

UNIVERSITE MOULOU D MAMMERI DE TIZI-OUZOU
FACULTE DES SCIENCES
LABORATOIRE DE PHYSIQUE ET CHIMIE QUANTIQUE

Rapport de Stage

MASTER DE PHYSIQUE

Présenté par

BOUKELLAL Ahmed Kaci

sur le sujet intitulé :

« Solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu : Simulations numériques 3D en champ de phase »

Travail soutenu le 11 juillet 2016 devant le jury suivant :

BENAKKI Mouloud	Président
DEBIERRE Jean-Marc	Rapporteur
BOUARAB Said	Co-Rapporteur
BOUZAR Hamid	Examineur

Année universitaire: 2015 / 2016

Solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu : Simulations numériques 3D en champ de phase

Ce travail porte sur la croissance d'un grain équiaxe plongé dans un liquide sous-refroidi. Pour cela, nous avons adapté un code de champ de phase afin d'étudier l'effet de la gravité et de la désorientation des axes cristallins sur la croissance des grains équiaxes. Les résultats obtenus ont été comparés aux expériences réalisées par l'équipe MCA de l'IM2NP et un bon accord qualitatif a été obtenu. Pour ma thèse au sein de cette équipe, ces résultats ouvrent des perspectives encourageantes vers l'adaptation du code aux paramètres expérimentaux et l'obtention de résultats quantitatifs permettant de dégager des lois de croissance.

Solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu : Simulations numériques 3D en champ de phase

This work deals with the growth of equiaxed grain immersed in a sub cooled liquid. For this, we adapted a phase-field code to study the effect of gravity and disorientation of the crystal axes on the growth of equiaxed grain. The results were compared with experiments performed by the team MCA of IM2NP and a good qualitative agreement was obtained. These results provide encouraging prospects to adapt the code to the experimental parameters and obtain quantitative results in order to yield growth laws. This work will be done in my PhD thesis.

Résumé

Nous présentons dans ce manuscrit un rapport de stage du Master de physique, option " physique de la matière de basse dimensionnalité" de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO) en Algérie. Ce stage a été effectué en partie au Laboratoire de Physique et Chimie Quantique (LPCQ) à Tizi-Ouzou, sous la responsabilité du professeur Said BOUARAB et en partie à l'Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence (IM2NP) à Marseille en France sous la responsabilité du professeur Jean-Marc DEBIERRE.

Nous avons étudié durant ce stage la solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu. Nous nous sommes intéressés à la croissance d'un grain équiaxe plongé dans un liquide sous-refroidi. Pour cela, nous avons adapté un code de champ de phase afin d'étudier l'effet de la gravité et de la désorientation des axes cristallins sur la croissance des grains équiaxes.

Les résultats obtenus ont été comparés aux expériences réalisées par l'équipe MCA de l'IM2NP et un bon accord qualitatif a été obtenu. Pour la thèse qui suivra au sein de cette équipe, ces résultats ouvrent des perspectives encourageantes vers l'adaptation du code aux paramètres expérimentaux et l'obtention de résultats quantitatifs permettant de dégager des lois de croissance.

Remerciements

Je tiens à remercier toutes les personnes qui ont contribué au succès de mon stage et qui m'ont aidé lors de la préparation de ma présentation.

Tout d'abord, je remercie Mr Hamid BOUZAR, directeur du LPCQ qui m'a accueilli au sein de son laboratoire. Je remercie également Mr Rachid BOUCHAKOUR, directeur de l'IM2NP de m'avoir permis d'intégrer son laboratoire.

Que Mr Moh-Djerdjer MITICHE, vice-recteur chargé de la pédagogie à l'UMMTO, trouve ici l'expression de ma totale reconnaissance pour sa disponibilité au cours de ma démarche administrative.

J'adresse ma totale gratitude et vives remerciements à Mr Said BOUARAB, professeur à l'UMMTO, qui m'a transmis une partie de ses connaissances tant physiques que techniques durant mon cursus, et qui a accepté d'encadrer mon travail au LPCQ. Son écoute et ses conseils m'ont permis de cibler mes candidatures dans les autres laboratoires, et de trouver ce stage qui était en totale adéquation avec mes attentes.

Je tiens à remercier vivement mon responsable de stage à l'IM2NP, Mr Jean-Marc DEBIERRE, professeur à Aix-Marseille Université (AMU), pour son accueil, le temps passé ensemble et le partage de son expérience au quotidien. Grâce aussi à sa confiance j'ai pu m'accomplir totalement dans mes missions. Il fut d'une aide précieuse dans les moments les plus délicats.

Je remercie également toute l'équipe Microstructures de Croissance Auto-organisées (MCA) pour leur accueil, leur esprit d'équipe et en particulier Mr Guillaume REINHART et Henri NGUYEN-THI, qui m'ont beaucoup aidé à comprendre les problématiques de solidification d'alliages...

Je remercie également toute l'équipe TMS et Franck CURATOLO avec qui j'ai partagé la salle de travail et une partie de mon stage.

À la fin de mon stage, au moment de la soutenance, je remercie Mr Mouloud BENNAKI d'avoir accepté de présider mon jury. Je remercie également Mr Hamid BOUZAR d'être mon examinateur. Merci Mr Said BOUARAB d'être rapporteur de mon stage.

Enfin, je tiens à remercier toutes les personnes qui ont été là pour moi, qui m'ont fait confiance et m'ont conseillé le long de mon cursus : ma famille, mes

camarades de promotion, mes enseignants et mes amis...

Table des matières

Introduction	4
1 Généralités sur la croissance équiaxe	5
1.1 Microstructures de solidification	5
1.2 Germination dans un liquide surfondu	5
1.3 Principe de solidification équiaxe	7
1.4 Diagramme de phases de l'alliage Al-Cu	7
1.5 Équations physiques	9
1.6 Contexte expérimental	9
1.6.1 Description des expériences	10
1.6.2 Auto-empoisonnement des grains équiaxes	10
1.6.3 Croissance et interaction solutale des grains équiaxes	11
2 Généralités sur le champ de phase	13
2.1 Équations du champ de phase	13
2.2 Analyse asymptotique	15
2.3 Anisotropie d'énergie de surface	16
2.3.1 Préconditionnement	17
2.4 Discrétisation	18
3 Simulations en champ de phase	22
3.1 Introduction	22
3.2 Paramètres utilisés	22
3.3 Croissance et interaction solutale entre grains équiaxes	23
3.4 Influence d'une désorientation cristalline	24
3.4.1 Anisotropie de l'énergie de surface	24
3.4.2 Portée de l'interaction solutale	25
3.5 Effet de la gravité	26
3.6 Effet de la désorientation cristalline en présence de gravité	28
Conclusion et perspectives	30
Bibliographie	31

Introduction

Ce travail de nature numérique porte sur l'étude de la solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu par la méthode du champ de phase.

Le choix de ce sujet est lié au rôle prépondérant que joue la solidification en métallurgie. En effet, la majorité des matériaux utilisés en pratique subissent au moins une fois cette transition de phase au cours de leur élaboration.

La solidification est le passage de la matière de l'état liquide à l'état solide. Elle peut être équiaxe ou dirigée [1] selon le procédé utilisé et les propriétés physiques recherchées. On favorise la solidification équiaxe pour des matériaux devant être soumis à des sollicitations mécaniques homogènes tels que les blocs moteurs, tandis que la solidification dirigée est préférée si les contraintes appliquées doivent être inhomogènes et anisotropes telles que dans les aubes de turbine. Il s'avère que les microstructures de solidification (dendrites, doublons, algues...) [2] conditionnent fortement les propriétés macroscopiques, c'est pourquoi, l'étude à cette échelle s'impose.

De nos jours, l'observation à l'échelle du micron est devenue possible grâce au développement de la résolution des caméras qui permet d'effectuer des caractérisations in-situ de la solidification. De plus, l'avènement des supercalculateurs et GPU a repoussé les limites des moyens et des temps des calculs et a donc impulsé la simulation numérique.

Ce mémoire s'étend sur trois chapitres complémentaires entre eux qui traitent respectivement de généralités sur la croissance équiaxe avec les principaux résultats expérimentaux, de la méthode du champ de phase et enfin des résultats de simulations numériques obtenus au cours de ce stage. Ces chapitres sont suivis par une conclusion générale et des perspectives.

Chapitre 1

Généralités sur la croissance équiaxe

1.1 Microstructures de solidification

Lors de la solidification d'un alliage, la formation de microstructures est couramment observée. C'est pourquoi, la connaissance de la dynamique de formation de ces microstructures est très importante afin d'améliorer les qualités physiques des produits obtenus.

En fonderie, ce sont les structures dendritiques qui sont les plus communes. Les volumes de la production mondiale de métaux permettent d'estimer que le nombre de dendrites formées est d'environ un milliard par seconde !! [3]

Une dendrite est un monocristal en forme d'arborescence (figure 1.1). On y distingue des branches primaires et des branches secondaires, entourées de liquide (souvent enrichi du soluté rejeté au moment de la solidification). Cette forme offre une surface de contact plus grande, permettant une meilleure évacuation du soluté et favorisant ainsi la cristallisation. La solidification a lieu en deux étapes : d'abord

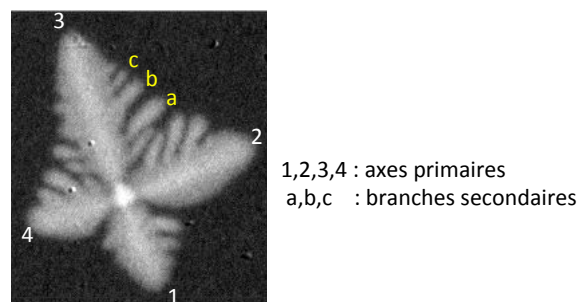


FIGURE 1.1 – Dendrite d'Al-10%pds Cu [4]

la germination, puis la croissance des grains.

1.2 Germination dans un liquide surfondu

La germination résulte de l'agrégation d'atomes qui forment un noyau solide sur lequel d'autres atomes peuvent s'attacher. Il existe deux types de germination :

homogène ou hétérogène. La germination homogène apparaît de façon aléatoire dans le système, mais est rarement importante car elle demande beaucoup d'énergie de surface. La germination hétérogène a lieu quand il y a des agents nucléants dans le système. Elle peut avoir lieu sur les défauts des parois du creuset ou sur des impuretés dans l'alliage [5].

La figure (1.2) représente la comparaison entre les deux types de germination : $\Delta G_{het}(r)$ et $\Delta G_{hom}(r)$ représentent les variations de l'énergie (enthalpie libre)

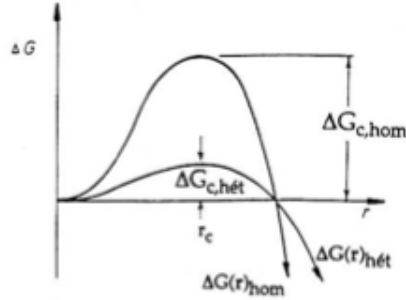


FIGURE 1.2 – Comparaison entre l'énergie libre de germination homogène et germination hétérogène

totale lors de la création d'un germe homogène et d'un germe hétérogène, avec

$$\Delta G_{het}(r) = \left(-\frac{4}{3}\pi r^3 \times \Delta G_v + 4\pi r^2 \gamma_{sl} \right) \times S(\theta), \quad (1.1)$$

$$\Delta G_{hom}(r) = -\frac{4}{3}\pi r^3 \times \Delta G_v + 4\pi r^2 \gamma_{sl}, \quad (1.2)$$

où γ_{sl} est l'énergie d'interface solide/liquide, ΔG_v la variation volumique de l'énergie, et $S(\theta)$ un terme inférieur à un dépendant de l'angle de contact θ entre l'alliage et la matière étrangère, et tel que [6]

$$S(\theta) = \frac{(2 + \cos\theta)(1 - \cos\theta)^2}{4}. \quad (1.3)$$

Quand le rayon atteint une valeur critique, le germe devient énergiquement stable et la croissance devient spontanée. Pour cette valeur critique, ΔG est maximum et $\Delta G_{het} = \Delta G_{hom} S(\theta)$. Comme $S(\theta) \leq 1$, la barrière de potentiel est plus petite dans le cas de la germination hétérogène. Par conséquent, cette dernière a plus de chances de se produire que la germination homogène pour les mêmes conditions et la même valeur du rayon critique.

En croissance équiaxe, la croissance a lieu dans un liquide dit surfondu ou en surfusion, c'est à dire que la température du liquide est inférieure à sa température d'équilibre appelée "Température du Liquidus". Si cette condition existe, la présence prolongée de particules solides dans le liquide induit la germination et le développement de grains équiaxes, qui passent de la forme globulaire à la forme dendritique.

Généralement, la croissance est dendritique car le liquide est en situation permanente de surfusion constitutionnelle (chimique) et thermique. Suivant la nature du matériau, on obtient différentes formes de dendrites :

- La structure dite rugueuse : pour des solutions solides à base de métaux possédant des structures cristallographiques simples et de nombreux plans de symétrie donnant des directions de croissance potentielles (ex : Al)
- Les dendrites facettées, lorsque les composés possèdent des directions cristallographiques privilégiées (ex : Al_2Cu , Fe_3C)

1.3 Principe de solidification équiaxe

Il s'agit d'une solidification par refroidissement contrôlé des éléments chauffants du four (fig 1.3). Afin d'éviter de privilégier une direction de croissance et d'obtenir des structures équiaxes, le gradient thermique à travers l'échantillon reste quasi-nul durant l'expérience. Pour cela, les deux zones chauffantes du four sont réglées et maintenues à des températures quasi-égales : $T_C \approx T_H$, avec T_C et T_H la température de la zone froide et chaude respectivement.

Dans un premier temps, tout l'échantillon est fondu. On refroidit ensuite de manière continue et simultanée les deux éléments chauffants à des taux de refroidissement égaux, $R_C = R_H = R$. On atteint alors la surfusion nécessaire pour obtenir une germination et ainsi une croissance de grains équiaxes. Les premiers grains vont germer sur des impuretés ou des sites de germination présents dans l'échantillon.

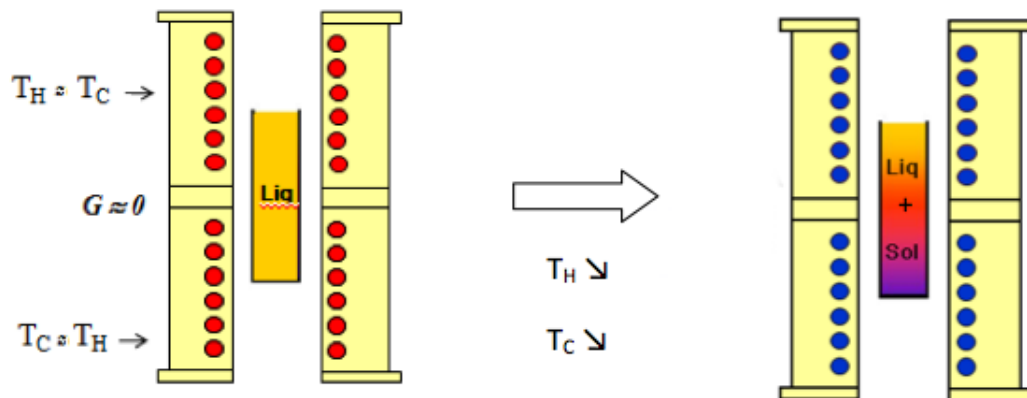


FIGURE 1.3 – Principe d'une expérience de solidification équiaxe

1.4 Diagramme de phases de l'alliage Al-Cu

Lorsqu'on solidifie un alliage à partir de son bain fondu, il est important de se référer à son diagramme de phases (fig 1.4) pour connaître le chemin de solidification. La solidification se déroule entre la température du Liquidus et la température du Solidus qui sont données par le diagramme de phases. Le coefficient de partage

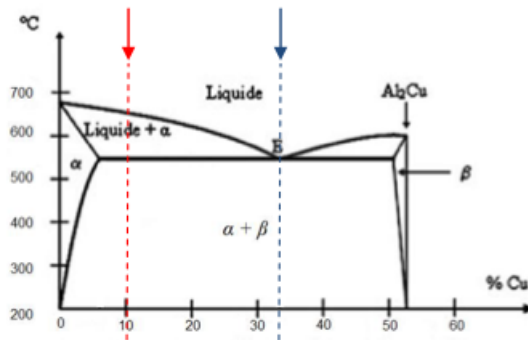


FIGURE 1.4 – Diagramme de phase de l’alliage Al-Cu

k est défini par $k = \left(\frac{c_s}{c_l} \right)_{int} < 1$. Au cours du changement de phase, il y a formation de solide α riche en aluminium, ce qui implique un rejet du soluté et donc un enrichissement du liquide en cuivre.

Les alliages utilisés dans l’expérience sont composés de $c_\infty = 10\%$ en masse de cuivre, ce qui est noté Al–10%*pds* Cu. Pour cette composition, l’alliage est dit dilué, c’est pourquoi le diagramme de phase peut être linéarisé (fig 1.5). Remarquons cependant que pour une concentration aussi importante cette approximation est assez grossière .

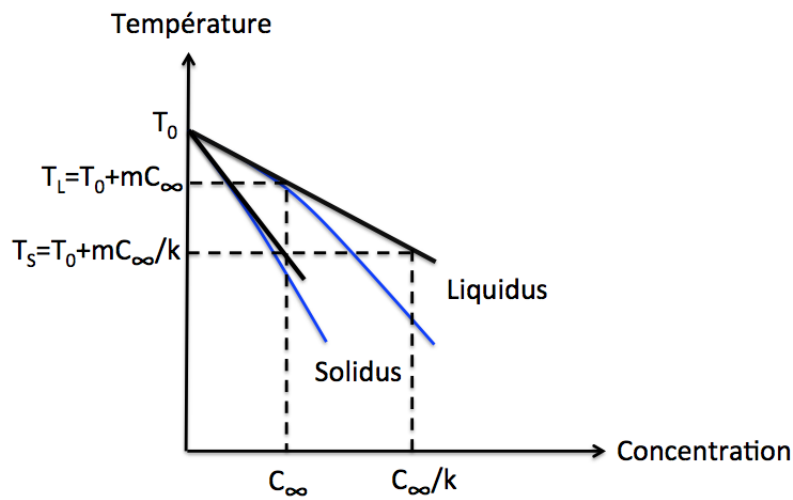


FIGURE 1.5 – Diagramme de phases schématisé d’un alliage binaire dilué et son approximation linéaire

1.5 Équations physiques

La diffusion thermique dans un alliage métallique est très grande devant la diffusion du soluté, ce qui permet de considérer que le champ de température est quasi stationnaire. De plus, la diffusion du soluté dans la phase solide est supposée nulle. Ainsi, la solidification est complètement décrite par l'équation de transport du soluté du côté liquide.

Pour une solidification à une température $T < T_0$, la concentration obéit au système d'équations suivant :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\nabla^2 c - V \frac{\partial c}{\partial z}, \quad (\text{phase liquide}) \quad (1.4)$$

$$c_l(1-k)V_n = -D \frac{\partial c}{\partial r_n} |^+, \quad (\text{interface}) \quad (1.5)$$

$$c_l = c_\infty/k, \quad (\text{interface}) \quad (1.6)$$

$$\frac{c}{c_\infty} = 1 - (1-k)d_0\kappa - (1-k)\beta V_n. \quad (\text{interface}) \quad (1.7)$$

Où D est la diffusivité du soluté dans le liquide, V est la vitesse d'écoulement dans le liquide induite par la différence de densité entre le cuivre et l'aluminium ($\rho_{Al} = 2325 \text{ kg/m}^3$, $\rho_{Cu} = 8020 \text{ kg/m}^3$), V_n est la vitesse normale à l'interface, $\frac{\partial c}{\partial r_n} |^+$ est la dérivée du champ de concentration suivant la normale à l'interface orientée vers le liquide. D'autre part,

$$c_\infty = \frac{T_0 - T}{|m|} \quad (1.8)$$

est la concentration d'équilibre du liquide à la température T , et

$$d_0 = \frac{\Gamma}{\Delta T_0} \quad (1.9)$$

est la longueur capillaire chimique, où $\Delta T_0 = |m|(1-k)c_\infty$ est l'écart de température entre le Liquidus et le Solidus, et $\beta = \frac{1}{\mu_k \Delta T_0}$, avec μ_k le coefficient d'attachement cinétique.

1.6 Contexte expérimental

Durant ces dernières années, des expériences ont été réalisées par l'équipe MCA de l'IM2NP [4] dans le but d'analyser la croissance et l'interaction des grains équiaxes de l'alliage Al-10pds% Cu. Pour atteindre ce but, il a fallu obtenir des microstructures assez grandes (pour mesurer la vitesse des pointes) et en nombre suffisant (pour analyser l'environnement du grain). De plus, l'absence de sédimentation est indispensable. À cause de cette dernière contrainte, trois séries de mesures (E_1, E_2, E_3) ont été effectuées d'une manière consécutive sur le même échantillon en appliquant le même refroidissement $R = 0.5\text{K/min}$.

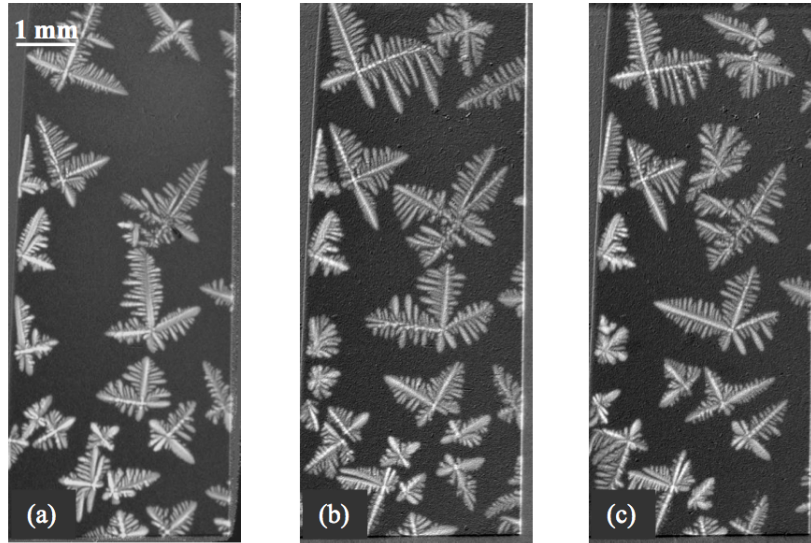


FIGURE 1.6 – Radiographies de la microstructure équiaxe prises au même instant de la solidification (environ 190s après la germination des premiers grains) pour les trois expériences (a) E_1 ; (b) E_2 ; (c) E_3 effectuées sur un échantillon d'Al – 10%*pds*Cu, $R = 0.5K/min$

1.6.1 Description des expériences

La surface principale de l'échantillon mince ($40 \times 6 \times 0.2 \text{ mm}^3$) est soumise à un faisceau de rayons X monochromatiques en incidence normale. Le contraste de l'image provient de l'absorption du faisceau, qui dépend du nombre atomique de l'élément chimique. L'observation de la phase de germination n'a pas été possible à cause de l'insuffisance de la résolution spatiale (environ $15 \mu\text{m}$). Les grains ne sont visibles qu'à partir de la température du Liquidus T_L , ce qui est en accord avec la germination hétérogène.

Les radiographies de la figure (1.6) ont montré que :

- i) La majorité des grains germent aux mêmes endroits d'une expérience à l'autre.
- ii) Les grains restent immobiles durant l'expérience.

Ces observations ont suggéré que les grains germent sur des hétérogénéités présentes sur la couche d'oxyde ou sur les parois du creuset.

1.6.2 Auto-empoisonnement des grains équiaxes

La gravité joue un rôle important dans la dynamique de formation des microstructures même pour des grains fixes. La figure (1.7) illustre la croissance de deux grains équiaxes tirés des expériences E_1 et E_2 respectivement, avec les longueurs des branches primaires de chacun des grains.

Ces résultats montrent que même pendant la phase de croissance libre des grains (grains isolés), les branches primaires croissent différemment (différentes pentes

initiales). La croissance du bras 1 pointant vers le bas est plus lente que celle des pointes 2 et 3 horizontales. La croissance de ces dernières est plus lente que celle de la branche 4 pointant vers le haut.

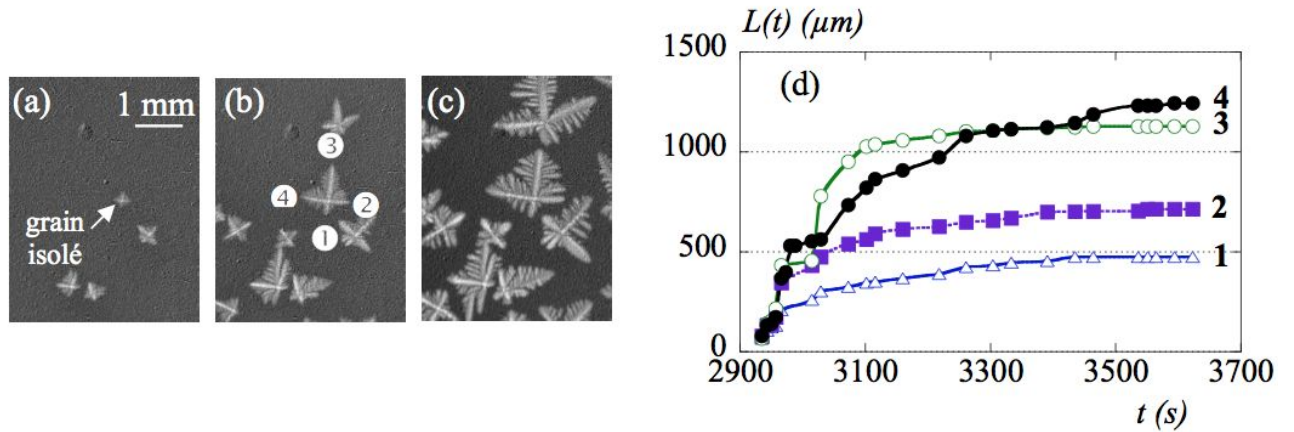


FIGURE 1.7 – Séquence de radiographies de la croissance d’un grain équiaxe pour un taux de refroidissement $R = 0.5\text{K}/\text{min}$: (a) $t = 2957$ s, (b) $t = 3037$ s et (c) $t = 3362$ s après le début de la phase du refroidissement contrôlé. (d) évolution des longueurs des bras dendritiques

1.6.3 Croissance et interaction solutale des grains équiaxes

Afin d’analyser la croissance et l’interaction des grains équiaxes, plusieurs branches primaires croissant les unes vers les autres ont été observées. La figure (1.8) montre un exemple de couple de grains, sélectionné pendant les expériences E_2 ainsi que les vitesses de croissance mesurées.

Cette figure montre que le grain 1 germe avant le grain 2. De plus, les vitesses de croissance des deux grains augmentent progressivement avant d’atteindre un maximum sensiblement au même instant mais avec des valeurs maximales différentes. Cette accélération est suivie d’une décélération jusqu’à l’annulation des vitesses.

En conséquence, ces expériences ont montré l’existence de deux régimes :

- Un régime de croissance accélérée jusqu’à une valeur maximale.
- Un régime de ralentissement progressif de la croissance, jusqu’à son arrêt final.

Afin de mieux comprendre les phénomènes observés, nous avons réalisé des simulations numériques en champ de phase à trois dimensions en tenant compte de l’effet de la gravité et de la désorientation cristalline.

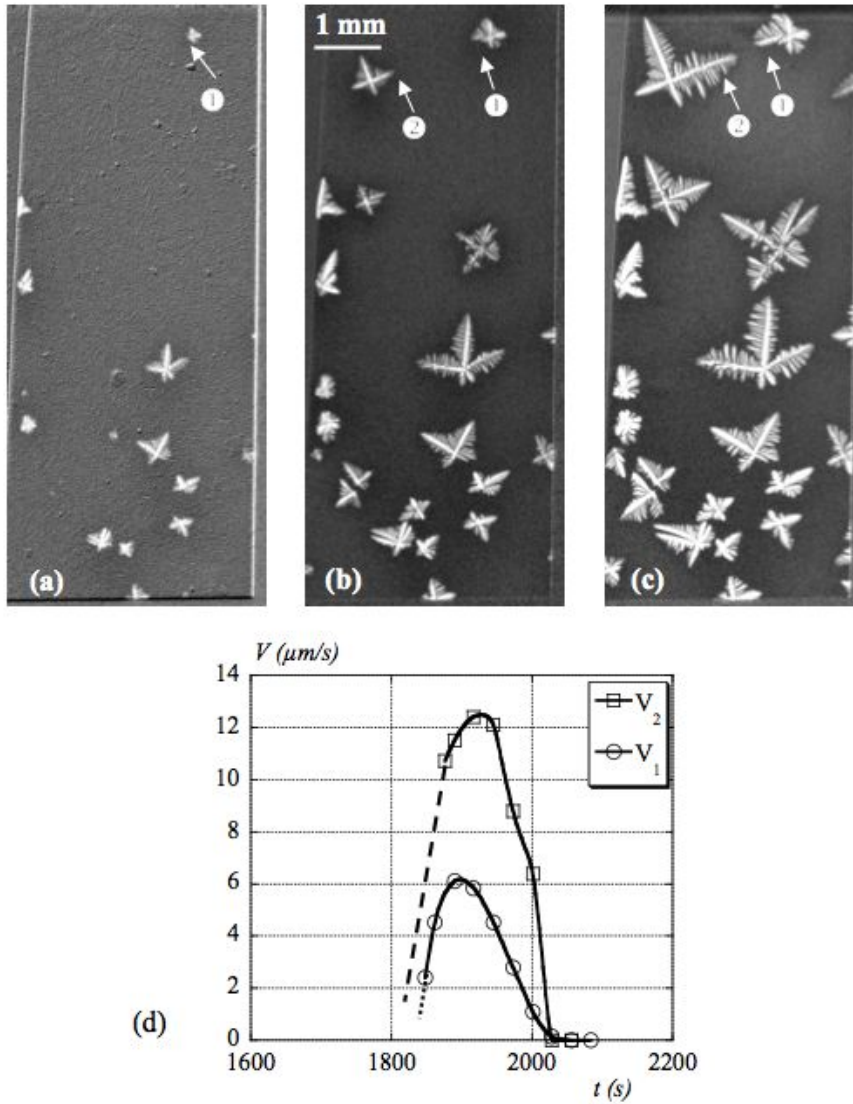


FIGURE 1.8 – Images de la microstructure équiaxe pendant l'expérience E_2 (Al–10%*pds*Cu, $R = 0.5K/min$) à trois instants différents. $t = 1830s$, $t = 1890s$ et $t = 1960s$ après le début du refroidissement . (d) Évolution des vitesses de croissance V_1 et V_2 au cours du temps

Chapitre 2

Généralités sur le champ de phase

La description de la solidification par des simulations numériques reste un défi à cause des instabilités qui apparaissent au niveau de l'interface solide-liquide. Ces instabilités qui sont génériques pour les problèmes aux frontières libres dépendant du temps (PFLDT) sont régies par les lois de la physique non linéaire.

La méthode du champ de phase permet de relever ce défi. Pour cette raison, elle est devenue une méthode standard de résolution des PFLDT [7]. Grâce à l'utilisation d'un paramètre d'ordre qui décrit l'état local de la matière, elle donne accès au champ de concentration et à l'interface solide-liquide quelle que soit sa complexité, ceci sans résoudre les équations du mouvement en chaque point de l'interface.

Les origines du modèle du champ de phase se trouvent dans la thermodynamique hors équilibre et la théorie de Landau des transitions de phase [8]. La méthode consiste à suivre l'évolution d'un champ scalaire φ qui passe de $+1$ dans la phase solide (état ordonné) à -1 dans la phase liquide (état désordonné) en variant d'une manière continue à travers l'interface.

2.1 Équations du champ de phase

Le champ de phase φ est couplé au champ de concentration c par la fonctionnelle d'énergie libre

$$F[\varphi, c, T] = \int_V \frac{\sigma}{2} |\vec{\nabla} \varphi|^2 + f(\varphi, T_m) + f_{AB}(\varphi, c, T) dV, \quad (2.1)$$

où

$$f(\varphi, T_m) = H(-\varphi^2/2 + \varphi^4/4) \quad (2.2)$$

Ce double puits possède deux minima en $\varphi = \pm 1$. Le paramètre $H = \frac{\gamma}{2\sqrt{2}W_0/3}$ a les dimensions d'une énergie par unité de volume. Le paramètre W_0 représente la largeur d'interface et γ est l'énergie de surface solide-liquide. Le premier terme de la fonctionnelle garantit une épaisseur finie de l'interface et σ est exprimé en énergie par unité de longueur.

Pour le troisième terme, on trouve,

$$f_{AB}(\varphi, c, T) = \frac{g(\varphi)}{2} \frac{L}{T_0} (T - T_0) + \frac{RT_0}{v_0} [c \ln c - c] + e(\varphi)c \quad (2.3)$$

avec

$$e(\varphi) = g(\varphi) \frac{\Delta e}{2}, \quad (2.4)$$

où

- $g(\varphi)$ et $e(\varphi)$ sont les fonctions d'interpolation d'entropie et d'énergie interne
- $\Delta e = e_s - e_l$ est la différence d'énergie interne entre le solide et le liquide
- R est la constante des gaz parfaits, T_0 est la température de fusion du corps pur et v_0 est le volume molaire du soluté
- L est la chaleur latente de fusion.

Les équations d'évolution spatio-temporelle sont données par l'équation de relaxation du champ de phase

$$\tau \frac{\partial \varphi}{\partial t} = - \frac{\delta F}{\delta \varphi} \quad (2.5)$$

et l'équation de conservation de la masse

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \vec{\nabla} \left(M(\varphi, c) \vec{\nabla} \frac{\delta F}{\delta c} \right) \quad (2.6)$$

Courant correctif

Lorsque W_0 est grand, le piégeage du soluté est numériquement amplifié. Cette amplification étant non physique, elle fausse l'équilibre solide-liquide à l'interface. C'est pourquoi, un courant correctif \vec{j}_{at} a été introduit par A. Karma [9] dans l'équation (2.6). Ce courant transporte le soluté du liquide au solide ; il est donné par

$$\vec{j}_{at} = a(\varphi) W (1 - k) c_l^0 e^u \frac{\partial \varphi}{\partial t} \vec{n}, \quad (2.7)$$

où u mesure l'écart du potentiel chimique par rapport à l'équilibre,

$$u = \frac{v_0}{RT_m} (\mu - \mu_E) = \ln \left(\frac{2c}{c_l^0 [1 + k - (1 - k)h(\varphi)]} \right), \quad (2.8)$$

et $\vec{n} = - \frac{\vec{\nabla} \varphi}{|\vec{\nabla} \varphi|}$ est le vecteur unitaire normal à l'interface.

L'équation (2.6) devient donc :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \vec{\nabla} \left[Dq(\varphi) c \vec{\nabla} u - a(\varphi) W (1 - k) c_l^0 e^u \frac{\partial \varphi}{\partial t} \vec{n} \right] \quad (2.9)$$

Pour simplifier l'écriture, on considère un champ U donné par :

$$U = \frac{e^u - 1}{1 - k} \quad (2.10)$$

Avec le choix $h(\varphi) = \varphi$ dans l'équation 2.8, l'équation 2.5 devient :

$$\tau_0 \frac{\partial \varphi}{\partial t} = W_0^2 \nabla^2 \varphi + \varphi - \varphi^3 - C \tilde{g}'(\varphi) \left[U + \left(1 - \frac{Rt}{T_L - T_S} \right) \right] \quad (2.11)$$

Avec R : taux de refroidissement, T_L et T_S températures du Liquidus et du Solidus respectivement.

Quant à l'équation 2.6, elle devient :

$$\left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2}\varphi\right)\frac{\partial U}{\partial t} = \vec{\nabla} \left\{ Dq(\varphi)\vec{\nabla}U + \frac{1}{2\sqrt{2}}W\left[1 + (1-k)U\right]\frac{\partial\varphi}{\partial t}\vec{n} \right\} + \frac{1}{2}\left[1 + (1-k)U\right]\frac{\partial\varphi}{\partial t} \quad (2.12)$$

2.2 Analyse asymptotique

Afin de relier les équations du champ de phase (2.11) et (2.12) aux équations physiques(1.4 à 1.7), on se sert de l'analyse asymptotique. On se contente dans cette partie de donner le principe et les résultats de l'analyse développée par A. Karma [10, 11]. L'analyse asymptotique commence par un changement de variable. La longueur capillaire d_0 et le temps caractéristique $t_0 = d_0^2/D$ sont utilisés respectivement comme unités de longueur l et de temps t . Les grandeurs adimensionnées se transforment alors comme

$$l \rightarrow l' = \frac{l}{d_0} \quad (2.13)$$

$$t \rightarrow t' = \frac{tD}{d_0^2} = \frac{t}{t_0}. \quad (2.14)$$

Les équations (2.11) et (2.12) deviennent

$$\alpha\xi^2\frac{\partial\varphi}{\partial t'} = \xi^2\nabla'^2\varphi + \varphi - \varphi^3 - a_1\xi\tilde{g}'(\varphi)\left[U + \left(1 - \frac{Rt}{T_L - T_S}\right)\right] \quad (2.15)$$

et

$$\left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2}\varphi\right)\frac{\partial U}{\partial t'} = \vec{\nabla}' \left\{ q(\varphi)\vec{\nabla}'U + \frac{\xi}{2\sqrt{2}}\left[1 + (1-k)U\right]\frac{\partial\varphi}{\partial t'}\vec{n} \right\} + \frac{1}{2}\left[1 + (1-k)U\right]\frac{\partial\varphi}{\partial t'} \quad (2.16)$$

On omettra les primes par la suite pour simplifier les écritures. L'épaisseur de l'interface adimensionnée $\xi = W_0/d_0$ détermine le raccordement entre la zone interne (ZI) et la zone externe (ZE). Elle est donc choisie comme paramètre du développement de perturbation. La zone interne est destinée à décrire le système à l'échelle W_0 de l'épaisseur de l'interface. Il se trouve que le paramètre d'ordre varie très rapidement dans la directions normale à l'interface sur une distance de quelques longueurs capillaires seulement (quelques nm). Cependant sa variation s'étend sur une longueur de l'ordre du rayon de courbure (quelques μm) dans la direction tangente à l'interface. Pour ajuster les deux échelles de longueur, nous définissons une nouvelle variable d'espace

$$\eta = \frac{r}{\xi} \quad (2.17)$$

où r est la coordonnée suivant la normale à l'interface située en $r = 0$, positive du coté liquide. Tenant compte de ces changements de variable et des conditions aux limites ($\varphi = \pm 1$ pour $\eta \approx 10$), on obtient la solution (à l'ordre 0)

$$\varphi = -\tanh\left(\frac{\eta}{\sqrt{2}}\right) \quad (2.18)$$

Pour la détermination de U , on tient compte de la continuité de la concentration entre la zone interne et la zone externe. Ce qui permet d'obtenir $a_1 = 5\sqrt{2}/8$ (à l'ordre 1).

Afin de vérifier la relation de Gibbs-Thomson, le développement à l'ordre deux donne

$$q(\varphi) = (1 - \varphi)/2 \quad (2.19)$$

$$\tilde{g}'(\varphi) = (1 - \varphi^2)^2 \quad (2.20)$$

Pour le matériau considéré ici, les interfaces sont rugueuses, il est donc raisonnable d'annuler le coefficient d'attachement cinétique β en imposant un couplage

$$C = \frac{\tau_0 D}{a_2 W_0^2}, \quad (2.21)$$

avec $a_2 = 47/25$, $\tau_0 = a_0 W_0^3 / (D d_0)$ et $a_0 = 47\sqrt{2}/120$ [10].

2.3 Anisotropie d'énergie de surface

Pour un solide anisotrope, l'énergie de surface s'écrit :

$$\gamma(\vec{n}) = \gamma_0 a_s(\vec{n}) \quad (2.22)$$

où γ_0 est une constante et $a_s(\vec{n})$ est une fonction sans dimension, caractéristique du réseau cristallin. La relation de Gibbs-Thomson doit être adaptée pour prendre en compte les effets de cette anisotropie. Pour les cristaux à symétrie cubique, la fonction d'anisotropie prend la forme

$$a_s(\vec{n}) = (1 - 3\varepsilon_4) + 4\varepsilon_4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4), \quad (2.23)$$

avec (n_x, n_y, n_z) les trois composantes de la normale \vec{n} suivant les axes cristallins (x, y, z) et ε_4 la valeur de l'anisotropie. On peut incorporer la fonction d'anisotropie dans le modèle du champ de phase à travers l'épaisseur d'interface [12]

$$W(\vec{n}) = W_0 a_s(\vec{n}) = W_0 [(1 - 3\varepsilon_4) + 4\varepsilon_4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4)] \quad (2.24)$$

et du temps de relaxation

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 a_s^2(\vec{n}) \quad (2.25)$$

Pour corriger les termes parasites liés à la courbure de l'interface et aux fluctuations thermiques, le temps de relaxation τ est choisi comme

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 \left[1 - (1 - k) \frac{Rt}{T_L - T_S} \right] a_s^2(\vec{n}) \quad (2.26)$$

En utilisant l'épaisseur de l'interface W_0 comme unité de longueur et le temps de relaxation τ_0 comme unité de temps, les longueurs sont adimensionnées comme $\tilde{l} = l/W_0$ et le temps comme $\tilde{t} = t/\tau_0$. Par conséquent, D est adimensionné comme $\tilde{D} = \frac{D\tau_0}{W_0^2}$. Pour simplifier l'écriture on omet les tildes dans la suite de l'exposé. Avec ces notations, l'équation d'évolution du champ de phase devient

$$\begin{aligned} \left(1 - \beta_k \frac{Rt}{T_L - T_S} \right) a_s^2(\vec{n}) \frac{\partial \varphi}{\partial t} &= \vec{\nabla} \left[a_s^2(\vec{n}) \vec{\nabla} \varphi \right] \\ &+ \sum_{l=x,y,z} \partial_l \left(|\vec{\nabla}|^2 a_s(\vec{n}) \frac{\partial a_s(\vec{n})}{\partial (\partial_l \varphi)} \right) \\ &+ \left(1 - \varphi^2 \right) \left(\varphi - C(1 - \varphi^2) \right) \left[U + \left(1 - \frac{Rt}{T_L - T_S} \right) \right], \end{aligned} \quad (2.27)$$

et l'équation d'évolution de concentration devient :

$$\begin{aligned} \left(\alpha_k - \beta_k \varphi \right) \frac{\partial U}{\partial t} &= \vec{\nabla} \left[D(1 - \varphi) \vec{\nabla} U - \frac{(1 + \beta_k U)}{\sqrt{2}} \frac{\partial \varphi}{\partial t} \vec{n} \right] \\ &+ [1 + \beta_k U] \frac{\partial \varphi}{\partial t}, \end{aligned} \quad (2.28)$$

avec $\alpha_k = 1 + k$ et $\beta_k = 1 - k$.

2.3.1 Préconditionnement

La variation du champ de phase φ se fait sur un petit intervalle de longueur (environ $10W_0$), ce qui rend difficile le suivi de l'interface sur le maillage numérique. Le principe du preconditionnement est d'effectuer un changement de variable afin de linéariser ce profil pour le rendre moins abrupt [13, 14]. La nouvelle variable est donnée par

$$\psi = \sqrt{2} \tanh^{-1}(\varphi). \quad (2.29)$$

Ce changement de variable permet, pour une précision numérique donnée, d'utiliser un pas de réseau et de temps plus grand, ce qui réduit considérablement le temps de calcul.

L'équation d'évolution du champ de phase devient ainsi

$$\begin{aligned}
 \left(1 - \beta_k \frac{Rt}{T_L - T_S}\right) a_s^2(\vec{n}) \frac{\partial \psi}{\partial t} &= \sqrt{2} \left\{ \varphi - C(1 - \varphi^2) \left[U + \left(1 - \frac{Rt}{T_L - T_S}\right) \right] \right\} \\
 &+ a_s^2(\vec{n}) \left[\nabla^2 \psi - \sqrt{2} \varphi |\vec{\nabla} \psi|^2 \right] \\
 &+ 2a_s(\vec{n}) \vec{\nabla} a_s(\vec{n}) \vec{\nabla} \psi \\
 &+ \frac{\sqrt{2}}{1 - \varphi^2} \vec{\nabla} \vec{A},
 \end{aligned} \tag{2.30}$$

avec \vec{A} , le vecteur d'anisotropie dont les composantes sont

$$A_l = 16\varepsilon_4 \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} |\vec{\nabla} \psi| a_s(\vec{n}) n_l \left[(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) - n_l^2 \right], \tag{2.31}$$

avec

$$n_l = -\frac{\partial_l \varphi}{|\vec{\nabla} \varphi|} = -\frac{\partial_l \psi}{|\vec{\nabla} \psi|} \tag{2.32}$$

les composantes du vecteur unitaire normal à l'interface suivant la direction $l = x, y, z$. De la même manière, l'équation (2.28) donnant l'évolution de la concentration devient :

$$\begin{aligned}
 (\alpha_k - \beta_k \varphi) \frac{\partial U}{\partial t} &= D \vec{\nabla} \left[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U \right] + \left[1 + \beta_k U \right] \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} \frac{\partial \psi}{\partial t} \\
 &+ \vec{\nabla} \left[\left(1 + \beta_k U \right) \frac{(1 - \varphi^2)}{2} \frac{\partial \psi}{\partial t} \frac{\vec{\nabla} \psi}{|\vec{\nabla} \psi|} \right]
 \end{aligned} \tag{2.33}$$

Enfin, posons

$$B = \left(1 + \beta_k U \right) \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{1 - \varphi^2}{\sqrt{2}} \left(1 + \beta_k U \right) \frac{\partial \psi}{\partial t}. \tag{2.34}$$

Ainsi, l'équation d'évolution de concentration devient

$$\begin{aligned}
 (\alpha_k - \beta_k U) \frac{\partial U}{\partial t} &= (1 - \varphi) D \nabla^2 U - \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} D \vec{\nabla} \psi \vec{\nabla} U \\
 &- \frac{1}{\sqrt{2}} \vec{n} \vec{\nabla} B + B \left(1 - \frac{\vec{\nabla} \vec{n}}{\sqrt{2}} \right).
 \end{aligned} \tag{2.35}$$

2.4 Discrétisation

Les équations 2.30 et 2.35 sont résolues à l'aide des définitions des équations 2.23 et 2.24 par la méthode des différences finies à l'aide d'un maillage cubique de pas h .

Le laplacien du champ de phase ψ au point du maillage (i, j, k) est donné par :

$$\nabla^2 \psi_{i,j,k} = \frac{\psi_{i+1,j,k} + \psi_{i-1,j,k} + \psi_{i,j+1,k} + \psi_{i,j-1,k} + \psi_{i,j,k+1} + \psi_{i,j,k-1} - 6\psi_{i,j,k}}{h^2} \tag{2.36}$$

où i, j, k sont des indices entiers pour repérer les points du maillage selon x, y, z . La composante de $\vec{\nabla}\psi$ suivant x est discrétisée comme

$$(\partial_x\psi)_{i,j,k} = \left(\frac{\psi_{i+1,j,k} - \psi_{i-1,j,k}}{2h} \right) \quad (2.37)$$

La composante suivant x de la normale à l'interface est définie comme

$$n_{x_{i,j,k}} = -\frac{1}{|\vec{\nabla}\psi|_{i,j,k}} (\partial_x\psi)_{i,j,k} \quad (2.38)$$

Nous procédons de la même manière pour les directions y et z . La divergence d'un courant \vec{J} sur un point donné (i, j, k) est calculé en additionnant l'ensemble des courants vers les points voisins comme décrit dans [11]. Si nous notons $[\vec{J}]_{i \rightarrow i+1}$ le courant \vec{J} entre le point (i, j, k) et le point $(i+1, j, k)$, la divergence de \vec{J} au point (i, j, k) s'écrit :

$$(\vec{\nabla}[\vec{J}])_{i,j,k} = \frac{1}{h} \left\{ [\vec{J}]_{i \rightarrow i+1} + [\vec{J}]_{i \rightarrow i-1} + [\vec{J}]_{j \rightarrow j+1} + [\vec{J}]_{j \rightarrow j-1} + [\vec{J}]_{k \rightarrow k+1} + [\vec{J}]_{k \rightarrow k-1} \right\} \quad (2.39)$$

Pour bien distinguer les termes discrétisés, réécrivons l'équation de la concentration :

$$\begin{aligned} (\alpha - \beta U) \frac{\partial U}{\partial t} / &= D \vec{\nabla} \left[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U \right] && \text{(terme 1)} \\ &- \vec{\nabla} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right) && \text{(terme 2)} \\ &+ B && \text{(terme 3)} \end{aligned} \quad (2.40)$$

Le premier courant considéré est $(1 - \varphi) \vec{\nabla} U$. Pour le champ de phase φ on prend la moyenne sur les deux extrémités du lien. Par exemple, pour le lien $(i, i+1)$ on obtient

$$\left[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U \right]_{i \rightarrow i+1} = \left(\frac{2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i+1,j,k}}{2} \right) \left(\frac{U_{i+1,j,k} - U_{i,j,k}}{h} \right) \quad (2.41)$$

Pour les autres liens, nous procédons de la même manière. Par conséquent le terme 1 de l'équation 2.40 est discrétisé comme

$$\begin{aligned} \left(D \vec{\nabla} \left[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U \right] \right)_{i,j,k} &= \frac{D}{2h^2} \left[(2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i+1,j,k})(U_{i+1,j,k} - U_{i,j,k}) \right. \\ &+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i-1,j,k})(U_{i-1,j,k} - U_{i,j,k}) \\ &+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j+1,k})(U_{i,j+1,k} - U_{i,j,k}) \\ &+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j-1,k})(U_{i,j-1,k} - U_{i,j,k}) \\ &+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j,k+1})(U_{i,j,k+1} - U_{i,j,k}) \\ &\left. + (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j,k-1})(U_{i,j,k-1} - U_{i,j,k}) \right] \end{aligned} \quad (2.42)$$

D'autre part, la normale à l'interface $\vec{n} = -\frac{\vec{\nabla}\psi}{|\vec{\nabla}\psi|}$ est obtenue à partir des trois composantes de $\vec{\nabla}\psi$ qui sont calculées comme la moyenne des différences finies sur les deux extrémités d'une liaison donnée, $(i, i+1)$ par exemple. Les composantes perpendiculaires à la liaison s'écrivent

$$[\partial_y\psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i,j+1,k} - \psi_{i,j-1,k} + \psi_{i+1,j+1,k} - \psi_{i+1,j-1,k}}{4h} \quad (2.43)$$

$$[\partial_z\psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i,j,k+1} - \psi_{i,j,k-1} + \psi_{i+1,j,k+1} - \psi_{i+1,j,k-1}}{4h} \quad (2.44)$$

La composante parallèle s'écrit

$$[\partial_x\psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i+1,j,k} - \psi_{i,j,k}}{h} \quad (2.45)$$

Sur le lien $(i, i+1)$, le courant correctif $\vec{J} = \frac{1}{\sqrt{2}B\vec{n}}$ est discrétisé comme

$$\begin{aligned} [\sqrt{2}B\vec{n}]_{i \rightarrow i+1} &= -\left[(1 + \beta U) \frac{(1 - \varphi^2)}{2} \frac{\partial\psi}{\partial t} \frac{\vec{\nabla}\psi}{|\vec{\nabla}\psi|} \right]_{i \rightarrow i+1} \\ &= \frac{1}{2} \left[(1 + \beta U_{i,j,k}) \frac{(1 - \varphi_{i,j,k}^2)}{2} \partial_t \psi_{i,j,k} \right. \\ &\quad \left. + (1 + \beta U_{i+1,j,k}) \frac{(1 - \varphi_{i+1,j,k}^2)}{2} \partial_t \psi_{i+1,j,k} \right] \\ &\quad \times \left\{ \frac{-[\partial_x\psi]_{i \rightarrow i+1}}{(\sqrt{[\partial_x\psi]_{i \rightarrow i+1}^2 + ([\partial_y\psi]_{i \rightarrow i+1})^2 + ([\partial_z\psi]_{i \rightarrow i+1})^2})} \right\} \end{aligned} \quad (2.46)$$

On procède de la même manière pour les autres directions et on somme pour obtenir le courant correctif

$$\begin{aligned} \left(\vec{\nabla} \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right] \right)_{i,j,k} &= \frac{1}{h} \left\{ \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{i \rightarrow i+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{i \rightarrow i-1} \right. \\ &\quad \left. + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{j \rightarrow j+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{j \rightarrow j-1} \right. \\ &\quad \left. + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{k \rightarrow k+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right]_{k \rightarrow k-1} \right\} \end{aligned} \quad (2.47)$$

L'intégration temporelle est réalisée par la méthode d'Euler d'ordre un

$$\psi(t + \Delta t) := \psi(t) + \Delta t \partial_t \psi \quad (2.48)$$

$$U(t + \Delta t) := U(t) + \Delta t \partial_t U \quad (2.49)$$

où le symbole $:=$ représente l'égalité au sens des différences finies.

À trois dimensions, avec la discrétisation du laplacien (2.36), le critère de convergence de la méthode des différences finies nous impose la condition

$$\Delta t \leq \frac{h^2}{6\tilde{D}} \quad (2.50)$$

pour le pas de temps. Dans la pratique, Δt dépend de la variable $\xi = \frac{W_0}{d_0}$ puisque D est adimensionné comme $\tilde{D} = \frac{D\tau_0}{W_0^2}$ avec $\tau_0 = \frac{a_0 W_0^3}{D d_0}$. Les simulations numériques sont réalisées sur un réseau cubique de paramètre $h = 1.2$ [15]. Ce qui implique que

$$\Delta t \leq \frac{h^2}{6a_0\xi}. \quad (2.51)$$

Chapitre 3

Simulations en champ de phase

3.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de valider les hypothèses posées à partir des expériences de solidification équiaxe de l'alliage Al-Cu. Pour cela, les résultats des simulations numériques 3D en champ de phase réalisées au cours de mon stage sont exposés, analysés et interprétés.

Ce chapitre commence par l'étude du phénomène d'empoisonnement d'une dendrite soumise uniquement au champ d'interaction d'une autre dendrite similaire. Cette étape sera suivie par l'analyse de l'effet de la distance d'interaction sur la croissance équiaxe. Ceci devient possible en simulant l'évolution d'une structure inclinée par rapport au maillage avec des conditions aux limites distinctes selon les directions de croissance.

L'autre paramètre physique important qui est la gravité, sera inclus en troisième lieu. Afin de simuler son effet sur la croissance, on introduira un écoulement de soluté dans le liquide et on variera l'angle d'orientation des microstructures par rapport à l'axe d'advection.

3.2 Paramètres utilisés

Les résultats présentés dans cette partie sont obtenus avec une concentration initiale de $c_\infty = 1\%$ en cuivre et un taux de refroidissement de 1.2K/min. Pour cette concentration, la longueur capillaire d_0 définie par l'équation (1.9) est 10 fois plus grande que la longueur capillaire expérimentale. Pour cette raison, la largeur d'interface W_0 , qui est le paramètre d'adimensionnement, est assez élevée même pour une faible valeur de $\xi = W_0/d_0$, qui détermine également le pas temporel (2.51). Ainsi, le pas temporel est augmenté pour un pas de réseau identique, et le temps de calcul est considérablement réduit. D'autre part, le facteur d'anisotropie $\varepsilon_4 = 1\%$.

On retient dans la suite $\xi = 50$, pour une boîte de calcul parallélépipédique de $400 \times 20 \times 400$ points, et $\Delta t/\tau_0 = 0.22$ ce qui correspond aux paramètres physique $W_0 = 4.5 \mu\text{m}$, et $\Delta t = 1.53 \times 10^{-3}$ s.

3.3 Croissance et interaction solutale entre grains équiaxes

L'objectif de cette partie est d'expliquer le phénomène d'empoisonnement des dendrites observé dans les expériences.

Dans un premier temps, on ne tient compte que de l'interaction mutuelle entre deux grains équiaxes croissant l'un vers l'autre. Les résultats sont illustrés dans la figure (3.1).

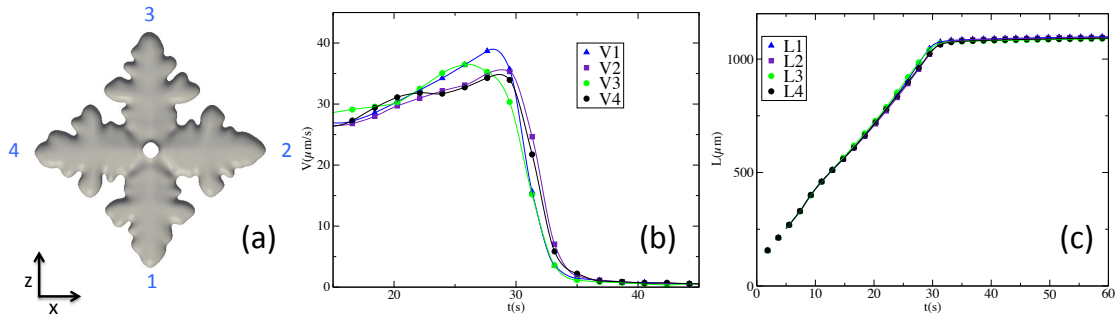


FIGURE 3.1 – Résultats de la simulation numérique en champ de phase d'une dendrite soumise à son propre champ d'interaction (a) forme de la dendrite (b) vitesses de croissance des pointes (c) longueurs des bras primaires

On observe tout d'abord que les quatre branches croissent d'une manière à peu près similaire, les faibles différences dans les valeurs des vitesses étant causées par le bruit imposé sur la température. En absence de gravité et de désorientation du germe initial, ce résultat est prévisible car le solide voit un milieu équivalent suivant toutes les directions de ses branches primaires (figure 3.2)

De plus, on constate que la longueur des bras primaires augmente durant la première phase de croissance pour atteindre une valeur limite. Ceci est dû à l'augmentation initiale du sous-refroidissement causée par le refroidissement de l'échantillon. Ce régime d'accélération est suivi d'un régime de décélération jusqu'à l'annulation des vitesses. Le second régime est lié à la diminution du sous-refroidissement Δ donné par ([16], fig (1.5))

$$\Delta = \frac{T_L(t) - T(t)}{(T_0 - T(t))(1 - k)} = \frac{c_\infty(t) - c_{tip}(t)}{c_{tip}(t)(k - 1)} \quad (3.1)$$

Au cours du temps, le soluté est rejeté à l'interface solide-liquide vers le côté liquide (figure (3.2)). De plus, le volume du liquide est réduit au cours de la solidification. Ainsi la concentration moyenne du cuivre c_∞ augmente jusqu'à atteindre la concentration à la pointe $c_{tip} = c_\infty/k$. À ce stade le sous-refroidissement lié à la vitesse de croissance V par la relation [16]

$$V = \frac{\sigma^* D}{2 d_0} \left(\frac{\Delta}{Ln\Delta} \right)^2 \quad (3.2)$$

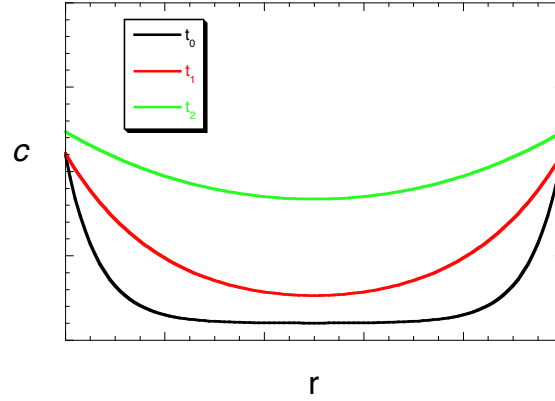


FIGURE 3.2 – Illustration schématique de l'interaction solutale de deux branches symétriques en fonction de la distance des deux points (conditions miroirs) à différents instants ($t_2 > t_1 > t_0$)

s'annule et entraîne l'annulation de la vitesse de croissance.

Ainsi, les résultats des simulations sont bien en concordance avec la théorie et l'expérience.

3.4 Influence d'une désorientation cristalline

Pour comprendre l'effet de l'orientation cristalline et de la portée de l'interaction solutale sur la croissance équiaxe, on a procédé à l'étude d'une structure inclinée avec différentes conditions aux limites.

D'une manière générale, les axes cristallins peuvent être représentés par les axes sphériques (fig 3.3). Dans ce repère, les composantes du vecteur normal à l'interface $\vec{n}(n_r, n_\theta, n_\varphi)$ sont exprimées en fonction des composantes cartésiennes $\vec{n}(n_x, n_y, n_z)$ comme suit :

$$n_r = n_x \sin \theta \cos \varphi + n_y \sin \theta \sin \varphi + n_z \cos \theta \quad (3.3)$$

$$n_\theta = n_x \cos \theta \cos \varphi + n_y \cos \theta \sin \varphi - n_z \sin \theta \quad (3.4)$$

$$n_\varphi = -n_x \sin \varphi + n_y \cos \varphi \quad (3.5)$$

3.4.1 Anisotropie de l'énergie de surface

Dans le repère des axes cristallins, la fonction d'anisotropie $a_s(n_r, n_\theta, n_\varphi)$ a la forme donnée par l'équation (2.23). Donc les composantes du vecteur d'anisotropie $\vec{A}(A_r, A_\theta, A_\varphi)$ sont données par l'équation (2.31) avec $l = r, \theta, \varphi$. Pour finir, on projette dans le repère cartésien ($\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z$) :

$$A_x = \sin \theta \cos \varphi A_r + \cos \theta \cos \varphi A_\theta - \sin \varphi A_\varphi \quad (3.6)$$

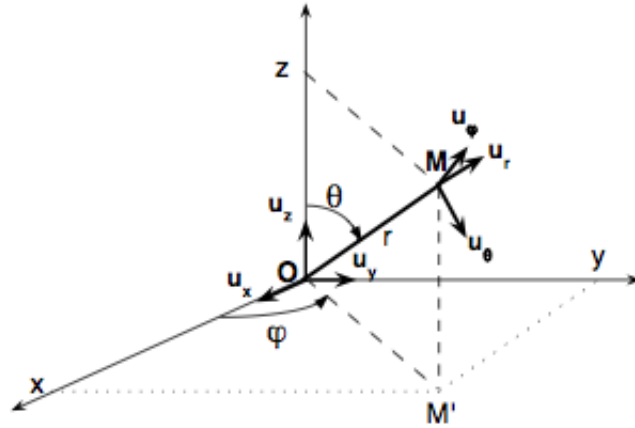


FIGURE 3.3 – Coordonnées sphériques

$$A_y = \sin \theta \sin \varphi A_r + \cos \theta \sin \varphi A_\theta + \cos \varphi A_\varphi \quad (3.7)$$

$$A_z = \cos \theta A_r - \sin \theta A_\theta \quad (3.8)$$

On s'est limité dans notre travail à une désorientation de $\theta = 17^\circ$ dans le plan (x, z) avec $\varphi = 0^\circ$. La forme de la dendrite est illustrée par la figure (3.4)

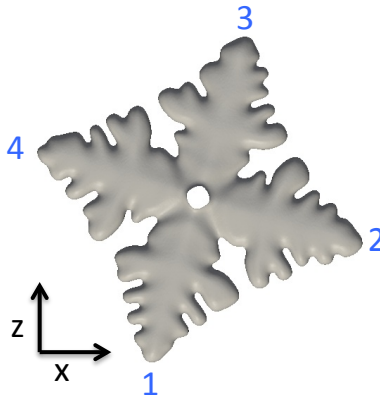


FIGURE 3.4 – Forme d'une dendrite inclinée de 17° et soumise à son propre champ d'interaction : résultat d'une simulation numérique en champ de phase

Cette figure montre que la croissance des bras primaires suit la direction des axes cristallins, ce qui nous permet de conclure que c'est l'énergie de surface qui sélectionne les directions de croissance.

3.4.2 Portée de l'interaction solutale

Cette partie est consacrée à l'étude de la portée de l'interaction solutale sans modifier les dimensions de la boîte de calcul. Cette technique nous permet de gagner du temps de calcul. Pour ce faire, on impose des conditions aux limites différentes comme suit :

- conditions aux limites périodiques suivant z (figure (3.2) pour r grand)
- conditions miroirs suivant x et y (figure (3.2))

L'inclinaison est la même que dans le paragraphe précédent.

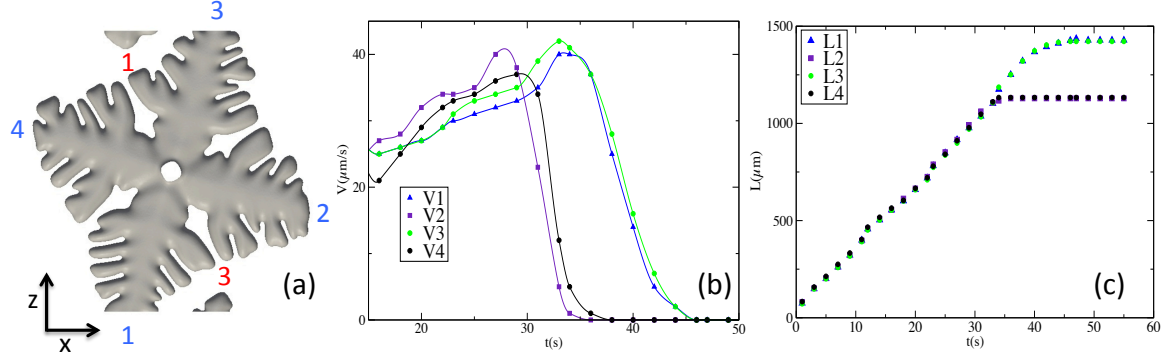


FIGURE 3.5 – Résultats de la simulation numérique en champ de phase d'une dendrite inclinée de 17° et soumise à son propre champ d'interaction (a) forme de la dendrite (b) vitesses de croissance des points (c) longueurs des bras primaires

La figure (3.5) montre que l'allure des vitesses et des longueurs des dendrites libres est identique pour les quatre branches. La différence réside dans la durée des régimes observés. En effet, les pointes 2 et 4 atteignent le pic de vitesse à un instant précoce par rapport aux pointes 1 et 3. On retrouve également cette différence sur les longueurs car les branches 1 et 3 continuent leur évolution même au delà de la boîte.

En s'appuyant sur la figure (3.2), on comprend que plus la distance entre deux pointes est grande moins le recouvrement entre les champs de concentration qu'elles induisent est grand.

Ainsi, comme le bras primaire 2 croît vers un bras symétrique par rapport à un plan miroir, leurs pointes se rapprochent mutuellement de telle sorte que la distance qui les sépare décroît assez rapidement. Ceci est également vrai pour la branche 4. Au contraire, les branches 1 et 3 les pointes ont tendance à s'éviter au cours de la croissance, ce qui diminue leur distance d'interaction.

Les résultats des simulations sont donc conformes à l'expérience.

3.5 Effet de la gravité

D'un point de vue physique, le cuivre est plus dense que l'aluminium, c'est pourquoi nous avons étudié l'effet de la gravité sur la diffusion du soluté [terme 2 de l'équation (1.4)]. Pour en tenir compte d'une manière simple dans les équations du champ de phase, on rajoute un terme proportionnel à la vitesse d'advection V_z et au gradient vertical de la concentration $\frac{\partial U}{\partial z}$ dans l'équation (2.35). On obtient

alors

$$\begin{aligned}
 (\alpha_k - \beta_k U) \frac{\partial U}{\partial t} &= (1 - \varphi) D \nabla^2 U - \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} D \vec{\nabla} \psi \vec{\nabla} U \\
 &\quad - \frac{1}{\sqrt{2}} \vec{n} \vec{\nabla} B + B \left(1 - \frac{\vec{\nabla} \cdot \vec{n}}{\sqrt{2}} \right) \\
 &\quad + 2V_z \frac{\partial U}{\partial z}.
 \end{aligned} \tag{3.9}$$

La conséquence de cette modification est illustrée sur la figure (3.6) Il apparaît

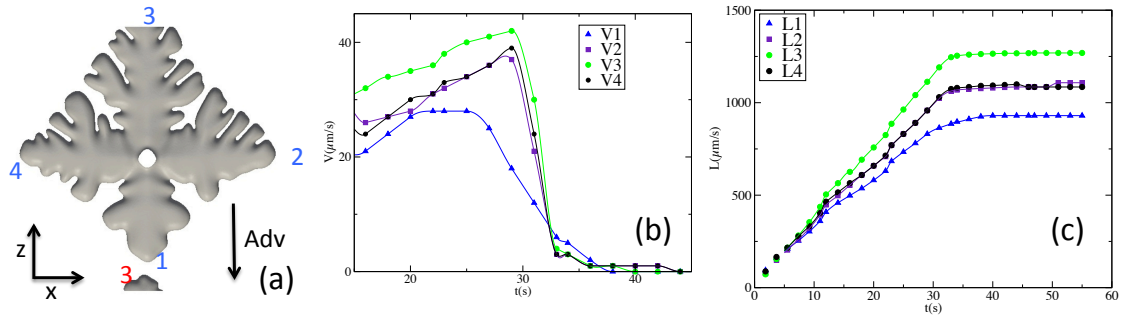


FIGURE 3.6 – Résultats de la simulation numérique en champ de phase d'une dendrite dans le champ de gravité soumise à son propre champ d'interaction (a) forme de la dendrite (b) vitesses de croissance des pointes (c) longueurs des bras primaires

clairement que la vitesse de la pointe 3 est nettement plus grande que les vitesses des pointes 2 et 4, elles-mêmes plus grandes que celle de la pointe 1. De plus, le comportement des pointes 2 et 4 n'est pas affecté par l'effet de la gravité (cf fig 3.1). Pour confirmer ces résultats, on a également représenté l'évolution des longueurs des bras primaires en fonction du temps.

On interprète la différence notable des résultats par rapport à la figure (3.1) par le fait que :

- la pointe 3 accélère davantage car la gravité entraîne instantanément le soluté rejeté à l'interface solide-liquide vers le bas, ainsi le gradient de concentration devant la pointe 3 (coté gauche de la figure 3.7) reste élevé tant qu'elle n'a pas atteint la pointe 1 .
- la gravité entraîne le soluté rejeté aux interfaces vers le bas de l'échantillon, ce qui abaisse le gradient de concentration devant la pointe 1 jusqu'à l'annuler (coté droit de la figure 3.7). Cette interprétation tient également pour les branches secondaires de la dendrite comme on le voit sur la figure (3.6) .

La relation (3.1) explique que le sous-refroidissement augmente dans le premier cas entraînant l'augmentation de V_3 jusqu'à ce que la pointe 3 atteigne la branche 1. Par contre, il diminue dans le second cas entraînant la diminution de la vitesse V_1 jusqu'à l'annuler bien avant que la pointe 1 n'atteigne la pointe 3.

Ainsi, les résultats de la simulation sont en bon accord avec l'expérience et la théorie.

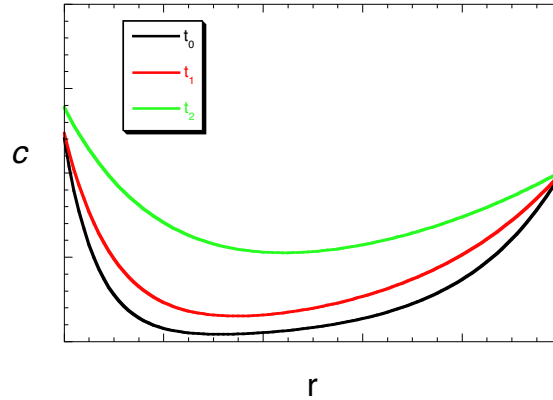


FIGURE 3.7 – Illustration schématique de l’interaction solutale de deux branches asymétriques en fonction de la distance des deux pointes (conditions périodiques) à différents instants

Ces résultats peuvent s’expliquer par un modèle dynamique simple : Dans le premier cas, la croissance est régie par deux forces qui s’ajoutent : la gravité et le sous-refroidissement. Alors que dans le second cas, les deux forces s’opposent jusqu’à se compenser parfaitement (palier de vitesse V_1).

3.6 Effet de la désorientation cristalline en présence de gravité

Dans la plupart des expériences de solidification équiaxe, l’orientation cristalline des germes solides qui se forment est arbitraire. Ils sont donc inclinés par rapport à la verticale et de plus le soluté est soumis à la gravité. Dans cette dernière partie, on considère donc la croissance d’une microstructure équiaxe inclinée en présence d’un flux advectif.

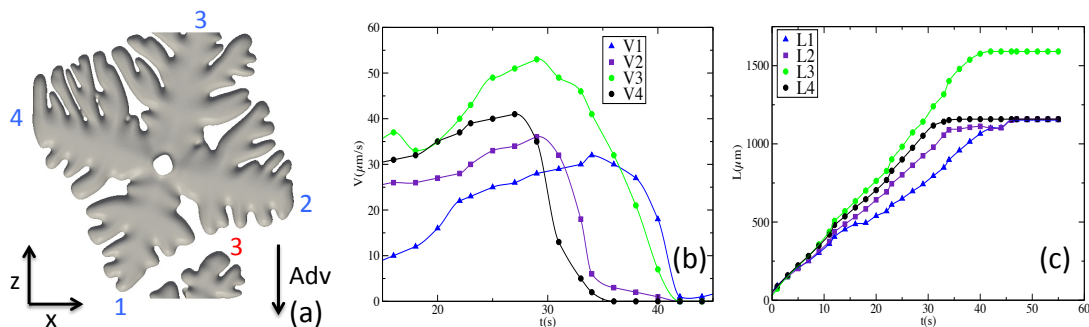


FIGURE 3.8 – Résultats de la simulation numérique d’une dendrite inclinée de 17° dans le champ de gravité, et soumise à son propre champ d’interaction (a) forme de la dendrite (b) vitesses de croissance des pointes (c) longueurs des bras primaires

Les résultats de cette partie résument l’ensemble des conclusions tirées des trois premières parties :

- La vitesse de croissance V_3 devient plus grande pour une branche inclinée que pour une branche verticale. Dans le premier cas, elle rencontre le flanc de la branche 2 à cause de la désorientation et dans le second cas elle rencontre plus tôt la pointe de la branche 1. La branche 3 inclinée a donc un parcours plus long et atteint une vitesse plus élevée conformément à nos conclusions précédentes sur la distance de l'interaction solutale.
- La vitesse de croissance V_2 (respectivement V_4) du germe incliné est plus petite (grande) par rapport à V_2 (V_4) du germe droit car le bras 2 (4) est empoisonné (aidé) par l'écoulement. Ceci s'explique par le fait que le gradient vertical de U n'est pas nul en présence d'une inclinaison. Ceci est également conforme à notre interprétation en terme de compétition entre les forces qui régissent la croissance.

Conclusion et perspectives

Les résultats de la simulation numérique à trois dimensions obtenus au cours de ce stage sont en bon accord qualitatif avec les résultats expérimentaux obtenus par l'équipe MCA de l'IM2NP, ce qui justifie la validité de l'utilisation de cette méthode de calcul. De plus, les modifications que j'ai effectuées dans le code existant sont justifiées physiquement. Ces modifications concernent essentiellement la dépendance du temps de relaxation τ en fonction de la température, la forme et la taille du germe initial, l'effet de la désorientation cristalline et de la gravité sur la croissance équiaxe.

Ce stage m'a été très profitable dans le sens où j'ai pu découvrir le monde de la recherche et le travail d'équipe. Il l'a été d'autant plus que les résultats obtenus au cours de ce travail ouvrent des perspectives vers l'obtention de résultats quantitatifs et vers une collaboration avec l'Institut Jean Lamour de Nancy (Ecole d'ingénieurs).

Les aspects quantitatifs auxquels je m'intéresserai durant mes trois années de thèse au sein de la même équipe concernent essentiellement le calcul des courbures et des vitesses des pointes en fonction du sous-refroidissement qui est donné par l'équation (3.1) et où la température du Liquidus dépend du temps. De plus, je justifierai la forme du terme advectif inclus dans le code et je prendrai en compte les effets de convection à trois dimensions. Je pourrai également augmenter progressivement la concentration du soluté et ainsi extrapoler mes résultats aux concentrations plus élevées utilisées dans les expériences.

Profitant de la grande adaptabilité de la méthode du champ de phase, j'attaquerai le problème de solidification dirigée du silicium photovoltaïque. L'objectif de cette seconde partie est la compréhension de la compétition entre les grains de silicium durant la solidification dirigée, pour l'amélioration du rendement des cellules solaires.

Bibliographie

- [1] JA. Spittle. *Int. Mater. Rev*, **51** :237, (2005).
- [2] M. Rappaz JA. Dantzig. *Solidification*. EPFL Press, Switzerland, (2009).
- [3] www.soliditice.inpg.fr.
- [4] G. Reinhart B. Bilia J. Baruchel A. Bogno, H. Nguyen-Thi. *Acta. Mater*, **61** :1303–1315, (2013).
- [5] P. Dery. Etude de la croissance des grains à l’aide d’un appareil de mesure électrique. Master’s thesis, université de Québec, (2011).
- [6] Cours ”de la microstructure aux propriétés”. Université libre de Bruxelles, (2007).
- [7] WJ. Rappel A. Karma. *Phy. Rev. E*, **53** :R3017–R3020, (1996).
- [8] EM. Lifshitz LD. Landau. *Physique statistique*. Mir, (1967).
- [9] A. Karma. *Phy. Rev. Letters*, **87** :115701, (2001).
- [10] WJ. Rappel A. Karma. *Phy. Rev. E*, **57** :4323–4349, (1998).
- [11] A. Karma M. Plapp B. Echebarria, R. Folch. *Phys. Rev. E*, **70** :061604, (2004).
- [12] GB. McFadden A. Wheeler. *Proc Roy Soc Lond*, **A453** :115701, (1997).
- [13] K. Glasner. *J. Compt. Phys*, **174**, (2001).
- [14] T. Ducouso JM. Debierre K. Kassner, R. Guérin. *Phys. Rev. E*, **82** :021606, (2010).
- [15] J. Ghmadh. PhD thesis, Aix-Marseille Université, (2014).
- [16] P. Pelcé. *Théorie des formes de croissance*. EDP Sciences, (2000).