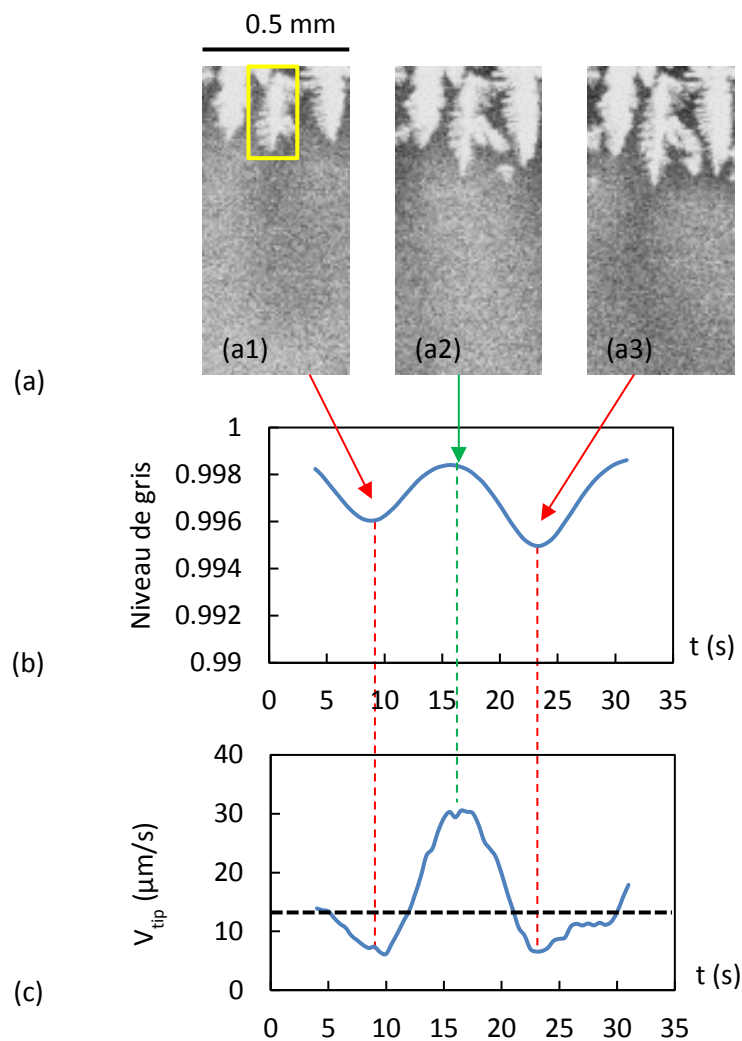


Figure IV-35 : Variation du niveau de gris devant une pointe dendritique et variation de sa vitesse de croissance pour la vitesse de solidification $\langle V \rangle = 13.3 \text{ } \mu\text{m/s}$ (l'origine des temps est arbitraire).

La comparaison des graphes met en évidence une forte corrélation entre les fluctuations du niveau de gris devant la pointe et les fluctuations de la vitesse de la pointe, cette dernière oscillant autour la vitesse moyenne du front de germination (trait pointillé horizontal noir). Les minimums de niveau de gris correspondent au passage des plumes (espacés de 12 s) riches

en cuivre (zones sombres) comme il est visible dans les Figure IV-35a1 et Figure IV-35a3. Ces minimums de niveaux de gris sont aussi associés aux minimums de vitesse de la pointe (lignes en pointillés rouges).

En effet, l'enrichissement du liquide et la diminution du gradient de concentration induits par le passage d'une plume devant la pointe retarde la solidification et entraîne le ralentissement de la croissance de la dendrite. A l'inverse (Figure IV-35a2), un appauvrissement en soluté devant la pointe (maximum du niveau de gris) entraîne une accélération de la croissance de la dendrite (maximum de la vitesse de pointe, ligne en pointillé verte).

La Figure IV-36 montre les mêmes analyses pour une seconde dendrite de la même expérience $\langle V \rangle = 13.3 \mu\text{m/s}$ (Figure IV-36a) et dans le cas d'une seconde expérience effectuée avec le même gradient de température $\langle G \rangle = 7.4 \text{ K/mm}$ et une vitesse de solidification plus élevée $\langle V \rangle = 20.8 \mu\text{m/s}$ (Figure IV-36b).

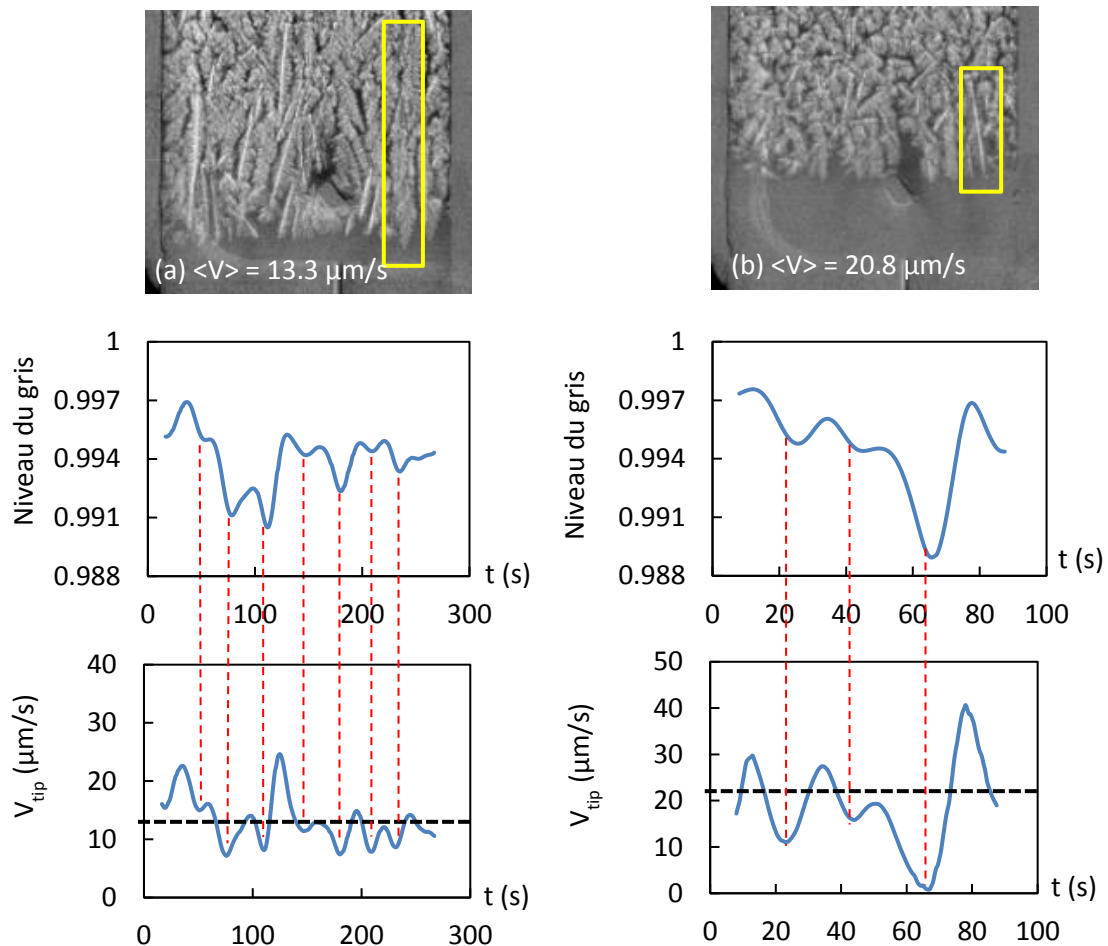


Figure IV-36 : Variation du niveau de gris devant une pointe dendritique encadrée en jaune et sa vitesse de croissance ; (a) pour la vitesse de solidification $\langle V \rangle = 13.3 \mu\text{m/s}$ et (b) pour la vitesse de solidification $\langle V \rangle = 20.8 \mu\text{m/s}$

Ces analyses supplémentaires confirment la généralité des conclusions tirées de l'expérience précédente. Le nombre de fluctuations observées est plus grand car les dendrites se sont développées sur de plus grandes distances sans être bloquées par d'autres grains, et ont donc pu être mesurées plus longtemps. L'intervalle de temps entre deux passages de plumes est de l'ordre de 30 s pour la dendrite étudiée Figure IV-36a et de 20 s pour celle de la Figure IV-36b.

L'influence du passage des plumes sur la cinétique de croissance des dendrites que nous observons a également été observé par N. Shevchenko et al. (*Shevchenko et al. 2015*), dans le cas des alliages Ga-In. Les auteurs présentent dans la Fig.6d de leur article (Figure IV-37) les oscillations de la vitesse des pointes de dendrites au cours de leur expériences. Ces oscillations ont aussi été associées aux variations de composition devant les dendrites à cause du déplacement des plumes de soluté.

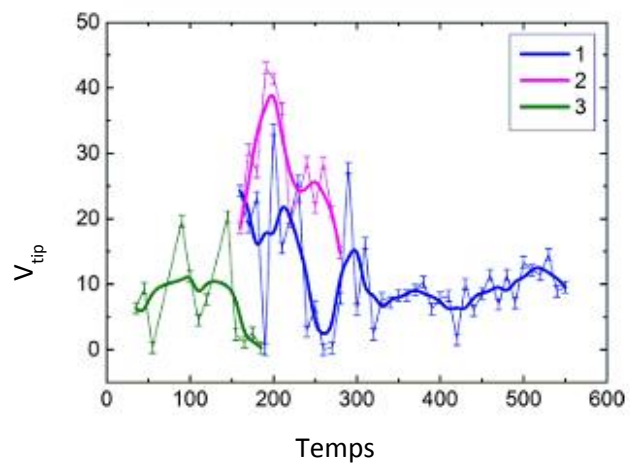


Figure IV-37 : Évolution de la vitesse de trois dendrites (*Shevchenko et al. 2015*)

IV.4.3 Effet de la convection thermosolutale sur la structure de grains

La convection thermosolutale est le mouvement du liquide dû à la variation de la masse volumique dans le bain fondu avec la variation de la température et de la composition. Ce mouvement affecte la dynamique de formation des microstructures lors de la solidification. Par exemple, H. Nguyen-Thi et al. ont étudié la déformation macroscopique du front de solidification cellulaire lors de la solidification vers le haut d'alliages Pb – 30 %pds TI (*Nguyen Thi, et al. 1989*). Dans le cas de la solidification vers le haut d'alliages à base aluminium, une étude comparative entre des expériences en microgravité et sur Terre a été effectuée par B. Drevet et al. (*Drevet et al. 1995*). Cette étude a montré l'impact de la convection thermosolutale sur l'espacement primaire des structures cellulaires d'Al –3.5 %pds Li ainsi que sur la macroségrégation longitudinale.

Dans nos expériences, pour étudier l'effet de la convection thermosolutale sur la structure de grains, nous avons fait une étude comparative entre deux expériences réalisées avec des paramètres de solidification proches mais avec deux configurations de solidification différentes.

- La première est la configuration de solidification horizontale, donc avec un régime quasi-diffusif. Cette dernière est l'expérience de référence pour faire nos comparaisons. La Figure IV-38a illustre la formation de la structure des grains pour cette expérience de solidification réalisée avec les paramètres $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$ et $G_{\text{moy}} = 6.9 \text{ K/mm}$,
- La seconde configuration est la solidification verticale vers le bas qui est une configuration thermo-solutalement instable. La Figure IV-38b montre la formation de la structure de grains pour cette expérience de solidification réalisée avec les paramètres de contrôle $\langle V \rangle = 21.4 \mu\text{m/s}$ et $G_{\text{moy}} = 7 \text{ K/mm}$.

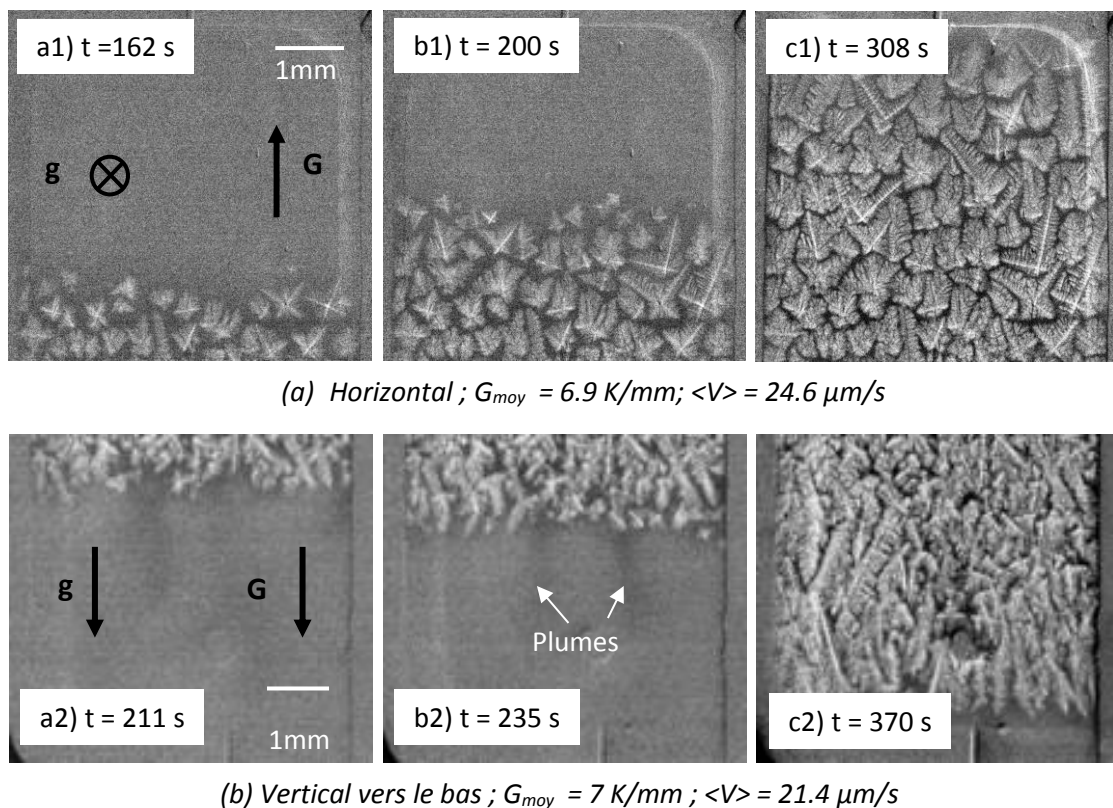


Figure IV-38 : Séries des radiographies montrant la microstructure de solidification de l'alliage Al-20%Cu affiné pour deux expériences réalisées avec des paramètres de contrôles proches mais avec deux configurations de solidification différentes selon la direction de la gravité ; (a) solidification horizontale avec $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$ et $G_{\text{moy}} = 6.9 \text{ K/mm}$; (b) solidification verticale vers le bas avec $\langle V \rangle = 21.4 \mu\text{m/s}$ et $G_{\text{moy}} = 7 \text{ K/mm}$

Qualitativement, les deux structures de grain formées sont très différentes : la structure est plus compacte avec des grains plus fins et plus allongés dans les cas des expériences verticale vers le bas. Les mesures quantitatives de la taille des grains ainsi que de leur morphologie font l'objet des parties suivantes.

a) Taille de grains

La Figure IV-39 montre les cartographies et les histogrammes de distribution des tailles des grains pour les deux expériences : en position horizontale pour la Figure IV-39a et position verticale vers le bas pour la Figure IV-39b.

D'après les cartographies, nous pouvons voir qu'en solidification horizontale (Figure IV-39a) les grains sont en moyenne de plus grande taille et avec une distribution plus uniforme que dans le cas de la solidification verticale vers le bas (Figure IV-39b). Cette observation est confirmée par l'histogramme de distribution en taille des grains (Figure IV-39a), qui est de type gaussien dans le premier cas, avec une valeur moyenne de diamètre équivalent de 510 μm , et de type log-normale dans le second cas, avec un maximum autour de 250 μm (Figure IV-39b).

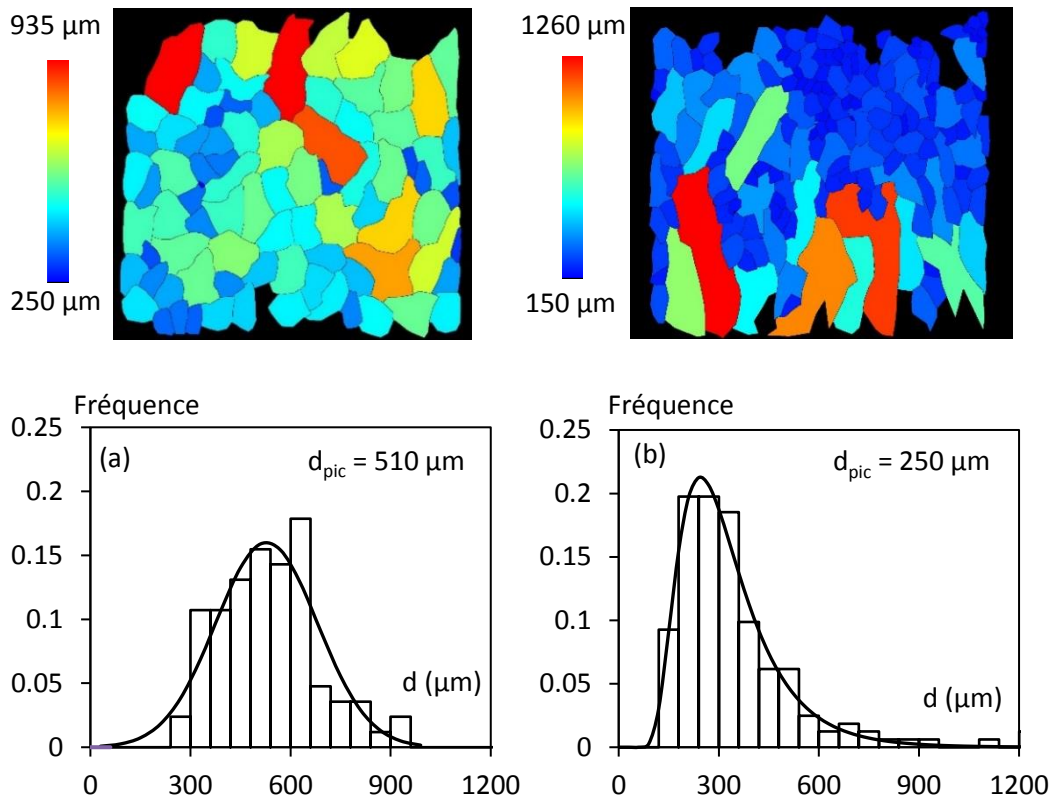
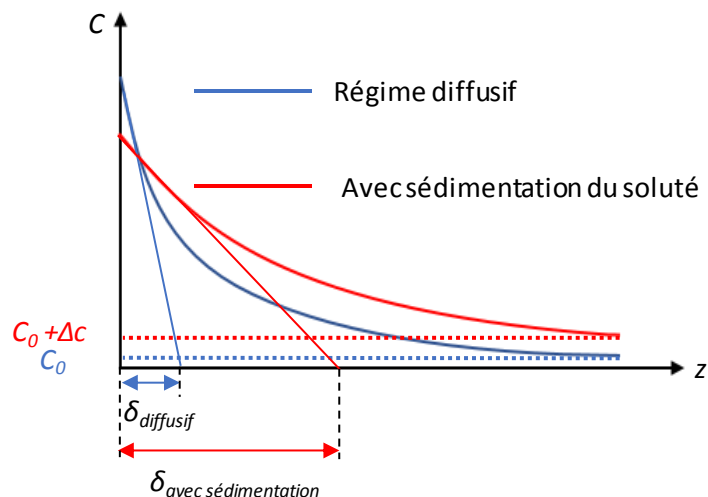


Figure IV-39 : Cartographies de surface et histogrammes de la distribution en taille des deux expériences réalisées à deux configurations différentes avec des paramètres de solidification très proches (a) solidification en horizontale $G_{\text{moy}} = 6.9 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24.6 \mu\text{m/s}$; (b) solidification en verticale vers le bas $G_{\text{moy}} = 7 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 21.4 \mu\text{m/s}$. Les traits rouges superposé aux histogrammes correspondent à l'ajustement par une loi gaussienne pour la configuration horizontale et une loi log-normale pour la configuration verticale vers le bas.

L'explication de la distribution log-normale de l'histogramme des tailles lors de la solidification verticale vers le bas n'est pas clairement établie. La cartographie de taille (Figure IV-39b) montre clairement que les petits grains (en bleu) sont plutôt localisés dans la partie supérieure droite de la radiographie, ce qui correspond au début de la solidification. Les gros grains, de l'ordre du millimètre, sont eux surtout dans la moitié basse de la Figure IV-39b, donc en fin de solidification. La forme asymétrique (de type log-normale) de la distribution en taille des grains est donc associée probablement à une variation progressive des conditions de croissances.

Une première cause possible est la modification de la couche solutale devant le front due à la gravité (Bogno et al. 2013)(Nguyen-Thi et al. 2006). Au début de la solidification, l'intensité de la zone surfondue est suffisante pour activer beaucoup de particules affinant, ce qui provoque la germination de nombreux petits grains. Au cours de la croissance, le rejet de soluté plus dense que le solvant induit un étirement de la couche solutale vers le bas, ce qui augmente la longueur solutale vers le bas et diminue le gradient de concentration (Figure IV-40, trait rouge). C'est ce mécanisme qui explique la différence de vitesse de croissance entre les bras primaires d'un grain dendritique (Bogno et al. 2013)(Nguyen-Thi et al. 2006) . Dans notre cas, la réduction progressive de l'intensité de la surfusion induit une diminution du nombre de germinations devant la microstructure et favorise donc la croissance colonnaire.

Figure IV-40 : Schéma montrant le profil de concentration dans le cas de régime diffusif et dans le cas de la sédimentation du soluté



Une seconde explication possible de la variation progressive des conditions de croissance au cours de la solidification est liée à l'existence des plumes qui s'écoulent devant le front de solidification. En effet, les plumes correspondent à des zones de liquide allongées vers le bas très riches en soluté et relativement uniforme en concentration comme montre la Figure IV-41b qui donne la variation de niveau de gris dans une plume. La présence de ces plumes devant le front empêche la germination de nouveaux grains dans ces zones de fortes concentrations.

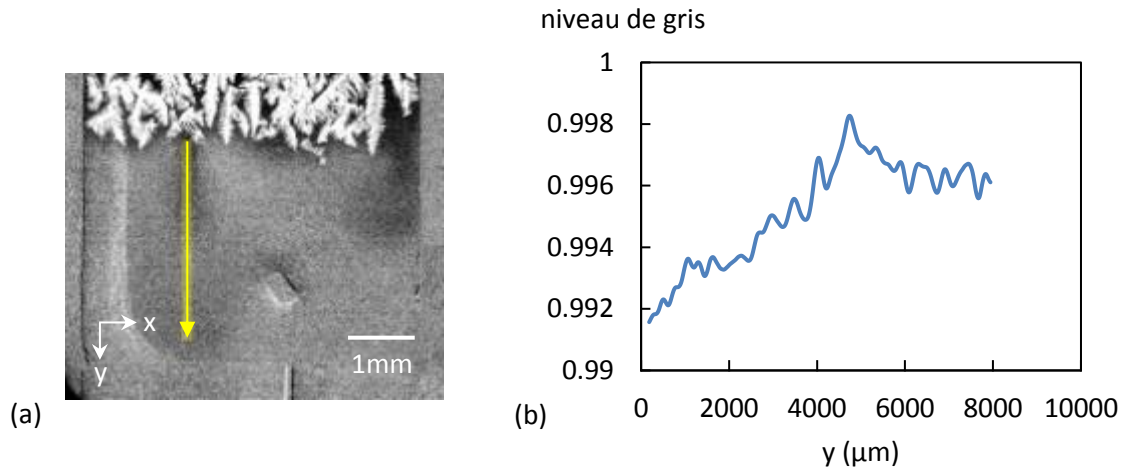


Figure IV-41 : Figure montrant la variation du niveau de gris dans une plume

De plus, les mouvements convectifs induits par les déplacements vers le bas et latéraux des plumes de soluté peut également « emporter » une partie des particules affinantes et donc changer leur distribution spatiale, ce qui peut affecter significativement la structure de grain en la rendant plus hétérogène comme montré par M. Bedel et al. (Bedel, 2014) (Bedel et al. 2015).

b) Allongement des grains

La Figure IV-42 montre la distribution de l'allongement de grains ($\phi = L_1/L_2$) pour les deux expériences réalisées en configuration horizontale (Figure IV-42a) et en configuration verticale vers le bas (Figure IV-42b).

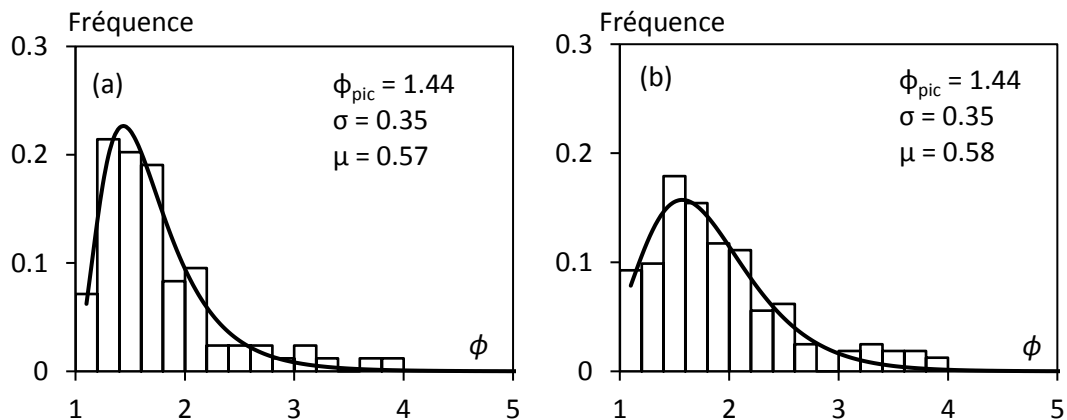


Figure IV-42 : Histogrammes montrant la distribution de l'allongement de grains pour les deux expériences réalisées avec deux configurations différentes et des paramètres de solidification très proches (a) solidification horizontale $G_{moy} = 6.9 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24.6 \text{ } \mu\text{m/s}$; (b) solidification verticale vers le bas $G_{moy} = 7 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 21.4 \text{ } \mu\text{m/s}$. Les traits pleins correspondent à l'ajustement par une loi log-normale.

Les deux expériences donnent des histogrammes très semblables, avec une majorité de grains équiaxes ($\phi < 2$) au sens de J. D. Hunt (*Hunt, 1984*). Cependant, il y a plus de grains colonnaires ($\phi > 2$) dans l'expérience verticale vers le bas (41 grains) que dans l'expérience horizontale (15 grains), ce qui est plus visible dans la cartographie de surface des grains (Figure IV-39b). Ces grains colonnaires sont dans la partie basse du champ de vue, où la germination des grains a diminué et les grains colonnaires continuent de croître plus longtemps.

c) Orientation des grains

Nous avons aussi déterminé les histogrammes de distribution de l'angle d'orientation des grains. La Figure IV-43a montre l'historgramme de distribution des angles pour l'expérience en horizontale, et la Figure IV-43b pour l'expérience de solidification verticale vers le bas. Les distributions pour les deux expériences montrent des maximums proches de 0° , correspondant au sens du gradient de température, ce qui était attendu pour ce fort gradient de température. Il semblerait donc que la convection thermosolutale n'a pas d'effet notable sur l'orientation de grains, qui est essentiellement contrôlée par les conditions de croissance (gradient de température et vitesse de solidification).

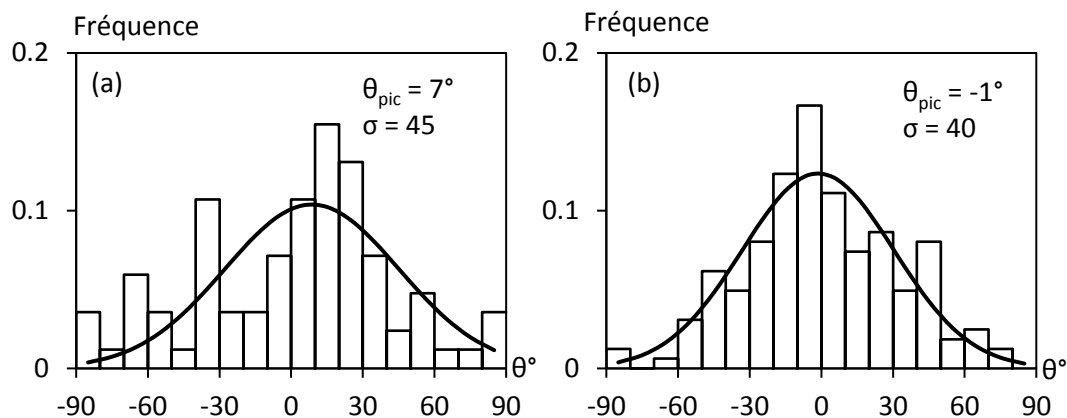


Figure IV-43 : Histogrammes montrant la distribution de l'orientation des grains pour les deux expériences réalisées à deux configurations différentes avec des paramètres de solidification très proches (a) solidification en horizontale $G_{moy} = 6.9 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 24.6 \text{ } \mu\text{m/s}$; (b) solidification en verticale vers le bas $G_{moy} = 7 \text{ K/mm}$ et $\langle V \rangle = 21.4 \text{ } \mu\text{m/s}$. Les traits pleins correspondent à l'ajustement par une loi gaussienne.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la solidification de l'alliage Al-20% pdsCu affiné avec le four en position verticale. Pour cette position il y a deux configurations de solidification possibles :

La première configuration étudiée est la solidification verticale vers le haut avec le gradient de température antiparallèle au vecteur gravité. Cette configuration est thermodynamiquement stable car le liquide chaud est au-dessus du solide et du liquide froid. Durant ces expériences, les grains qui se forment sont soumis à la poussée d'Archimède qui induit leur déplacement vers le haut. Lors de ce mouvement, les grains vont soit (i) croître rapidement et être bloqués dans l'épaisseur de l'échantillon et poursuivre leur croissance, soit (ii) être bloqués par d'autres grains et continuer à croître, soit (iii) fondre dans la partie chaude qui est le cas le plus fréquent.

Ces trois comportements affectent significativement la dynamique de formation des microstructures et donc la structure finale de solidification. Pour ces expériences nous avons obtenu les résultats suivants :

- La vitesse de flottaison de grains (autour de $100\text{ }\mu\text{m/s}$ pour l'alliage étudié) semble indépendante des paramètres de solidification.
- La flottaison des grains augmente la taille des grains de la structure finale à faible vitesse de solidification. En effet, seuls les grains qui ont germés et ont été bloqués dans l'épaisseur de l'échantillon vont pouvoir poursuivre leur croissance pour donner la microstructure finale de solidification. Les autres vont flotter et refondre dans la partie chaude de l'échantillon. Cependant la morphologie des grains de la structure finale est semblable à celle des grains solidifiés en configuration horizontale pour la gamme de paramètres étudiés.
- La flottaison des grains n'a quasiment pas d'effets à des grandes vitesses de solidification quand la vitesse de solidification dépasse la vitesse de flottaison.
- Pour les plus grandes vitesses de solidification, les grains se déplacent vers le bas après une courte période de flottaison. Une première réflexion suggère que ce phénomène est dû au changement de densité de l'alliage lors de sa transformation de l'état liquide vers l'état solide. Il sera donc intéressant de l'étudier et de le quantifier pour identifier avec précision son origine.
- Les mêmes effets du gradient de température montrés dans le chapitre III en solidification horizontale ont été observés en solidification verticale vers le haut : moins de liquide inter-dendritique et diminution de la taille des grains quand le gradient de température augmente.

La deuxième configuration est la solidification verticale vers le bas, parallèle au vecteur gravité. Cette configuration est thermo-solutalement instable et la formation de plumes riches en cuivre dû au rejet de soluté lors de la croissance ont été clairement observées. Dans cette partie nous avons mis en évidence que :

- Les plumes ralentissent la croissance lorsqu'elles passent devant la pointe des dendrites car elles modifient la couche solutale devant la microstructure.
- La présence de convection thermosolutale affecte drastiquement les microstructures en les rendant plus fines et plus allongées.
- La convection thermosolutale n'affecte pas l'orientation moyenne des grains qui est semblable à celle obtenues en configuration horizontale pour la gamme de paramètres étudiés.
- Il est important de souligné que beaucoup d'autres phénomènes ont été observés et n'ont pas encore été analysés, par exemple la mesure de la vitesse de l'écoulement de soluté qui peut expliquer le changement de la composition moyenne des plumes avec la vitesse de solidification et aussi la germination de plusieurs grains à une même position, ce qui suggère que la présence d'agglomérats de particules affinantes.

L'ensemble de ces effets ont été mis en évidence grâce à la comparaison des expériences faites en configuration verticale avec des expériences de référence faites en configuration horizontale, donc en régime quasi-diffusif. Il serait intéressant de faire ces comparaisons avec des expériences réalisées en régime purement diffusif, ce qui est seulement possible en microgravité. Dans le cadre du projet XRMON MAP (*X-Ray MONitoring of advanced metallurgical processes under terrestrial and under microgravity conditions*) et à la suite de l'expérience en fusée-sonde MASER-12, une expérience en fusée-sonde MASER-14 a été réalisée en juin 2019 dans le but d'étudier la transition colonnaire-équiaxe (CET) en microgravité. J'ai eu l'occasion de participer à la préparation de cette expérience dont l'analyse permettra d'obtenir des données de référence pour les comparer avec les études que j'ai faites au sol, et d'étudier ainsi l'effet de la gravité sur la CET.

Références

- Abou-Khalil, L., G. Salloum-Abou-Jaoude, G. Reinhart, C. Pickmann, G. Zimmermann, and H. Nguyen-Thi. 2016. "Influence of Gravity Level on Columnar-to-Equiaxed Transition during Directional Solidification of Al – 20 Wt.% Cu Alloys." *Acta Materialia* 110: 44–52. doi:10.1016/j.actamat.2016.03.007.
- Abou-khalil, Lara. 2017. "Study of the Influence of External Fields on Solidification Microstructures Formation by X-Ray Radiography."
- Auburtin, P., S.L. Cockcroft, and A. Mitchell. 1996. "Liquid Density Inversions During the Solidification of Superalloys and Their Relationship to Freckle Formation in Castings," 443–50. doi:10.7449/1996/superalloys_1996_443_450.
- Auburtin, P, S L Cockcroft, A Mitchell, and T Wang. 2000. "Freckel Formation in Superalloys." *Materials Science* 9.
- Aveson, J. W., G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, B. Billia, K. Goodwin, et al. 2012. "Dendrite Bending during Directional Solidification." *Superalloys 2012*, 615–24. doi:10.1002/9781118516430.ch69.
- Becker, M., S. Klein, and F. Kargl. 2016. "In-Situ Solute Measurements with a Laboratory Polychromatic Microfocus X-Ray Source during Equiaxed Solidification of an Al-Ge Alloy." *Scripta Materialia* 124. Elsevier B.V.: 34–37. doi:10.1016/j.scriptamat.2016.06.032.
- Bedel, M., K. O. Tveito, M. Založnik, H. Combeau, and M. M'Hamdi. 2015. "A Model Study of the Impact of the Transport of Inoculant Particles on Microstructure Formation during Solidification." *Computational Materials Science* 102: 95–109. doi:10.1016/j.commatsci.2015.01.028.
- Bedel, Marie. 2014. "Étude De La Formation Des Structures De Solidification Et Des Macroségrégations En Coulée Semi-Continue D'Aluminium." doi:10.1017/CBO9781107415324.004.
- Billia, B., H. Jamgotchian, and H. Nguyen Thi. 1991. "Statistical Analysis of the Disorder of Two-Dimensional Cellular Arrays in Directional Solidification." *Metallurgical Transactions A* 22 (12): 3041–50. doi:10.1007/BF02650265.
- Boden, S., S. Eckert, and G. Gerbeth. 2010. "Visualization of Freckle Formation Induced by Forced Melt Convection in Solidifying Galn Alloys." *Materials Letters* 64 (12). Elsevier B.V.: 1340–43. doi:10.1016/j.matlet.2010.03.044.
- Bogno, A., H. Nguyen-Thi, A. Buffet, G. Reinhart, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, and T. Schenk. 2011. "Analysis by Synchrotron X-Ray Radiography of Convection Effects on the Dynamic Evolution of the Solid-Liquid Interface and on Solute Distribution during the Initial Transient of Solidification." *Acta Materialia* 59 (11): 4356–65. doi:10.1016/j.actamat.2011.03.059.
- Bogno, A., H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, B. Billia, and J. Baruchel. 2013. "Growth and Interaction of Dendritic Equiaxed Grains: In Situ Characterization by Synchrotron X-Ray Radiography." *Acta Materialia* 61 (4). Acta Materialia Inc.: 1303–15. doi:10.1016/j.actamat.2012.11.008.

- Burden, M. H., D. J. Hebditch, and J. D. Hunt. 1973. "Macroscopic Stability of a Planar, Cellular or Dendritic Interface during Directional Freezing." *Journal of Crystal Growth* 20 (2): 121–24. doi:10.1016/0022-0248(73)90125-5.
- Copley, S. M., A. F. Giamei, S. M. Johnson, and M. F. Hornbecker. 1970. "The Origin of Freckles in Unidirectionally Solidified Castings." *Metallurgical Transactions* 1 (8): 2193–2204. doi:10.1007/BF02643435.
- Coutanceau, Madeleine. 1987. "[Coutanceau]Confined Creeping Flow around an Axisymmetric Body.Pdf" 2: 153–74.
- Drevet, B., D. Camel, C. Malmejac, J. J. Favier, H. Nguyen Thi, Q. Li, and B. Billia. 1995. "Cellular and Dendritic Solidification of ALi Alloys during the D2-Mission." *Advances in Space Research* 16 (7): 173–76. doi:10.1016/0273-1177(95)00154-7.
- Drevet, B, H Nguyen Thi, D Camel, B Billia, and M D Dupouy. 2000. "Solidification of Aluminium-Lithium Alloys near the Cellular / Dendrite Transition-influence of Solutal Convection" 218: 419–33.
- Dupouy, M. D., D. Camel, and J. J. Favier. 1989. "Natural Convection in Directional Dendritic Solidification of Metallic Alloys-I. Macroscopic Effects." *Acta Metallurgica* 37 (4): 1143–57. doi:10.1016/0001-6160(89)90110-7.
- Dupouy, M. D., B. Drevet, and D. Camel. 1997. "Influence of Convection on the Selection of Solidification Microstructures at Low Growth Rates." *Journal of Crystal Growth* 181 (1–2): 145–59. doi:10.1016/S0022-0248(97)00191-7.
- Faxen, H. 1992. "The Resistance against the Movement of a Rigid Sphere in Viscous Fluids, Which Is Embedded between Two Parallel Layered Barrier." *Ann.Phys.-Berlin* 373: 89–119.
- Fowler, A. C. 1985. "The Formation of Freckles in Binary Alloys." *IMA Journal of Applied Mathematics (Institute of Mathematics and Its Applications)* 35 (2): 159–74. doi:10.1093/imamat/35.2.159.
- Ganesan, S., and David R. Poirier. 1987. "Densities of Aluminum-Rich Aluminium-Copper Alloys during Solidification." *Metallurgical Transactions A* 18 (5): 721–23. doi:10.1007/BF02649490.
- Hellawell, A., J. R. Sarazin, and R. S. Steube. 1993. "Channel Convection in Partly Solidified Systems." *Philosophical Transactions - Royal Society of London, A* 345 (1677): 507–44. doi:10.1098/rsta.1993.0143.
- Hunt, J. D. 1984a. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. doi:10.1016/0025-5416(84)90201-5.
- . 1984b. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. doi:10.1016/0025-5416(84)90201-5.
- Jain, Jayesh, Arvind Kumar, and Pradip Dutta. 2007. "Role of Plume Convection and Remelting on the Mushy Layer Structure during Directional Solidification." *Journal of Physics D: Applied Physics* 40 (4): 1150–60. doi:10.1088/0022-3727/40/4/037.
- Murakami, K., T. Fujiyama, A. Koike, and T. Okamoto. 1983. "Influence of Melt Flow on the Growth Directions of Columnar Grains and Columnar Dendrites." *Acta Metallurgica* 31 (9): 1425–32. doi:10.1016/0001-6160(83)90012-3.

- Nguyen-Thi, H., A. Bogno, G. Reinhart, B. Billia, R. H. Mathiesen, G. Zimmermann, Y. Houltz, et al. 2011. "Investigation of Gravity Effects on Solidification of Binary Alloys with in Situ X-Ray Radiography on Earth and in Microgravity Environment." *Journal of Physics: Conference Series* 327 (1). doi:10.1088/1742-6596/327/1/012012.
- Nguyen-Thi, H., Y. Dabo, B. Drevet, M. D. Dupouy, D. Camel, B. Billia, J. D. Hunt, and A. Chilton. 2005. "Directional Solidification of Al-1.5 Wt% Ni Alloys under Diffusion Transport in Space and Fluid-Flow Localisation on Earth." *Journal of Crystal Growth* 281 (2–4): 654–68. doi:10.1016/j.jcrysgro.2005.04.061.
- Nguyen-Thi, H., G. Reinhart, B. Zhou, B. Billia, Q. Liu, T. P. Lyubimova, and B. Roux. 2005. "Tailoring of Dendritic Microstructure in Solidification Processing by Crucible Vibration." *Journal of Crystal Growth* 275 (1–2): 1579–84. doi:10.1016/j.jcrysgro.2004.11.223.
- Nguyen-Thi, H., J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, V. Cristiglio, B. Billia, B. Grushko, J. Härtwig, H. Klein, and J. Baruchel. 2006. "In Situ and Real-Time Probing of Quasicrystal Solidification Dynamics by Synchrotron Imaging." *PHYSICAL REVIEW E* 74: 1–6. doi:10.1103/PhysRevE.74.031605.
- Nguyen Thi, H., B. Billia, and L. Capella. 1990. "Cellular Arrays during Upward Solidification of Pb-30 Wt% Tl Alloys." *Journal de Physique* 51 (7): 625–37. doi:10.1051/jphys:01990005107062500.
- Nguyen Thi, H., B. Billia, and H. Jamgotchian. 1989. "Influence of Thermosolutal Convection on the Solidification Front during Upwards Solidification." *Journal of Fluid Mechanics* 204: 581–97. doi:10.1017/S0022112089001904.
- Nguyen thi, H., B. Billia, and H. Jamgotchian. 1989. "Influence of Thermosolutal Convection on the Solidification Front during Upwards Solidification." *Journal of Fluid Mechanics* 204: 581–97. doi:10.1017/S0022112089001904.
- Nishimura, T., J. Sasaki, and T. T. Htoo. 2003. "The Structure of Plumes Generated in the Unidirectional Solidification Process for a Binary System." *International Journal of Heat and Mass Transfer* 46 (23): 4489–97. doi:10.1016/S0017-9310(03)00276-X.
- Okamoto, T., K. Kishitake, and I. Bessho. 1975. "Dendritic Structure in Unidirectionally Solidified Cyclohexanol." *Journal of Crystal Growth*. doi:10.1016/0022-0248(75)90216-X.
- Reinhart, G., A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Härtwig, and J. Baruchel. 2008. "In-Situ and Real-Time Analysis of the Formation of Strains and Microstructure Defects during Solidification of Al-3.5 Wt Pct Ni Alloys." *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science* 39 A (4): 865–74. doi:10.1007/s11661-007-9449-2.
- Reinhart, G., H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, J. Baruchel, and B. Billia. 2014. "In Situ Investigation of Dendrite Deformation during Upward Solidification of Al-7wt.%Si." *Jom* 66 (8): 1408–14. doi:10.1007/s11837-014-1030-z.
- Salloum-Abou-Jaoude, G., H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, R. H. Mathiesen, G. Zimmermann, and D. Voss. 2014. "Characterization of Motion of Dendrite Fragment by X-Ray Radiography on Earth and under Microgravity Environment." *6th International Conference on Solidification and Gravity* 790–791: 311–16. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.790-791.311.

- Salloum-Abou-Jaoude, Georges, Henri Nguyen-Thi, Guillaume Reinhart, Ragnvald H. Mathiesen, Gerhard Zimmermann, and Daniela Voss. 2014. "Characterization of Motion of Dendrite Fragment by X-Ray Radiography on Earth and under Microgravity Environment." *Materials Science Forum* 790–791 (MAY 2014): 311–16. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.790-791.311.
- Shevchenko, N., O. Roshchupkina, O. Sokolova, and S. Eckert. 2015. "The Effect of Natural and Forced Melt Convection on Dendritic Solidification in Ga-In Alloys." *Journal of Crystal Growth* 417. Elsevier: 1–8. doi:10.1016/j.jcrysgro.2014.11.043.
- Soltani, H, G Reinhart, M C Benoudia, M Zahzouh, and H Nguyen-Thi. 2019. "Impact of Gravity-Related Phenomena on the Grain Structure Formation: Comparative Study between Horizontal and Vertical Solidification of a Refined Al-20wt.%Cu Alloy." *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 529: 012019. doi:10.1088/1757-899X/529/1/012019.
- Spittle, J. A. 2006. "Columnar to Equiaxed Grain Transition in as Solidified Alloys." *International Materials Reviews* 51 (4): 247–69. doi:10.1179/174328006X102493.
- Zakheim, R., P. D. Weidman, and H. C. de Groh. 1992. "On the Drag of Model Dendrite." *Metallurgical Transactions A* 23 (8): 2169–81. doi:10.1007/bf02646010.
- Zimmermann, G., C. Pickmann, M. Hamacher, E. Schaberger-Zimmermann, H. Neumann-Heyme, K. Eckert, and S. Eckert. 2017. "Fragmentation-Driven Grain Refinement in Directional Solidification of AlCu10wt-% Alloy at Low Pulling Speeds." *Acta Materialia* 126: 236–50. doi:10.1016/j.actamat.2016.12.063.

Conclusion générale

Ce travail de thèse porte sur l'analyse par radiographie X du développement de grains dendritiques dans un gradient de température. La radiographie X est une méthode d'observation qui permet d'accéder à la dynamique de formation des microstructures de manière *in situ* et en temps réel. Elle permet de mettre en évidence des phénomènes dynamiques qui ont lieu pendant la formation des microstructures et qui ne peuvent pas être révélés par des méthodes post-mortem (Henri Nguyen-Thi et al. 2012). Les expériences de solidification dirigée sur l'alliage Al-20%pdsCu affiné avec 0.1%pds Al-Ti-B présentées dans cette thèse ont été réalisées avec le dispositif de laboratoire SFINX (*Solidification Furnace with IN situ X radiography*) de l'équipe « Microstructures de Croissance Auto-organisées » (MCA) au laboratoire IM2NP à Marseille, France (Soltani et al. 2019). Dans ces expériences, la solidification est provoquée par le refroidissement contrôlé et simultané des deux éléments chauffants (« *power down* » en anglais). Cette méthode permet de contrôler la vitesse de refroidissement R et de garder constant le gradient de température G . Le contrôle indépendant de ces deux paramètres nous a permis d'analyser leur influence sur la formation des microstructures dans des conditions quasi-diffusives et en régime convecto-diffusif.

Le régime quasi-diffusif est obtenu en configuration horizontale, avec la surface principale de l'échantillon mince perpendiculaire au vecteur gravité. Les expériences avaient pour objectif d'analyser indépendamment l'effet de la vitesse de solidification V et du gradient de température G sur la formation des microstructures de solidification. À partir de ces expériences, nous avons montré que l'augmentation de la vitesse de solidification pour un gradient de température fixe donne une structure plus homogène, avec des grains plus petits et plus équiaxes, et avec une orientation moyenne plus aléatoire (Chapitre III) (Soltani et al. 2020). La diminution de la taille des grains est une conséquence directe de l'augmentation de l'intensité de la surfusion de constitution avec la vitesse de solidification, ce qui provoque l'activation d'un plus grand nombre de particules affinantes présentes dans l'alliage affiné (Greer et al. 2003). La germination d'un nombre important de grains augmente l'interaction entre grains voisins et réduit la phase de croissance des grains. Ceci explique la diminution de l'effet du gradient de température et leur morphologie plus équiaxe à grande vitesse de refroidissement.

Dans un second volet du Chapitre III, nous avons montré que l'augmentation du gradient de température à vitesse de solidification fixe entraîne une diminution de la quantité du liquide inter-dendritique formé lors de la solidification, et ce quelle que soit la gamme de vitesse de solidification. L'origine de ce phénomène est la réduction de la longueur de la couche solutale par suite de l'augmentation du gradient de température, qui entraîne une germination des grains plus proche. Par ailleurs, les expériences montrent que le gradient de température a deux effets antagonistes sur la structure des grains selon la gamme de la vitesse de solidification : (i) à faibles vitesses de solidification, l'augmentation du gradient de température fait diminuer le nombre des grains et par conséquent augmenter leur taille (de l'ordre de millimètre). La structure de grain tend vers une structure colonnaire ou très allongée, avec une orientation privilégiée suivant le sens du gradient de température. (ii) à grandes vitesses de solidification, l'augmentation du gradient de température induit des effets opposés sur la structure de grains qui voit sa densité augmentée et par conséquent la taille moyenne diminuée. Ces grains sont de type équiaxe au sens de J. D. Hunt (*Hunt, 1984*) mais légèrement allongés à cause de la présence du gradient de température. Ces effets différents du gradient de température suivant la gamme de vitesse de solidification ont été expliqués en prenant en compte non seulement la variation de l'intensité de la zone surfondue mais aussi par la variation de la longueur de la zone surfondue. Cette longueur, qui est plus sensible à la variation du gradient de température qu'à la variation de la vitesse de solidification, diminue significativement avec l'augmentation du gradient de température ce qui entraîne une diminution de la distance de germination et par conséquent la diminution de la taille des grains.

Dans les processus industriels avec des lingots massifs, la convection dans le bain fondu est inévitable (*Bedel et al. 2015*). Le transport de matière dans le bain fondu est alors dominé par les mouvements du fluide, qui trouvent leur origine dans les hétérogénéités de température et de concentration. Les précédentes expériences faites en configuration horizontale ont servi de référence pour effectuer des comparaisons avec des expériences réalisées avec les mêmes paramètres de solidification mais en régime convecto-diffusif. Cette comparaison permet de mettre en évidence l'influence de la gravité sur la formation de la microstructure finale de solidification (*Nguyen-Thi et al. 2011*).

Un régime convectif a été obtenu en réalisant des expériences de solidification avec une position verticale de l'échantillon (Chapitre IV). Les analyses des expériences réalisées avec cette configuration ont mis en évidence l'effet des paramètres de solidification (vitesse de solidification et gradient de température) couplé avec les effets liés à la présence de la gravité sur la dynamique de formation des grains et la microstructure finale de solidification. Pour la position verticale de l'échantillon il existe deux types d'expériences de solidification possibles : la solidification verticale vers le haut, avec le gradient de température antiparallèle au vecteur gravité, et la solidification verticale vers le bas, avec le gradient de température parallèle au vecteur gravité.

Durant les séries d'expériences de solidification vers le haut, solutalement et thermiquement stables, les grains qui germent dans la partie froide basse du champ de vue vont se déplacer vers le haut sous l'effet de la poussée d'Archimède. Pour nos expériences, les mesures montrent que la vitesse de flottaison est indépendante (en moyenne) des paramètres de solidification pour la gamme de paramètres utilisés. Nous avons montré qu'à des vitesses de solidification faibles ou intermédiaires, la taille finale des grains est plus grande que la taille des grains formés lors d'une expérience de solidification faite avec les mêmes conditions expérimentales en configuration horizontale. Cette différence s'explique par le transport d'une grande majorité des grains qui ont germés devant le front équiaxe vers la partie chaude de l'échantillon. Ces grains subissent alors une refusion dans la zone chaude de l'échantillon et disparaissent. À grande vitesse de solidification la flottaison des grains n'a pas d'effet sur la structure de grain finale. Quand la vitesse de solidification dépasse la vitesse moyenne de flottaison des grains (100 $\mu\text{m/s}$ pour cette alliage), les grains ne peuvent flotter que sur une très courte distance avant d'être bloqués par de nouveaux grains qui germent devant eux. En revanche, pour les plus grandes vitesses, il a été observé que les grains se déplacent vers le bas, malgré la poussée d'Archimède. Ceci est dû à la contraction de l'échantillon lors du changement de phase liquide vers la phase solide (*shrinkage*) qui donne naissance à un écoulement vers la zone froide de l'échantillon (Murphy et al. 2016).

La seconde configuration, pour laquelle les effets convectifs sont prépondérants, est la solidification verticale vers le bas qui correspond à une configuration thermosolutalement instable. En comparant avec les expériences faites en configuration horizontale avec les mêmes paramètres de solidification, nous avons observé une dynamique de formation de la microstructure radicalement différente. La structure de grain finale est plus fine avec des grains plus allongés. Plusieurs mécanismes liés à la gravité entrent en jeu pour donner ce type de microstructure. Premièrement, la couche solutale créée par le rejet de cuivre lors de la solidification va s'étirer vers le bas à cause de la gravité. Ce phénomène modifie le gradient de concentration devant le front dendritique et donc la vitesse de croissance des dendrites (Bogno et al. 2013) mais induit également l'inhibition des particules affinantes présentes dans le bain fondu ce qui mène à l'obtention de grains plus grands et plus allongés. D'autre part, les grains qui germent devant le front de solidification vont flotter et croître mais avant d'être incorporés dans le front de solidification existant. Ce mécanisme donne une microstructure plus compacte que dans les autres configurations expérimentales. Enfin, grâce à l'observation *in situ*, les expériences ont mis en évidence la formation de plumes enrichies en cuivre, qui vont s'écouler vers le bas et modifier localement la composition du liquide. Ces plumes affectent significativement la croissance des dendrites en modifiant la couche solutale qui existe devant la microstructure ce qui se traduit par des oscillations de la vitesse de croissance des dendrites. De plus, le développement de plumes riches en soluté crée des zones dans lesquelles la surfusion de constitution est trop faible pour activer des particules affinantes, ou bien même pourrait entraîner le transport des particules affinantes vers la zone chaude.

Au cours de ce travail de thèse, différents phénomènes ont été mis en évidence grâce à l'utilisation de la radiographie X et la comparaison d'expériences de solidification en position verticale et en configuration horizontale. Cependant, même en configuration horizontale de l'échantillon, des mouvements convectifs résiduels peuvent toujours être présents (*Nguyen-Thi et al. 2005*). Pour aller plus loin dans ce type d'études et faciliter la comparaison avec des modèles théoriques ou des simulations numériques, il serait intéressant d'effectuer des comparaisons avec des expériences réalisées en régime purement diffusif, ce qui n'est possible que lors d'expériences en conditions de microgravité. Dans le cadre du projet XRMON MAP (*X-Ray MONitoring of advanced metallurgical processes under terrestrial and under microgravity conditions*), une expérience en fusée-sonde MASER- 14 a été réalisée en juin 2019 dans le but d'étudier la transition colonnaire-équiaxe (CET). Cette expérience a pour objectif d'obtenir des données de référence supplémentaires pour les comparer avec les études faites au sol, et d'étudier ainsi l'effet de la gravité sur la CET tout en améliorant la compréhension de la dynamique de formation des microstructures de solidification. Ces travaux et les résultats obtenus feront partie d'une thèse à suivre.

Références

- Bedel, M., K. O. Tveito, M. Založnik, H. Combeau, and M. M'Hamdi. 2015. "A Model Study of the Impact of the Transport of Inoculant Particles on Microstructure Formation during Solidification." *Computational Materials Science* 102: 95–109. doi:10.1016/j.commatsci.2015.01.028.
- Bogno, A., H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, B. Billia, and J. Baruchel. 2013. "Growth and Interaction of Dendritic Equiaxed Grains: In Situ Characterization by Synchrotron X-Ray Radiography." *Acta Materialia* 61 (4). Acta Materialia Inc.: 1303–15. doi:10.1016/j.actamat.2012.11.008.
- Greer, a L, P S Cooper, M W Meredith, W Schneider, P Schumacher, J a Spittle, and a Tronche. 2003. "Grain Refinement of Aluminium Alloys by Inoculation." *Advanced Engineering Materials* 5 (12): 81–91. doi:10.1002/adem.200390013.
- Hunt, J. D. 1984. "Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic." *Materials Science and Engineering* 65 (1): 75–83. doi:10.1016/0025-5416(84)90201-5.
- Murphy, A. G., R. H. Mathiesen, Y. Houltz, J. Li, C. Lockowandt, K. Henriksson, N. Melville, and D. J. Browne. 2016. "Direct Observation of Spatially Isothermal Equiaxed Solidification of an Al–Cu Alloy in Microgravity on Board the MASER 13 Sounding Rocket." *Journal of Crystal Growth* 454: 96–104. doi:10.1016/j.jcrysgro.2016.08.054.
- Nguyen-Thi, H., A. Bogno, G. Reinhart, B. Billia, R. H. Mathiesen, G. Zimmermann, Y. Houltz, et al. 2011. "Investigation of Gravity Effects on Solidification of Binary Alloys with in Situ X-Ray Radiography on Earth and in Microgravity Environment." *Journal of Physics: Conference Series* 327 (1). doi:10.1088/1742-6596/327/1/012012.
- Nguyen-Thi, H., Y. Dabo, B. Drevet, M. D. Dupouy, D. Camel, B. Billia, J. D. Hunt, and A. Chilton. 2005. "Directional Solidification of Al-1.5 Wt% Ni Alloys under Diffusion Transport in Space and Fluid-Flow Localisation on Earth." *Journal of Crystal Growth* 281 (2–4): 654–68. doi:10.1016/j.jcrysgro.2005.04.061.
- Nguyen-Thi, Henri, Luc Salvo, Ragnvald H. Mathiesen, Lars Arnberg, Bernard Billia, Michel Suery, and Guillaume Reinhart. 2012. "On the Interest of Synchrotron X-Ray Imaging for the Study of Solidification in Metallic Alloys." *Comptes Rendus Physique* 13 (3). Elsevier Masson SAS: 237–45. doi:10.1016/j.crhy.2011.11.010.
- Soltani, H, G Reinhart, M C Benoudia, F Ngomesse, M Zahzouh, and H Nguyen-thi. 2020. "Impact of Growth Velocity on Grain Structure Formation during Directional Solidification of a Re Fi Ned Al-20 Wt .% Cu Alloy." *Journal of Crystal Growth* 548 (April). Elsevier B.V.: 125819. doi:10.1016/j.jcrysgro.2020.125819.
- Soltani, H, G Reinhart, M C Benoudia, M Zahzouh, and H Nguyen-Thi. 2019. "Impact of Gravity-Related Phenomena on the Grain Structure Formation: Comparative Study between Horizontal and Vertical Solidification of a Refined Al-20wt.%Cu Alloy." *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 529: 012019. doi:10.1088/1757-899X/529/1/012019.

Nomenclature

A	Surface de champs de vue
A_c	Surface de la section de cylindre
A_h	Surface de l'hémisphère
C_0	Composition nominale
C_L	Concentration de liquide
C_S	Concentration de solide
C^*	Concentration à la pointe
C_{int}	Concentration à l'interface
C	Concentration de liquide devant l'hémisphère
D_L	Coefficient de diffusion dans le liquide
D_{th}	Coefficient de diffusion thermique
d	Diamètre de disque équivalent du grain
d_a	Diamètre de particule affinante
d_1	Taille de l'objet
d_2	Taille de l'image de l'objet
d_{ED}	Distance Échantillon-Détecteur
E	Energie de faisceau
F_g	Poids apparent
F_d	Force de friction
F_v	Force horizontale résultante
G	Gradient de température
G_C	Gradient de concentration
g	Gravité
H	Hauteur de rectangle qui contient le grains
h	Hauteur du pic
I_0	Intensité incidente
I_T	Intensité transmise
k	Coefficient de partage
k'	Constant dépend du matériau
L	Chaleur latente
L_1	Longueur de l'axe principale de grain
L_2	Longueur de l'axe secondaire de grain
l_s	Longueur de la zone surfondue
l_g	Longueur de germination
l_1	Distance Source de rayon X - Objet
l_2	Distance Source de rayon X - Détecteur
m_L	Ponte de liquidus
M	Facteur de maturation
M_d	Grandissement direct
M_g	Grandissement géométrique
N_0	Nombre de site de germination
N_g	Nombre de grain
n_g	Densité des grains
P_e	Péclet

p	Pression dynamique
P_c	Taille de pixel du détecteur
R	Taux de refroidissement
R_t	Rayon de la pointe
R_e	Rayon de l'embryon
R_c	Rayon critique
R_h	Rayon de l'hémisphère
r	Rayon de l'embryon
r_e	Rayon de grain équiaxe
r_s	Rayon de la sphère
S	Surface de grain
T	Température
T_l	Température de liquidus
T_s	Température de solidus
T_L	Température de liquide
T_{eq}	Température d'équilibre
T_M	Température de fusion de métal pur
T_{int}	Température de l'interface
T_{tip}	Température à la pointe
T_g	Température de germination
T_E	Température d'eutectique
V	Vitesse de croissance
V_c	Vitesse critique
V_e	Vitesse de croissance d'un grain équiaxe
V_E	Vitesse d'eutectique
V_f	Vitesse de flottaison des grains
W	Largeur de rectangle qui contient le grains
α	Angle de fléchissement de bras dendritique
ω	Vecteur d'onde
ν	Viscosité dynamique
λ_i	Longueur d'onde au seuil d'instabilité
λ_1	Espacement primaire
λ_2	Espacement secondaire
β_T	Coefficient de dilatation thermique
β_C	Opposé coefficient de dilation solutale
β_1	Axe principale de l'ellipse équivalent de grain
β_2	Axe secondaire de l'ellipse équivalent de grain
μ	Coefficient d'asymétrie
μ'	Coefficient d'absorption massique
μ_{lin}	Coefficient d'absorption linéaire
δ_C	Longueur de la couche solutale
θ_m	Angle de mouillage
θ	Angle d'orientation des grains par rapport G
ε_s	Fraction volumique de solide
ε_d	Fraction volumique de liquide inter-dendritique
ε_l	Fraction volumique de liquide extra-dendritique
ε_g	Fraction volumique de grains

τ	Taux de germination moyen
σ	Largeur à mi-hauteur
σ^*	Constante de stabilité
σ_C	Contrainte critique à la rupture
σ_0	Contrainte initiale du matériau
μ	Facteur d'asymétrie
κ	Conductivité thermique
κ^*	Courbure locale de surface
Γ	Coefficient de Gibbs-Thomson
Y_{sl}	Tension de surface
L	Chaleur latente
Le	Nombre de Lewis
ΔT_0	Écart de solidification
ΔT	Surfusion
ΔT_g	Surfusion de germination
ΔT_c	Surfusion critique
ΔG	Energie libre
ΔG_C	Energie libre critique
ΔG_V	Energie libre volumique
ΔG_{homo}	Energie libre de germination homogène
ΔG_{hete}	Energie libre de germination hétérogène
$\emptyset$	Diamètre de disque (substrat)
Ω	Sous-refroidissement solutale
φ_E	Fraction volumique
ϕ	Rapport d'aspect ou facteur d'élongation des axes perpendiculaires
ϕ_1	Rapport d'aspect de l'ellipse équivalente du grain
ϕ_2	Rapport d'aspect du rectangle qui contient le grain
U	Vecteur vitesse de fluide
ρ_L	Masse volumique de liquide
ρ_S	Masse volumique de solide

Analyse in situ par radiographie X du développement de grains dendritiques dans un gradient de température

La technique de radiographie X avec le dispositif de laboratoire SFINX (Solidification Furnace with IN situ X-radiography) a été utilisée pour étudier in situ et en temps réel la formation des grains dendritiques dans un gradient de température durant la solidification dirigée de l'alliage Al-20%pdsCu affiné avec 0.1% pds Al-Ti-B. Les expériences effectuées durant cette thèse ont été faites pour trois configurations. La première configuration est la solidification horizontale, avec un impact limité de la gravité. Ces expériences ont permis d'étudier indépendamment les effets de la vitesse de solidification V et du gradient de température G sur la structure de grains. Les deux autres configurations sont la solidification verticale vers le haut (thermosolument stable) et vers le bas (thermosolument instable). La comparaison des expériences réalisées avec les mêmes paramètres de solidification mais dans les différentes configurations a permis de mettre en évidence des effets liés à la présence de la gravité sur les microstructures de solidification.

Mots clés : Solidification, radiographie X, structure de grains, gravité, convection, poussée d'Archimède.

In situ analysis by X-radiography of dendritic grains development in a temperature gradient

X-radiography analysis with the laboratory device SFINX (Solidification Furnace with IN situ X-radiography) was used to study in situ and in real-time the development of dendritic grains in a temperature gradient during the solidification of Al-20wt.% Cu alloy refined with 0.1wt.% Al-Ti-B. The experiments presented in this thesis have been carried out in three different configurations. The first one is the horizontal configuration where the gravity related phenomena are limited. These experiments allowed us to study independently the impact of growth velocity V and temperature gradient G on the grain structure formation. The two other configurations are vertical upward solidification (thermosolubly stable) and vertical downward solidification (thermosolubly unstable). The comparison between the experiments performed with the same solidification parameters but in different configurations highlighted gravity effects on solidification microstructure.

Key words: Solidification, X-radiography, grain structure, convection, buoyancy.

درجة حرارة متدرجة لتطور الحبوب المجهرية للمعدن في التحليل الموضعي والاني

باستخدام جهاز المخبر SFINX المزود بالأشعة السينية تمت الدراسة الموضعية والانية لتشكيل الجزيئات المجهرية للمعدن اثناء من 0.1% من النحاس والمحتوي ايضا على 20%التصلب الموجه من المنطقة الباردة نحو المنطقة الحارة للألمنيوم الممزوج ب 0.1% جزيئات الألمنيوم والتيتانيوم واليورون والتي تسرع من عملية التصلب. التجارب المعروضة في هذه الأطروحة اجريت في ثلاث شبه منعدم، هذه السلسلة من التجارب سمحت بالجاذبية الارضيةلوضعية الافقية اين يكون تأثيروضعيةات مختلفة. الوضعية الاولى وهي كسرة التصلب وفارق درجة الحرارة بين المنطقة الباردة والمنطقة الحارة على شكلللتجربةلنا بدراسة التأثير المستقل للمعايير التقنية الحبوب المجهرية للمعدن. أما الوضعيتين الاخرين فهي وضعية التصلب العمودية الموجهة من الاسفل نحو الاعلى (وضعية مستقرة حراريا وكيميائيا). مقارنة التجاربمن الاعلى نحو الاسفل (وضعية غير مستقرةللتصلب العمودية الموجهة حراريا وكيميائيا) ووضعية المجرات في مختلف الوضعيات يسمح لنا بتسليط الضوء على مجمل الظواهر المتعلقة بالجاذبية الارضية والتي تأثر على ديناميكية

تشكل الحبيبات المجهرية للمعدن والتي بدورها تأثر وبشكل كبير على خصائص المعدن المتصلب.

الكلمات المفتاحية: التصلب، الاشعة السينية، شكل الحبيبات المجهرية للمعدن، الحمل الحراري، دافعة ارخميدس.