



HAL
open science

Solidification de monograins base nickel : microstructure et qualité cristalline

Nathalie Siredey

► **To cite this version:**

Nathalie Siredey. Solidification de monograins base nickel : microstructure et qualité cristalline. Matière Condensée [cond-mat]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1991. Français. NNT : 1991INPL122N . tel-01751016

HAL Id: tel-01751016

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751016v1>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

[M] 1991 SIREDEY, N. 1

**SOLIDIFICATION DE MONOGRAINS BASE NICKEL :
MICROSTRUCTURE ET QUALITE CRISTALLINE**

THESE

Présentée devant

L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
pour obtenir le titre de
DOCTEUR DE L'I.N.P.L
(Science et Génie des Matériaux)

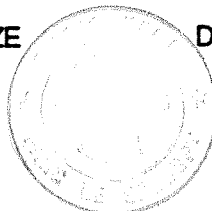
par

Nathalie Siredey
(Ingénieur INSA-Lyon)

soutenue le **13 décembre 1991** devant la Commission d'Examen

JURY

MM	G. BECK	Président
	M. RAPPAZ	Rapporteur
Mme	H. BURLET	Rapporteur
MM.	J. PHILIBERT	Examineur
	G. LESOULT	Examineur
	R. TINTILLIER	Examineur
	J. LACAZE	Directeur de thèse



AVANT-PROPOS

Cette étude a été réalisée à l'Ecole des Mines de Nancy, au Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques, dirigé par Monsieur SIMON, directeur de recherche au CNRS, dans l'équipe de Monsieur le professeur LESOULT. Elle a été faite dans le cadre du groupement scientifique "Microstructure et Propriétés des Superalliages Monocristallins".

Je voudrais exprimer ici toute ma reconnaissance à Monsieur LACAZE, chargé de recherche au CNRS, qui a dirigé ce travail, pour ses compétences scientifiques et ses qualités humaines. Je le remercie vivement du suivi qu'il a porté à cette étude et de toute l'expérience dont il m'a fait profiter.

Je remercie Madame LAMANTHE et particulièrement Monsieur TINTILLIER, ingénieurs de recherche de la SNECMA, pour l'intérêt qu'ils ont témoigné à ce travail. Je remercie la SNECMA pour les échantillons fournis et les diverses expériences réalisées chez elle.

Je tiens à remercier Monsieur BECK, directeur de recherche au CNRS, directeur du PIRMAT, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury de thèse.

Monsieur le professeur RAPPAZ et Madame BURLET, maître-assistant, ont accepté d'être rapporteurs de cette thèse ; qu'ils en soient remerciés.

J'exprime toute ma reconnaissance à Messieurs les professeurs PHILIBERT, LESOULT et Monsieur TINTILLIER pour avoir bien voulu faire partie du jury. Je tiens à remercier également Monsieur LESOULT pour les discussions que nous avons pu avoir.

Je tiens à remercier très sincèrement les différents laboratoires dans lesquels des expériences ont été pratiquées, ainsi que les personnes qui m'ont aidée à les réaliser.

- Je remercie l'Institut Lauë-Langevin (ILL) à Grenoble, Monsieur MAGERL, physicien ILL, ainsi que Monsieur BASTIE, chargé de recherche au CNRS et Monsieur BELLET, maître de conférences, du Laboratoire de Spectrométrie Physique (LSP) de St Martin d'Hères, avec qui de fructueuses discussions ont eu lieu, pour leur aide dans la diffractométrie gamma.

- Je remercie également le Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique (LURE) à Orsay et Madame SAUVAGE, directeur de recherche au CNRS, pour les expériences de topographie X. Monsieur GEORGE, directeur de recherche au CNRS

et Monsieur le professeur MICHEL du Laboratoire de Physique du Solide (LPS) à Nancy m'ont aidée à la mise en route de la technique et à l'interprétation des résultats.

- Enfin je remercie Monsieur CLAUDE de l'Université de Nancy I pour l'analyse automatique à la microsonde.

J'exprime également tous mes remerciements à Madame DENIS, chargée de recherche au CNRS, et Monsieur BOUFOUSSI pour avoir réalisé les calculs thermomécaniques nécessaires à cette étude.

Je suis reconnaissante à l'ensemble des ingénieurs et techniciens, du LURE, de L'ILL, du LPS et du laboratoire, en particulier Messieurs HAEUSSLER, BOREUX, BOURGRAFF et COLLERET pour l'aide apportée.

J'exprime enfin toute ma gratitude à Madame HUGUIN, Messieurs CASTRO et FALK, Mademoiselle GALANT, ainsi qu'à l'ensemble des personnes du laboratoire pour leur accueil chaleureux.

SOMMAIRE

TABLE DES TABLEAUX.....	v
SYMBOLES	vii
Métallurgie.....	vii
Microanalyse X - Statistiques.....	viii
Indices	ix
Cristallographie.....	ix
Mécanique	ix
Chapitre I. INTRODUCTION	1
Chapitre II. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	4
II.1. Présentation d'une dendrite.....	5
II.1.1. Aspect métallurgique	5
a. Morphologie du front de solidification	5
b. Sursaturation et surfusion à la pointe des dendrites.....	6
c. Rayon de courbure à la pointe d'une dendrite.....	7
II.1.2. Aspect cristallographique.....	9
a. Conditions de croissance et structures de solidification.....	10
b. Croissance dendritique différente de $\langle 001 \rangle$	11
c. Anisotropie de la croissance dendritique.....	11
II.2. La société des dendrites	13
II.2.1. Arrangement dendritique.....	13
a. Espacement primaire	13
b. Arrangement dendritique.....	15
c. Compétition de croissance	17
II.2.2. Microségrégations.....	18
II.2.3. Evolution de la qualité cristalline	20
a. Défauts observés lors d'une croissance [001]	21
b. Effet des conditions de croissance.....	24
c. Effet des traitements thermiques.....	27
Chapitre III. TECHNIQUES EXPERIMENTALES	29
III.1. Le matériau brut de solidification.....	30
III.1.1. Données physiques et chimiques.....	30

III.1.2.	Précipitation.....	31
III.2.	Réalisation des éprouvettes.....	31
III.2.1.	Thermique.....	32
a.	Dans le four.....	32
b.	Dans une pièce.....	33
III.2.2.	Forme des éprouvettes.....	33
a.	Sélection et repères cristallographiques.....	33
b.	Forme des éprouvettes.....	34
III.3.	Techniques d'investigation.....	35
III.3.1.	Etude des ségrégations.....	35
a.	Conditions opératoires.....	36
b.	Macroségrégations.....	39
c.	Compositions au cœur des dendrites.....	39
d.	Microségrégations.....	40
e.	Résultats.....	40
III.3.2.	Métallographie.....	43
a.	Attaque métallographique.....	43
b.	Mesure de densités d'axes.....	43
c.	Arrangement dendritique.....	44
III.3.3.	Topographie X.....	45
a.	Quelques rappels cristallographiques.....	45
b.	Le rayonnement synchrotron du LURE.....	46
c.	Principe de la technique.....	47
d.	Topographie en faisceau blanc.....	48
e.	Topographie en faisceau monochromatique.....	49
III.3.4.	Diffraction gamma.....	51
a.	Mise en oeuvre.....	51
b.	Intérêt de la technique.....	52
c.	Conditions opératoires.....	53
d.	Précautions et limites d'emploi.....	54
e.	Utilisation des techniques cristallographiques.....	55
Chapitre IV.	ANALYSE METALLURGIQUE.....	56
IV.1.	Microstructure.....	57
IV.1.1.	Formation des structures.....	57
a.	Mécanismes de croissance du réseau dendritique.....	57
b.	Changements de section.....	57
c.	Sections constantes.....	60

IV.1.2.	Caractérisation quantitative du réseau dendritique	6 1
a.	Dans la zone de séparation ménagée.....	6 1
b.	Evolution avec la distance au sélecteur.....	6 2
c.	Evolution sur sections transversales dans les branches	6 2
d.	Conclusion.....	6 4
IV.1.3.	Continuité du réseau dendritique.....	6 4
a.	Continuité du réseau dendritique.....	6 5
b.	Apparitions et disparitions d'axes primaires à courtes distances.....	6 6
c.	Evolution du réseau dendritique à moyennes distances.....	6 8
IV.2.	Microségrégations	6 9
IV.2.1.	Sursaturation à la pointe.....	6 9
a.	Résultats.....	6 9
b.	Comparaison avec les modèles.....	7 1
IV.2.3.	Microségrégations et chemin de solidification	7 8
a.	Microségrégations	7 8
b.	Cinétique de solidification	8 1
Chapitre V.	ETUDE DE LA QUALITE CRISTALLINE	8 3
V.1.	Les différents types de mosaïcité	8 4
V.1.1.	Les dendrites.....	8 4
a.	Désorientations entre dendrites.....	8 4
b.	Contraste observé dans la dendrite.....	8 5
V.1.2.	Composantes de la mosaïcité	8 8
V.1.3.	Les sous-joints de grains	8 9
a.	Mise en évidence par diffraction gamma.....	8 9
b.	Etude des sous-joints par topographie X monochromatique.....	9 0
c.	Mise en évidence par métallographie.....	9 1
V.1.4.	Mosaïcité interne aux sous-grains.....	9 1
V.1.5.	Evolution des sous-grains	9 3
a.	Présence des sous-grains dès la zone de division	9 3
b.	Augmentation de la désorientation avec la distance.....	9 4
c.	Augmentation de la mosaïcité avec la distance.....	9 4
V.1.6.	Conclusion.....	9 4
V.2.	Qualité cristalline des débuts de pièces.....	9 5
V.2.1.	Les sélecteurs	9 5
V.2.2.	La zone de séparation	9 6

V.2.3.	Discussion : hypothèse de formation des secteurs.....	97
V.3.	Effet de la forme des pièces	99
V.3.1.	Eprouvettes à 4 branches	99
a.	Désorientations à l'échelle macroscopique.....	99
b.	Mosaïcité interne aux branches	99
V.3.2.	Eprouvettes à quatre branches - sélection à 45°.....	100
V.3.3.	Conclusion	101
Chapitre VI.	DISCUSSION DES RESULTATS.....	103
VI.1.	Préambule	104
VI.2.	Evolution des structures	104
VI.3.	Formation des secteurs.....	106
VI.4.	Origine des désorientations	108
VI.4.1.	Hypothèse thermomécanique.....	108
VI.4.2.	Evolution de la qualité cristalline avec la distance au début de la pièce.....	110
VI.4.3.	Effet de forme.....	111
Chapitre VII.	CONCLUSION.....	113
	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	116
	ANNEXES	122
	Annexe A : Application aux alliages multiconstitués du modèle d'Ivantsov de redistribution de soluté autour d'une pointe de dendrite	123
	Annexe B : Simulation des moirés	126
	Annexe C : Macroségrégations.....	129
	Annexe D : Données pour l'étude du comportement mécanique du superalliage AM1 à haute température	132
D.1.	Coefficient de dilatation linéaire a.....	132
D.2.	Comportement élastique.....	134
a.	Etude des modules d'Young ou des complaisances.....	134
b.	Etude de la limite élastique à 0,2% de déformation σ_E	137
D.3.	Utilisation du code de calcul.....	138
FIGURES	139

TABLE DES TABLEAUX

Tableau II-1 : valeurs des désorientations obtenues sur des barreaux cylindriques pour différentes conditions de croissances.....	26
Tableau III-1 : teneurs massiques des éléments d'alliage dans l'AM1.....	30
Tableau III-2 : valeurs des coefficients de partage et des pentes de liquidus, d'après [53].....	31
Tableau III-3 : conditions de dosage par microanalyse X des différents éléments.	37
Tableau III-4 : coefficients de correction donnés par les programmes ZAF et PAP.....	38
Tableau III-5 : incertitudes relatives et absolues, liées aux fluctuations statistiques du rayonnement X.	41
Tableau III-6 : comparaison des valeurs de teneurs massiques de l'échantillon d'AM1 homogénéisé, obtenues par voie chimique et par mesures réalisées avec la microsonde non automatique.	43
Tableau IV-1 : variation de la densité d'axes sur sections transversales. Les densités sont données en mm ⁻² , et mesurées sur des sections situées vers le milieu des branches.....	63
Tableau IV-2 : teneurs moyennes (en % massique) des cœurs de dendrites et sursaturations pour chaque élément d'alliage et pour différentes sections.....	71
Tableau IV-3 : rayons de courbure prédits par le modèle de Bobadilla et al. et mesurés par Chehaïbou dans différents cas d'alliages et de conditions de croissance.....	72
Tableau IV-4 : données physiques et chimiques de l'alliage binaire "équivalent" à l'AM1.....	73
Tableau IV-5 : sursaturations obtenues pour différents coefficients de diffusion dans le liquide.....	74
Tableau IV-6 : revue bibliographique des coefficients de diffusion à l'état solide des éléments dans le nickel.	76
Tableau IV-7 : valeurs de ($\alpha.k$) obtenues à partir des données de la littérature.	77
Tableau IV-8 : valeurs des compositions moyennes, de celles des centres des dendrites et des pointés englobant des plages eutectiques, après vérification sur micrographies.....	80
Tableau IV-9 : valeurs du coefficient de partage à l'équilibre et du coefficient de partition dans l'AM1, pour les différents éléments d'alliage.....	80

Tableau V-1 : valeurs estimées des paramètres de maille des phases γ et γ' au centre des dendrites et dans les zones de fin de solidification.	86
Tableau V-2 : comparaison de la qualité cristalline et de son évolution avec la distance au sélecteur dans les différentes éprouvettes.....	102
Tableau A-1 : valeurs des données utilisées dans la résolution numérique de l'équation donnant la sursaturation et de la surfusion à la pointe des dendrites en fonction des conditions de croissance.....	125
Tableau C-1 : composition massique et coefficient de variation de sections transversales à différentes hauteurs dans l'une des branches de l'éprouvette à deux branches.....	130
Tableau C-2 : composition massique et coefficient de variation de sections dans une éprouvette à quatre branches.....	131
Tableau D-1 : valeurs de α en fonction de la température.....	133
Tableau D-2 : valeurs des modules d'Young en fonction de la température.....	135
Tableau D-3 : valeurs de $\sigma_{E<001>}$ pour quelques températures.....	137

SYMBOLES

Métallurgie

C_0	composition atomique nominale, pour un alliage binaire
C_l^*	composition atomique du liquide à l'interface solide-liquide (alliage binaire)
C_s^*	composition atomique du solide à l'interface solide-liquide (alliage binaire)
C_t	composition atomique du liquide à la pointe de la dendrite (alliage binaire)
D^l	coefficient de diffusion à l'état liquide, pour une température proche du liquidus (alliage binaire)
D_i^s	coefficient de diffusion à l'état solide dans le nickel pour l'élément d'alliage i
D_{0i}^s	terme pré-exponentiel de la diffusion à l'état solide de l'élément d'alliage i
f_s	fraction volumique de métal déjà solidifié
G_c	gradient chimique dans le liquide à l'interface
G	gradient thermique dans la zone pâteuse
k	coefficient de partage à l'équilibre (alliage binaire)
k_i	coefficient de partage à l'équilibre pour l'élément d'alliage i
m	pente de liquidus (alliage binaire)
m_i	pente de la nappe de liquidus pour l'élément i
n_p	densité d'axes primaires
p	Péclet solutal
Q_i	énergie d'activation dans l'équation donnant la diffusion à l'état solide pour l'élément i
r	constante des gaz parfaits
R	rayon de courbure à la pointe des dendrites
R_e	rayon de courbure à la pointe donné par le critère de surfusion minimum
R_i	rayon de courbure à la pointe donné par le critère de stabilité marginale
T	température
T_l	température de liquidus de l'alliage à la composition nominale
$T_{eutect.}$	température de fin de solidification, à l'eutectique
t_f	temps local de solidification
V	vitesse d'avancée du front de solidification (en cm/s)
V_r	vitesse de refroidissement (en K/s)
w_l^*	titre massique du liquide à l'interface solide-liquide (alliage binaire)
$w_{\lambda/2}$	titre massique au centre de l'espace interdendritique
$^{\circ}w$	titre massique nominale (alliage binaire)

$^{\circ}w_i$	titre massique pour chaque élément d'alliage i
w^s_i	titre massique au centre de la dendrite pour l'élément i
α	paramètre d'homogénéisation (alliage binaire)
α_i	paramètre d'homogénéisation pour l'élément d'alliage i
$\dot{\varepsilon}$	vitesse de développement de l'amplitude de la perturbation d'un front plan
ε	amplitude de la perturbation d'un front plan
ϕ	fonction d'Ivantsov
Γ	paramètre de Gibbs-Thompson
λ	espacement effectif entre axes primaires dendritiques
λ_1	espacement moyen ou théorique entre axes primaires dendritiques
λ_2	épaisseur des bras secondaires de dendrites
$\lambda_{Max.}$	espacement maximum des espacements primaires observés
$\lambda_{min.}$	espacement minimum des espacements primaires observés
λ_s	longueur d'onde minimale de perturbation instable vis-à-vis d'un front plan
σ^*	paramètre intervenant dans l'équation II-8
ξ	terme correctif dans l'équation de Trivedi (IV-4)
ζ_c	défini par l'équation II-8
Ω'	grandeur mesurée sur échantillon solidifié pour déterminer la sursaturation
Ω'_i	grandeur mesurée pour déterminer la sursaturation pour chaque élément i
Ω	sursaturation à la pointe des dendrites
ΔT_0	intervalle de solidification à l'équilibre, à la composition C_0 (alliage binaire)
ΔT_c	surfusion constitutionnelle
ΔT_k	surfusion cinétique
ΔT_m	intervalle de sommation en température pour la discrétisation d'une intégrale
ΔT_r	surfusion de courbure
ΔT_s	intervalle de solidification de l'alliage
ΔT_{th}	surfusion thermique

Microanalyse X - Statistiques

c	rapport d'intensités nettes
I	intensité nette
I_{BF}	intensité due au bruit de fond à la longueur d'onde du pic étudié
I_p	intensité recueillie pour la longueur d'onde du pic étudié
N	nombre brut d'impulsions reçues
t	temps de comptage
V_c	incertitude relative sur le rapport c : écart-type σ_c divisé par la moyenne c

V_X incertitude relative sur la valeur de l'intensité nette : écart-type σ_X divisé par l'intensité I_X , avec X égal à E ou T

Indices

BF bruit de fond
E échantillon
P pic
T témoin

Cristallographie

a a_γ ou a_γ paramètre de maille cubique du réseau cfc de chacune des deux phases
d distance entre plans réticulaires. Dans un réseau cubique, $d = a / (h^2+l^2+k^2)^{0,5}$ avec h,k et l indices de Miller, de même parité dans le cas d'un réseau cubique faces centrées.
n ordre de la réflexion : n est un nombre entier
p approximation au premier ordre de la mosaïcité entre deux dendrites
 δ écart paramétrique relatif de maille entre les phases γ et γ'
 $\delta\theta$ plage d'angles de Bragg dans laquelle la diffraction des plans étudiés peut avoir lieu
 Φ angle entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon
 λ longueur d'onde
 θ angle de Bragg
 Ω_1 rotation autour de la normale aux plans diffractants
 Ω_2 rotation autour de la normale au plan d'incidence
 Ω_3 rotation autour d'un axe perpendiculaire au plan (Ω_1, Ω_2)
 Ω vecteur caractérisant les désorientations rencontrées
 ω angle de rotation correspondant à un profil de diffraction gamma
 $\Delta\alpha$ distance angulaire entre deux dendrites pour la rotation autour de l'axe $[\bar{1}\bar{1}0]$
 $\Delta\beta$ distance angulaire entre deux dendrites pour la rotation autour de $[\bar{1}10]$
 $\Delta\lambda$ variation de longueur d'onde

Mécanique

σ_θ contrainte équivalente
 $\sigma_{\theta\theta}$ contrainte tangentielle
 σ_{rr} contrainte radiale
 σ_{zz} contrainte axiale

Chapitre 1

INTRODUCTION

Les superalliages base-nickel pour pièces monocristallines, tel l'AM1, ont été définis pour la fabrication de pièces destinées aux étages les plus chauds des turbines de turboréacteurs. Ce type de matériau se durcit par précipitation, et contient à température ambiante environ 70% en volume de précipités. Du fait de ce fort durcissement, seule la technique de coulée à cire perdue peut être utilisée pour réaliser des pièces aux formes complexes. Les pièces monograins sont obtenues en solidification dirigée, avec leur axe principal parallèle à la direction $\langle 001 \rangle$ du matériau. L'anisotropie des propriétés mécaniques des superalliages base-nickel, qui se traduit notamment par un faible module d'Young dans la direction $\langle 001 \rangle$, est particulièrement favorable vis à vis de la fatigue oligocyclique [1]. La possibilité de fabrication de pièces monogranulaires permet d'envisager une augmentation de la température de fonctionnement des turbines. En effet, les éléments renforçateurs de joints de grains qui étaient antérieurement nécessaires, ont pu être éliminés dans les alliages modernes, conduisant à une augmentation de leur température de solvus et de solidus. Pour des raisons de coût de fabrication, de possibilité du four et d'impératifs de qualité cristalline, la solidification industrielle a lieu dans le domaine de croissance dendritique.

Des défauts rédhibitoires, qui ne seront pas éliminés par les traitements thermiques, peuvent survenir lors de la solidification. L'un des défauts majeurs est la macroségrégation qui, outre son effet sur les caractéristiques mécaniques, est souvent associée à l'apparition de grains parasites par recristallisation durant les traitements thermiques. Un autre défaut à éviter absolument, si l'on veut conserver aux pièces leur intégrité en service, est l'apparition de joints de grains puisque les éléments renforçateurs ont été éliminés de la composition de l'alliage. On peut distinguer deux types de joints de grains : ceux provenant de la formation de grains parasites, qui n'ont aucun rapport d'orientation cristallographique avec le grain principal, et ceux associés à l'existence de sous-grains.

L'étude porte sur la formation et l'évolution de ce dernier type de joints de grains, lors de la solidification industrielle de pièces de forme complexe, dans le but de comprendre leur origine. L'étude a également porté sur l'évolution de la qualité cristalline à l'intérieur des sous-grains. Ces évolutions du réseau cristallographique des pièces monograins sont comparées à l'évolution de la solidification lors de la coulée. Celle-ci a été étudiée au travers des microségrégations et des structures de solidification résultant des conditions de croissance, sur des échantillons bruts de coulée.

Ce travail a été réalisé dans le cadre du groupement scientifique "Microstructure et Propriétés des Superalliages Monocristallins" regroupant des industriels et des laboratoires universitaires. Les pièces modèles étudiées ont été coulées dans des conditions

quasi-industrielles à la SNECMA. Plus précisément, un four expérimental de laboratoire a été utilisé, non réellement représentatif de conditions industrielles. Nous avons collaboré étroitement avec le Laboratoire de Spectrométrie Physique (LSP) de St Martin D'Hères et le Laboratoire de Physique des Solides (LPS) de Nancy. Une partie des expériences se sont déroulées au LURE (Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique) à Orsay, pour la topographie X, et à l'ILL (Institut Laue-Langevin) à Grenoble, pour la diffraction gamma.

Le manuscrit se décompose en cinq chapitres principaux. La première partie permettra de passer en revue la littérature sur la solidification dendritique au niveau de l'interface liquide/solide tant d'un point de vue métallurgique que du point de vue cristallographique. Les paramètres comme l'espacement entre axes primaires, typiques de la solidification dirigée, seront étudiés. On s'attachera notamment à décrire les situations qui entraînent une variation de cet espacement primaire. Les équations décrivant les microségrégations caractéristiques de la solidification dendritique seront également passées en revue. Enfin, on présentera les défauts cristallins déjà rencontrés par d'autres auteurs lors de la solidification dirigée de barreaux cylindriques monograins. Dans le deuxième chapitre, les techniques d'investigation utilisées seront décrites. L'aspect pratique de l'emploi de celles-ci sera souligné. Trois types principaux de techniques ont été utilisés : la microsonde de Castaing, la métallographie et des techniques cristallographiques comme la diffraction de rayons X (technique de surface) et la diffraction de rayons gamma (technique de volume).

Le premier chapitre de résultats traite de la formation des structures métallurgiques et de leur évolution tant quantitative que qualitative avec la distance au sélecteur. On sépare les débuts de pièces des zones de croissance en régime permanent dans les branches des éprouvettes. A l'échelle de quelques dendrites, les microségrégations témoignent du déroulement de la solidification et du refroidissement. Le deuxième chapitre de résultats présente l'aspect cristallographique de la solidification. Différents types de défauts de qualité cristalline existent dans les éprouvettes et sont analysés à l'échelle de la dendrite, de quelques centaines de dendrites et enfin à l'échelle de la pièce. Les résultats cristallographiques obtenus sont comparés aux résultats métallographiques ; ceci permet de comprendre la formation des défauts cristallins. On note une influence de la forme de la pièce sur la qualité cristalline. Cette influence, ainsi que l'évolution au cours de la solidification de la qualité cristalline, sont expliquées par une hypothèse d'effets thermomécaniques. Nous discuterons dans le chapitre suivant de cette hypothèse, au moins qualitativement, en s'appuyant sur des modélisations.

Chapitre 11

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

II.1. Présentation d'une dendrite

II.1.1. Aspect métallurgique

a. *Morphologie du front de solidification*

Les pièces industrielles qui nous concernent sont réalisées en solidification dirigée, c'est-à-dire en solidifiant le métal suivant une direction choisie, par exemple la direction verticale. La morphologie de l'interface solide/liquide détermine la création de défauts, les ségrégations, etc... Cette morphologie varie en fonction de la composition nominale de l'alliage C_0 et des conditions de croissance ; elle dépend en particulier du gradient thermique G à l'interface solide/liquide et de la vitesse V d'avancée du front de solidification. A très faibles vitesses de croissance, l'alliage se solidifie en front plan. A partir d'une valeur critique du rapport $C_0.V/G$, la solidification a lieu dans le domaine cellulaire [2]. L'interface prend alors l'aspect d'un ensemble de doigts de solide dirigés vers le liquide, perpendiculairement au front de solidification, disposés de façon compacte et régulière [3]. Pour des valeurs du rapport $C_0.V/G$ supérieures, les structures de solidification rencontrées sont ramifiées et appelées dendrites, mais restent colonnaires, comme celles montrées sur la figure II-1 [4]. Au niveau industriel, le domaine de croissance des pièces correspond à ce domaine dendritique ; c'est donc cette solidification qui fera l'objet de notre étude.

Ainsi que le présente la figure II-1, les pointes des axes primaires des dendrites croissent vers le liquide, tandis qu'en-deçà la solidification se poursuit par mûrissement et croissance dans les espaces interdendritiques de bras secondaires et éventuellement de bras tertiaires. Pour un matériau cubique faces centrées comme l'AM1, de même que les axes primaires, les bras dendritiques s'étendent dans les directions cristallographiques cubiques $\langle 001 \rangle$. Dans un monograin, dans lequel le réseau cristallin a partout quasiment la même orientation, l'arrangement des dendrites visible sur des sections transversales, perpendiculaires à la direction de tirage de la pièce, et donc à la direction de croissance du solide, apparaît homogène mais non régulier (figure II-2).

Les pointes des dendrites correspondent au premier dépôt de solide, celui qui se trouve le plus en avant dans le liquide. Pour comprendre la croissance dendritique, il est intéressant tout d'abord d'étudier le cas d'une dendrite isolée, sans se préoccuper d'une possible influence de l'existence de dendrites voisines. Pour des raisons de clarté, l'alliage est supposé binaire.

b. Sursaturation et surfusion à la pointe des dendrites

La force motrice de la croissance dendritique est la surfusion existant à la pointe, définie par la différence entre la température de liquidus de l'alliage à C_0 et la température réelle de la pointe de dendrite. Cette surfusion provient de différentes contributions :

1) la surfusion thermique ΔT_{th} , associée à la chaleur latente de solidification.

2) la surfusion de soluté ΔT_c , ou surfusion constitutionnelle. Cette surfusion a été décrite initialement par Rutter et Chalmers [2,5]. Si l'on estime que le solide qui se dépose est en équilibre avec le liquide à l'interface, la composition du solide C_s^* est alors différente de celle du liquide C_l^* , et donnée par :

$$C_s^* = k \cdot C_l^* \quad (II-1)$$

où k est le coefficient de partage à l'équilibre.

La solidification entraîne donc un rejet (dans le cas où $k < 1$) de soluté dans le liquide devant le solide. En considérant que la diffusion est limitée dans le liquide, une couche de liquide ayant une composition différente de la composition initiale C_0 - et donc une température de liquidus différente - va se former devant le solide. Pour un gradient thermique dans le liquide à l'interface inférieur à une certaine valeur, la température réelle du liquide sera plus basse que la température de liquidus dans la couche limite de diffusion : il y a alors surfusion constitutionnelle. Dans le cas de la dendrite, le rejet de solide se fait autour de la pointe. Le taux de rejet, et donc la surfusion, est alors influencé par la forme de la pointe.

3) la surfusion de courbure ΔT_r . Cette surfusion est induite par l'existence d'une interface solide/liquide courbe.

4) la surfusion cinétique interfaciale ΔT_k d'attachement des atomes.

En croissance colonnaire, seul cas qui nous intéresse, le refroidissement de la pièce a lieu à travers le solide. Dans ces conditions, la chaleur latente de solidification s'évacue directement à travers le métal solide et n'intervient donc pas dans le calcul de la surfusion, au contraire de ce qui se passe dans la croissance équiaxe, où le front de solidification croît en bain surfondu. Compte tenu des conditions de croissance rencontrées dans la plupart des cas pour les métaux, la surfusion d'origine cinétique ainsi que, souvent, celle de courbure, sont négligées. La principale contribution à la force motrice de croissance dendritique est donc la surfusion constitutionnelle.

La surfusion de soluté est directement reliée à la sursaturation Ω dont la définition est illustrée par la figure II-3 :

$$\Omega = \frac{C_1^* - C_0}{C_1^* - C_s^*} \quad (11-2)$$

La relation liant la surfusion à la sursaturation est :

$$\Delta T_c = m \cdot C_0 \left(1 - \frac{1}{1 - \Omega \cdot (1 - k)} \right) \quad (11-3)$$

Ivantsov [7] a, le premier, résolu mathématiquement le problème de la diffusion autour d'un solide aciculaire. En appliquant sa solution à la diffusion de soluté autour d'une pointe de dendrite ayant la forme d'un parabolôïde de révolution et en supposant l'interface isotherme, donc d'isoconcentration, la sursaturation est reliée au rayon de courbure de la pointe R et à la vitesse d'avancée du front de solidification :

$$\Omega = I(p) = p \cdot e^p \cdot E_1(p) = p \cdot e^p \cdot \int_p^\infty \frac{e^{-u}}{u} \cdot du \quad (11-4)$$

p est le Péclet solutal, rapport entre le rayon de courbure et l'épaisseur de la couche limite de diffusion :

$$p = \frac{V \cdot R}{2 \cdot D^l} \quad (11-5)$$

et I(p) (également dénommée ϕ), la fonction d'Ivantsov. Bobadilla et al. [8] ont étendu la solution d'Ivantsov au cas des alliages multiconstitués en reprenant l'étude de Coates et al. [9] et en négligeant les termes de diffusion croisés entre solutés. Les équations qu'ils obtiennent sont décrites en annexe A.

c. Rayon de courbure à la pointe d'une dendrite

L'analyse du champ de diffusion permet d'exprimer la sursaturation en fonction de R et V. Par contre, elle ne permet pas de prédire de façon non ambiguë le rayon de courbure adopté par la dendrite sous des conditions de croissance déterminées. Pour lever cette ambiguïté, des critères supplémentaires ont été recherchés. Le premier à être utilisé a été proposé par Zener [10] : il s'agit du critère de l'extremum, encore appelé critère de la surfusion minimum. On considère que la dendrite croît à la vitesse la plus grande possible pour une surfusion donnée [11]. Les résultats expérimentaux de Glicksman et al. [12] montrent que

les diverses théories utilisant ce critère ne permettent pas d'obtenir un bon accord avec l'expérience, pour les valeurs de vitesse de croissance et rayon à la pointe en fonction de la surfusion.

Langer et Müller-Krumbhaar [13,14,15] ont alors proposé de considérer que la dendrite croît avec un rayon de courbure R égal à la plus petite longueur d'onde λ_s de perturbation instable vis-à-vis d'un front plan, déterminé à l'aide de l'analyse de ces perturbations de Mullins et Sekerka [16]. Ce rayon correspond à une croissance de la pointe juste stable vis-à-vis du phénomène de division initiant la croissance des bras secondaires. Pour cette raison, ce critère est appelé critère de stabilité marginale. Dans leur analyse, Langer et Müller-Krumbhaar font apparaître le paramètre σ^* qui joue un rôle important. Kurz et Fisher [17] montrent que ce critère conduit, pour une forme de pointe hémisphérique, à la courbe $R(V)$ de la figure II-4. Si V est grand, c'est-à-dire si la croissance a lieu dans le domaine dendritique et pour un Péclet petit, R est donné par l'équation :

$$R = \sqrt{\frac{4 \cdot \pi^2 \cdot D^l \cdot \Gamma}{V \cdot k \cdot \Delta T_0}} \quad (II-6)$$

De façon moins approchée, Kurz et al. [19] expriment R à partir des équations II-7 et II-8 :

$$R = \sqrt{\frac{\Gamma / \sigma^*}{m \cdot G_c \cdot \zeta_c - G}} \quad (II-7)$$

avec ζ_c définit par :

$$\zeta_c = 1 - \frac{2 \cdot k}{\left(1 + \frac{1}{\sigma^* \cdot p^2}\right)^{0,5} - 1 + 2 \cdot k} \quad (II-8)$$

Les différents auteurs ayant réalisé des travaux sur le critère de stabilité marginale, dont la revue a été faite par Kurz et Trivedi [20] puis Trivedi et Mason [21] prédisent et observent une valeur constante de σ^* , voisine de 0,025. Bobadilla et al. [8] ont appliqué ce critère à la solution d'Ivantsov pour des alliages multiconstitués. Des travaux récents réalisés par Chopra et al. [22] sur la base de modèles affinant le critère de stabilité marginale montrent une variation du paramètre σ^* avec la composition de l'alliage.

La figure II-5 illustre la relation d'Ivantsov exprimant, pour une sursaturation donnée, les valeurs possibles de V et de R . Cette courbe est limitée vers les basses valeurs par le rayon minimum de germination, imposé par le terme de capillarité. Le rayon correspondant au critère de surfusion minimum sera R_e . Celui provenant du critère de stabilité marginale est R_i . Il se déplacera légèrement sur la courbe suivant la valeur du paramètre σ^* . On peut noter que différents auteurs, notamment Burden et Hunt [23], utilisent le critère de surfusion minimum, plus simple d'emploi, et obtiennent des valeurs théoriques en bon accord avec les résultats expérimentaux. Ces critères ne tiennent pas compte de l'anisotropie de la croissance dendritique, même si Bolling et Tiller [11] avaient déjà mis en avant son importance.

La prise en compte des effets capillaires fait l'objet d'une autre approche récente. Différents auteurs montrent par simulation numérique que la croissance dendritique en régime permanent n'est possible que si l'on tient compte d'une anisotropie de l'énergie d'interface [24, revue : 20,25]. Ceci est également vrai pour la croissance latérale des dendrites (bras secondaires) qui peut être simulée en deux dimensions pourvu que l'on tienne compte d'une anisotropie de tension de surface ou d'attachement cinétique [26]. La prise en compte, dans les modèles de croissance de perturbations, de l'anisotropie de l'énergie d'interface permet ainsi d'aboutir à un seul rayon de courbure à la pointe des dendrites pour une force motrice donnée, sans faire appel à un critère supplémentaire. Cette solution est connue sous le nom de "condition de solvabilité", elle conduit à une formulation du rayon de courbure similaire à celle basée sur le critère de stabilité marginale mais avec le paramètre σ^* dépendant des propriétés du matériau (anisotropie d'énergie de surface et/ou anisotropie de la cinétique d'attachement atomique).

II.1.2. Aspect cristallographique

Suivant la morphologie de l'interface, cellulaire ou dendritique, et suivant les conditions de croissance, les structures de solidification ne dépendent pas de la même façon de la cristallographie. La relation directe entre direction de croissance des dendrites et réseau cristallin a depuis longtemps été remarquée. Elle a été étudiée depuis au moins une quarantaine d'années, bien que peu d'auteurs aient réalisé des mesures cristallographiques. Parmi ces derniers, on peut citer Morris et Winegard [3], Weinberg et Chalmers [27], Klam et Blank [28] qui ont réalisé des tirs de Laue et Murakami et coll [29], qui ont étudié les figures d'attaques. Pour essayer de comprendre cet aspect de la croissance cristalline, il est nécessaire de bien définir les différentes directions de croissance. A l'échelle atomique, le réseau cristallin du solide possède une certaine orientation, qu'il peut garder au cours de la croissance du solide. A l'échelle microscopique, les dendrites croissent

suivant une direction apparente ; la relation notée par différents auteurs est que la direction de croissance apparente des dendrites de métaux cc ou cfc correspond à une direction cubique¹ du réseau cristallin sous-jacent. Enfin, en solidification dirigée monogranulaire, la direction de croissance macroscopique du grain, direction normale au front de solidification est déterminée par l'orientation du réseau cristallin sous-jacent : on parlera alors de croissance $\langle 001 \rangle$ ou $\langle 111 \rangle$.

a. Conditions de croissance et structures de solidification

Pour mieux comprendre l'anisotropie de la croissance des axes dendritiques, il est intéressant de passer en revue les études réalisées sur le changement de morphologie de l'interface quand les conditions de croissance varient. Morris et Winegard ont montré que les cellules ont une section transversale circulaire. Ces cellules croissent antiparallèlement au flux de chaleur, indépendamment de l'orientation cristallographique. Quand $C_0.V/G$ croît, les caractéristiques anisotropes du solide deviennent progressivement importantes pour le contrôle de la morphologie de croissance (figure II-6) : la direction de croissance des cellules dévie vers la direction cristallographique privilégiée de croissance, en même temps que leur section transversale commence à dévier de sa forme initialement circulaire ; on obtient alors des cellules dendritiques. Enfin les dendrites avec des axes secondaires bien développés et croissant suivant $\langle 001 \rangle$ apparaissent. Huang et Glicksman [30] ont pu observer expérimentalement cet effet sur la croissance des axes secondaires en suivant leur évolution avec la distance à la pointe de la dendrite. Près de la pointe, les auteurs ont observé que la trajectoire de la croissance des instabilités oscillatoires pointe à 20° en avant de la direction $\langle 001 \rangle$. Cette orientation coïncide avec la direction du gradient de température maximum autour de la dendrite. Pendant leur coalescence, les axes secondaires se tournent graduellement dans la direction $\langle 001 \rangle$. Cependant diverses études réalisées sur la croissance cellulaire et notamment sur la transition front plan / cellules montrent que, bien que la croissance cellulaire paraisse ne pas dépendre de la cristallographie, la transition front plan / perturbations en dépend [31,32]. Ainsi cette transition a lieu pour des vitesses de solidification plus faibles quand les échantillons croissent près de la direction $\langle 001 \rangle$, ou pour des valeurs G/V plus fortes [33]. Compte tenu des simulations numériques effectuées par Misbath et al. [34], la différence de direction de croissance entre cellules et dendrites pourrait provenir de la prédominance de l'un des deux facteurs : processus de diffusion ou propriétés anisotropes, suivant le domaine de croissance considéré.

¹ Une direction ou un plan cubique sont parallèles à une direction cristallographique $\langle 001 \rangle$.

b. Croissance dendritique différente de $\langle 001 \rangle$

Dans certains cas particuliers, il est possible d'obtenir des dendrites ne croissant pas suivant les directions cristallographiques privilégiées. Ce phénomène a lieu notamment en présence d'un mouvement de liquide perpendiculaire à la direction de croissance des dendrites, le long de l'interface [29,35]. Dans ces conditions, les dendrites croissent à contre-courant à partir de $\langle 001 \rangle$. L'explication généralement admise est que ce phénomène provient du fait que le mouvement de liquide altère la couche limite de diffusion à la pointe des dendrites en créant une asymétrie dans la distribution de la température et de la concentration en soluté.

Dans le cas d'une solidification dirigée monogranulaire similaire à celles que nous avons utilisées, Klam et Blank [28] ont montré que, même lorsque la direction de tirage des monocristaux s'écarte très sensiblement (jusqu'à 18°) de la direction $\langle 001 \rangle$ du réseau cristallin, les axes primaires des dendrites croissent suivant la direction $\langle 001 \rangle$. Ceci indique que dans notre cas, la croissance dendritique suit exactement les directions cristallographiques cubiques

c. Anisotropie de la croissance dendritique

Les facteurs responsables de l'anisotropie de la croissance dendritique n'ont pas clairement été départagés. D'aucuns proposent un effet de la cinétique d'attachement atomique à l'interface, d'autres auteurs s'appuient sur une anisotropie de l'énergie d'interface ; ces deux facteurs sont parfois invoqués simultanément.

Weinberg et Chalmers [27] attribuent l'anisotropie des dendrites à une extension des plans atomiques les plus denses, c'est-à-dire des plans $\{111\}$ pour un matériau cfc, au dépend des plans voisins de plus grands indices. Ces plans plus denses ont par là-même la vitesse de croissance la moins rapide d'après la loi de Bravais [36,37]. Le schéma de croissance des dendrites que l'on déduit de cette hypothèse est présenté figure II-7. La direction préférentielle de croissance est alors l'axe de la pyramide formée par les plans denses équivalents, dans ce cas la direction $\langle 001 \rangle$. Cependant, telle qu'elle est présentée, cette hypothèse conduit à l'obtention de dendrites facettées.

Pour expliquer la forme réelle des dendrites, Chalmers [38] s'appuie sur l'étude des interfaces légèrement diffuses réalisée par Cahn [39]. Celui-ci a montré que la plupart des transitions liquide/solide sont légèrement diffuses et donc ont lieu sur une épaisseur de quelques couches atomiques. Dans ce cas la forme des dendrites provient du fait que la force motrice est faible et que la surface des dendrites, légèrement diffuse, croît par propagation

latérale de marches. La forme non facettée des dendrites serait être due à ce que les dendrites doivent se conformer aux conditions de flux de chaleur requises pour leur croissance en régime permanent [6]

Beaucoup d'études ont porté sur un effet possible de l'anisotropie de l'énergie d'interface solide/liquide pour expliquer la croissance anisotrope des dendrites. Blodgett et al. [40] et Huang et Glicksman [30], ont mesuré cette anisotropie d'énergie de l'interface. Pour cela, la forme de gouttelettes de liquide en équilibre avec le solide a été comparée à celle d'une sphère (figure II-8). Ils trouvent ainsi pour des matériaux cubiques que l'orientation du maximum de l'énergie d'interface coïncide avec la direction $\langle 001 \rangle$. L'anisotropie obtenue est faible, estimée à 1% pour du succinonitrile pur et à 2% pour un alliage camphène-cyclohexanol. A partir de leurs expériences, Huang et Glicksman observent que la légère anisotropie d'énergie d'interface mesurée joue un rôle important dans la sélection initiale de la direction de croissance des bras dendritiques. Glicksman et Singh [41] estiment que tout écart à la direction du maximum d'énergie d'interface résulterait en une force due à un supplément dans cette énergie et qui tendrait à ramener la dendrite vers la direction $\langle 001 \rangle$.

De plus Blodgett et al. [40], puis Glicksman et al. [12] déduisent de leurs études sur des matériaux transparents que l'attachement moléculaire à l'interface solide/liquide est trop rapide pour avoir un effet sur la croissance libre de dendrites, au moins pour les conditions de croissance expérimentées. A priori, l'anisotropie des dendrites est donc due à l'anisotropie de l'énergie d'interface, bien que l'hypothèse d'anisotropie d'attachement moléculaire ait été retenue par certains auteurs.

Enfin quelques auteurs invoquent d'autres raisons pour expliquer la croissance des dendrites suivant les directions cristallographiques. Morris et Winegard [3] proposent pour les alliages l'existence d'une anisotropie du coefficient de distribution solutal, due à l'adsorption et/ou au piégeage durant la croissance. Horway et Cahn [42] supposent que la forme des dendrites est due à un terme dépendant de la cristallographie dans l'effet visqueux dans le mouvement de l'interface.

II.2. La société des dendrites

II.2.1. Arrangement dendritique

a. *Espacement primaire*

L'espacement primaire λ_1 correspond, en croissance colonnaire, à la distance entre les axes dendritiques plus proches voisins (figure II-2). C'est une grandeur caractéristique de la solidification dirigée, qui dépend des conditions de croissance. Elle est de plus facilement mesurable, et non modifiée par les traitements thermiques. En croissance dirigée monogranulaire, la façon dont les dendrites sont disposées les unes par rapport aux autres apparaît comme un paramètre aussi important que l'espacement primaire. Ainsi, la disposition des dendrites les unes par rapport aux autres, l'arrangement des premiers voisins, et la disparité de tailles de dendrites que cela entraîne joue sur les microségrégations. L'arrangement dendritique déterminera entre autres la répartition des eutectiques de fin de solidification, dont on sait qu'ils influencent les propriétés mécaniques macroscopiques du monograin [43].

a.1. *Croissance en régime permanent*

Les premiers modèles, notamment celui de Bolling et Fainstein-Pedraza [44] et Flemings [45], propose de prédire λ_1 par des considérations sur les conditions de contact entre les dendrites adjacentes. Ils donnent λ_1 proportionnel à $(G.V)^{-n}$ avec n proche de 0,5. La multiplication de mesures où G et V étaient contrôlés indépendamment a montré que cette description n'est pas satisfaisante. Ces premiers modèles ne prennent pas en compte ce qui se passe à la pointe de la dendrite, et ne s'intéressent qu'à ce qui a lieu une fois que la dendrite a commencé à se former. D'autres modèles ont été proposés pour expliquer les résultats expérimentaux obtenus. Ces modèles prennent en compte les conditions de croissance à la pointe.

Hunt [46], Kurz et Fisher [6,17], Trivedi [47] arrivent ainsi à :

$$\lambda_1 \propto (G.V^{1/2})^{-1/2} \quad (II-9)$$

La figure II-9 présente la variation de R , donnée par le critère de stabilité marginale, et la variation de l'espacement primaire avec la vitesse d'avancée du front de solidification, suivant le modèle de Kurz et Fisher. La morphologie du front et son évolution sont indiqués, depuis le front plan à basse vitesse de croissance, jusqu'au front plan à haute vitesse, en

passant par le front cellulaire et le front dendritique. Cette figure permet de montrer l'évolution du domaine de solidification en fonction de R et λ_1 .

Certains auteurs [48,49] trouvent que les prédictions, et particulièrement celle faite avec le modèle de Hunt [48] sont en bon accord avec les valeurs expérimentales de λ_1 . Trivedi et al. [47,50] montrent sur le système succinonitrile-acétone des résultats qui s'accordent bien avec leur modèle, en faisant varier C_0 et V . Liu et An [51] trouvent une bonne proportionnalité entre λ_1 et $G^{-0,5}$ ou $V^{-0,25}$ pourvu que l'on reste dans une gamme de faibles gradients ou de fortes vitesses. Lacaze et al. [52] et Chehaïbou [53] ont étudiés les densités d'axes primaires n_p et donc λ_1 (avec $\lambda_1 = n_p^{-0,5}$) sur divers alliages base nickel. Ils trouvent qu'aux faibles valeurs du gradient thermique, la proportionnalité entre n_p et G est bien vérifiée conformément aux modèles. Ceci n'est plus vrai au-delà d'une certaine valeur ainsi que dans le domaine des faibles gradients / fortes vitesses. Les expériences réalisées par Chehaïbou montrent que l'exposant de la vitesse dans la relation liant λ_1 à G et V est très différent de 0,5, valeur prédite par les modèles de Hunt ou Kurz et Fisher; il varie en effet de 0,14 à 0,33 suivant la composition de l'alliage. D'une façon générale, les auteurs [50,52,53,54] notent que λ_1 varie avec G comme attendu. Par contre les variations de λ_1 avec V ou C_0 ne concordent pas avec les prédictions.

a.2. Variation de λ_1 avec les changements de conditions de croissance

Peu d'études ont été réalisées sur la dynamique de l'espacement primaire, et la façon dont le réseau dendritique réagit aux changements de conditions locales de croissance. En fait, lors de la solidification dirigée d'une pièce, beaucoup de phénomènes peuvent obliger le réseau dendritique à se modifier. C'est le cas tout d'abord, des fluctuations dans les conditions macroscopiques de croissance, comme des fluctuations du gradient thermique, de la vitesse de refroidissement. D'autres aspects peuvent aussi intervenir, comme des interactions avec les bords des pièces, le changement de section ou la présence d'un joint de grain.

Trivedi et al. [47,55] notent que, lors d'un brusque accroissement de la vitesse d'avancée du front de solidification, le rayon de courbure à la pointe des dendrites s'adapte très rapidement alors que λ_1 a besoin d'un temps beaucoup plus long. Quested et Mc Lean [48] montrent une adaptation rapide de λ_1 quand G varie. Esaka et coll. [54] ont étudié l'effet de l'existence de deux grains correspondant à des directions de croissance d'axes primaires de dendrites divergentes. Ils observent que la création d'un nouvel axe primaire a lieu quand la distance entre dendrites devient supérieure à $2\lambda_1$. Cette observation a également été faite par Somboonsuk et Trivedi [55] lors d'un accroissement de la vitesse. Tous les auteurs qui

se sont penchés sur l'adaptation du réseau dendritique [48,54,55,56] notent que, lorsqu'il y a nécessité de créer de nouveaux axes primaires, soit quand la vitesse augmente (figure II-10), soit pour "remplir" l'espace laissé vide du fait d'une différence entre la direction de croissance dendritique et les bords du grain ou de la pièce (figure II-11) [57,58], ces nouveaux axes se créent par développement d'axes tertiaires. Quand la vitesse d'avancée du front diminue, l'espacement primaire doit s'ajuster à une plus grande valeur et une compétition de croissance s'instaure alors entre les axes primaires. Dans un tel cas, Somboonsuk et Trivedi [55] observent un effet transitoire lors du changement de la vitesse : dédoublement des pointes des dendrites qui croissent ensuite dans le domaine cellulaire puis la compétition entre ces cellules sélectionne λ_1 en même temps qu'a lieu le retour à la croissance dendritique.

a.3. Direction de croissance différente de celle du gradient thermique

Quelques auteurs [33,59] ont étudié de façon systématique l'influence sur l'espacement primaire en solidification dirigée, de l'écart entre la direction du gradient thermique et celle de croissance des dendrites. Ma et al. [33] ont étudié la croissance des dendrites dans un superalliage base nickel quand la direction du gradient thermique et celle de tirage étaient parallèles et désorientées par rapport à la direction de croissance des dendrites. Grugel et Zhou [59] l'ont étudiée dans du succinonitrile parallèlement à la direction de tirage et désorientée par rapport à la direction du gradient thermique maximal. Un résultat important mis en évidence par Grugel et Zhou est que la forme macroscopique du front de solidification dépend des conditions thermiques et n'est pas influencée par la direction de croissance des dendrites, ainsi que l'illustre la figure II-12. Les différents auteurs montrent que, à gradient thermique et vitesse donnés, l'espacement entre axes primaires croît quand la désorientation des dendrites par rapport à la direction du gradient thermique croît. Au-delà de 45°, la direction cubique principale de croissance des dendrites change. Grugel et Zhou constatent que les modèles de croissance reliant l'espacement primaire aux conditions de tirage ne sont plus vérifiés, même si l'on tient compte pour la valeur de G de la projection du gradient thermique dans la direction de croissance des dendrites. Ils imaginent diverses hypothèses pour expliquer ce phénomène : il pourrait être dû à une altération du champ de soluté à la pointe de la dendrite et/ou à l'influence des bras secondaires sur la croissance des axes primaires.

b. Arrangement dendritique

Jacobi et Schwerdtfegger [60] ont réalisé une étude détaillée des arrangements dendritiques obtenus dans des aciers. Ils dénombrent trois cas possibles de disposition.

Dans un cas, illustré par la figure II-13, sous très fort gradient de température, la morphologie du réseau dendritique apparaît parfaitement régulière. Le second cas est plus fréquent : les coupes transversales (perpendiculaires à la direction de croissance des axes primaires) révèlent l'existence de dendrites alignées suivant des lignes parallèles dans une des directions des axes secondaires (figure II-14). Sur une ligne, les dendrites sont décalées d'un demi espacement primaire par rapport aux dendrites des lignes voisines : les axes secondaires des dendrites d'une ligne s'intercalent ainsi entre les axes secondaires des dendrites de la ligne adjacente. Lorsque les bras secondaires des dendrites sont peu développés, les alignements sont nettement séparés et ressemblent à des plateaux. Bien que pour le type d'arrangement de la figure II-14, une dendrite ait six voisines, il existe une distorsion considérable par rapport à un réseau hexagonal. Dans le troisième cas enfin, il est possible de voir les dendrites disposées selon une trame rectangulaire, avec les cotés des rectangles parallèles aux directions des axes secondaires.

Les auteurs ont constaté que plusieurs types d'arrangements dendritiques pouvaient coexister dans un même grain. Pour cette raison, ils estiment que la densité d'axes n_p est un critère plus objectif que λ_1 comme paramètre caractéristique du réseau dendritique en solidification dirigée. La transformation de n_p en λ_1 peut ensuite être effectuée en considérant un réseau de dendrites hexagonal ou carré. Dans le premier cas, λ_1 sera égal à $1,075 \cdot n_p^{-0,5}$; dans le second cas, pour un réseau carré, λ_1 sera égal à $n_p^{-0,5}$: une erreur de 7,5% seulement est commise entre les deux hypothèses, ce qui permet d'approcher tout réseau intermédiaire entre le réseau carré et hexagonal par l'une des deux relations sans commettre une trop grande erreur.

Alors que les modèles d'espacement primaire prévoient une seule valeur de λ_1 sur des coupes transversale pour des conditions de croissance données, Quedsted et Mc Lean [48] montrent sur des alliages base nickel que l'on peut obtenir une très grande dispersion des valeurs d'espacement primaire entre premiers voisins, seule la valeur moyenne correspondant à celle donnée par la théorie. L'existence d'une dispersion des valeurs a été confirmée par Lacaze [61] sur des sections transversales de pièces monograins en superalliage base nickel. En étudiant par analyse d'image la périodicité des structures, Lacaze montre qu'il existe, notamment dans la direction des axes secondaires, une certaine régularité de l'arrangement des dendrites. Le réseau apparaît alors comme étant intermédiaire entre un arrangement carré et hexagonal, de telle sorte qu'il n'y a pas de corrélation entre un axe et ses seconds voisins. Lacaze et coll. [52] observent que, lorsque les structures sont très dendritiques, l'arrangement est moins régulier que celui qui apparaît sous fort gradient ou faible vitesse.

Flemings [45] ainsi que Morris et Winegard [3] avaient déjà noté la présence d'alignements de dendrites, s'étendant suivant des directions $\langle 100 \rangle$. Selon Flemings, ces alignements se trouvent généralement dans les directions dendritiques $\langle 100 \rangle$ les plus proches de la direction du flux de chaleur. Compte tenu de l'existence de ces alignements et de leur disposition les uns par rapport aux autres, Rappaz et Blank [57] ont suggéré un concept de maille dendritique, par analogie aux mailles de réseaux cristallins rencontrées en cristallographie. Ils modélisent en trois dimensions un réseau orthorhombique centré tel que celui décrit au chapitre suivant (figure III-12). Ils peuvent simuler alors les structures obtenues sur des coupes réelles, ces coupes n'étant pas forcément transversales. Dans le cas où la direction [001] du réseau n'est pas parallèle aux parois du moule, il se libère des espaces dans lesquels de nouveaux axes primaires se développent. Leur apparition se fait par branchement d'axes secondaires et conduit à la formation d'alignements (comme décrit précédemment figure II-11). Ces auteurs observent également que lorsque des zones d'alignements à 90° se rencontrent, la structure du réseau dendritique est perturbée. Lorsque l'arrangement dendritique ne présente pas de périodicité bien définie, Rappaz et Blank [57] estiment qu'un motif hexagonal représente la meilleure approximation des structures dendritiques.

c. Compétition de croissance

Nagakawa et al. [62], puis Rappaz et al. [63] montrent la possibilité d'une compétition de croissance entre sous-grains [62] ou axes dendritiques [63].

Nagakawa et al. ont étudié la solidification en deux dimensions d'une zone fondue par arc ou faisceau d'électrons sur des feuilles de niobium et d'aluminium commerciaux. Ils mettent en évidence, par des mesures de diffraction X, que la solidification dans cette zone a lieu de manière épitaxiale sur le métal de base. Sur des monograins, ils montrent que les sous-grains ont une direction de croissance préférée $\langle 001 \rangle$, de la même façon que les dendrites (cf § II.1.2.). Une sélection s'opère entre ces sous-grains : ceux dont la direction $\langle 001 \rangle$ est la plus proche de la direction du gradient thermique sont favorisés.

Rappaz, David, Vitek et Boatner [63 à 66] ont étudié un phénomène identique en trois dimensions lors de la solidification de cordons de soudure réalisés par déplacement d'un faisceau d'électrons sur un monocristal d'alliage Fe-15Ni-15Cr. Suivant la direction de croissance du front de solidification, donnée par la direction du gradient thermique maximal à l'échelle locale, certaines directions d'axes dendritiques seront favorisées (figure II-15). Comme les isothermes, et donc le front de solidification, ne dépendent pas en première approximation de la microstructure mais uniquement des conditions

thermiques imposées, les dendrites qui auront la plus faible vitesse seront celles qui auront le moins de chemin à parcourir pour suivre l'isotherme liquidus. Ainsi, les axes dendritiques favorisés sont ceux qui ont la surfusion minimum, donc la vitesse la plus faible (cf § II.1.1.) : les axes sélectionnés sont les axes qui, compte tenu des directions de croissance $\langle 001 \rangle$, se retrouvent les mieux alignés avec la normale au front de solidification c'est-à-dire avec la direction du gradient thermique maximal.

II.2.2. Microségrégations

La redistribution de soluté entre dendrites à l'échelle locale s'obtient en effectuant un bilan de matière en soluté dans un élément de volume fermé. La longueur de cet élément de volume correspond au demi-espacement primaire entre dendrites, ainsi que l'illustre le schéma de la figure II-16. Les premiers modèles réalisés supposent que la surfusion à la pointe de la dendrite, la surfusion de germination, celles dues à la courbure et aux effets cinétiques sont toutes négligeables. Deux hypothèses également importantes, que nous retiendrons ici, sont qu'à l'interface solide/liquide le solide qui se dépose est à l'équilibre avec le liquide et que la diffusion dans le liquide est complète sur des distances de l'ordre de λ_1 . Bower, Brody et Flemings [67] estiment que cette dernière hypothèse est valable si la valeur $4.D_l.t_f/(\lambda_1)^2$ est très supérieure à 1. Dans le cadre de notre étude, compte tenu des conditions de croissance des pièces, le temps local de solidification t_f est proche de 270 s, l'espacement primaire entre dendrites est d'environ 500 μm . On obtient pour des éléments diffusant peu dans le liquide, soit pour un coefficient de diffusion D_l de $2.10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$, une valeur de $4.D_l.t_f/(\lambda_1)^2$ voisine de 9 ; elle est voisine de 22 pour un coefficient de diffusion dans le liquide couramment admis de $5.10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$. Ces valeurs sont effectivement supérieures à 1 ; aussi l'hypothèse de diffusion complète sera supposée valable.

Pour simplifier le problème, la densité des phases liquide et solide sont prises égales, et le coefficient de partage à l'équilibre k constant. Brody et Flemings [68] ont traité le cas d'un coefficient de partage non constant par une méthode aux différences finies.

Dans le cas où l'on suppose qu'il n'y a pas de diffusion dans le solide, la redistribution du soluté est décrite par l'équation de Gulliver-Scheil [68]. Le solide se dépose par couches de composition variable. La relation entre la composition de la couche de solide déposé et la fraction volumique déjà solidifiée est :

$$C_s^* = k.C_0.(1-f_s)^{k-1} \quad (\text{II-10})$$

et ce, jusqu'à ce que la composition du liquide restant soit celle de l'eutectique. Finalement, la fraction de solide ayant la composition eutectique sera [45] :

$$f_E = \left(\frac{C_E}{C_0} \right)^{\frac{1}{k-1}} \quad (II-11)$$

Brody et Flemings [68] ont introduit dans ce modèle classique de la solidification hors-équilibre la prise en compte d'une possible diffusion à l'état solide. L'équation dépend alors de la vitesse d'épaississement des dendrites $d\lambda/dt$. Pour une vitesse d'avancée constante, la redistribution du soluté est donnée par :

$$C_s^* = k.C_0 \left(1 - \frac{f_s}{1 + \alpha.k} \right)^{k-1} \quad (II-12)$$

α est appelé nombre de Fourier diffusional ou paramètre d'homogénéisation. Il est défini à partir du coefficient de diffusion à l'état solide D_s et de l'espacement entre bras dendritiques secondaires :

$$\alpha = \frac{4.D_s.t_f}{(\lambda_2)^2} \quad (II-13)$$

L'expression de la redistribution du soluté donné par l'équation II-12 est valable si $\alpha.k < 0,1$ [69] ; de plus le résultat est physiquement sans signification quand $\alpha > 0,5$ [70]. Nous verrons dans la suite de l'étude que α , ainsi que $\alpha.k$ ne dépassent pas 0,06 dans notre cas.

Lorsque la diffusion est complète dans le liquide et dans le solide, la règle du bras de levier s'applique :

$$C_s = \frac{k.C_0}{1 - (1-k).f_s} \quad (II-14)$$

D'autres auteurs ont essayé de tenir compte de surfusion à l'interface liquide/solide et de la diffusion dans le solide. Solari et Biloni [71] ont ainsi inclus dans le modèle de Brody et Flemings la prise en compte de la surfusion à la pointe en se basant sur le modèle de Burden

et Hunt [23]. La composition à l'interface est donnée par l'équation II-15 lorsque que l'on est dans le domaine de croissance dendritique et qu'il n'y a pas de diffusion dans le solide :

$$C_s^* = k.C_0 \left[-\frac{b}{k-1} + \left(1 + \frac{b.k}{k-1} \right) . (1-f_s)^{k-1} \right] \quad (\text{II-15})$$

avec $\Gamma = \sigma/\Delta s$, constante de courbure et b défini par l'équation II-16 :

$$b = \left[\frac{-2.\Gamma.V.(1-k)}{m_l.D_l.C_0} \right]^{1/2} \quad (\text{II-16})$$

En utilisant également le modèle de Burden et Hunt, Sarreal et Abbaschian [72] ont eux-aussi cherché à tenir compte de la surfusion à la pointe de la dendrite. La redistribution du soluté est dans ce cas, calculée en supposant que la surfusion est immédiatement dissipée derrière la pointe de telle sorte qu'une fraction de solide f_{s0} se forme dont la composition provient de la sursaturation à la pointe de la dendrite. Leur modèle ne tient pas compte de la diffusion dans le solide et suppose une composition uniforme du liquide dans la direction perpendiculaire à celle de la croissance des dendrites. Par la conservation du soluté, cette fraction f_{s0} est égale à :

$$f_{s0} = \frac{C_0 - C_l}{C_l.(k-1)} = \Omega \quad (\text{II-17})$$

où C_l est la composition du liquide devant la pointe de la dendrite.

En supposant qu'il n'y a pas de diffusion dans le liquide en deçà de la pointe de la dendrite :

$$C_s^* = k.C_l \left(\frac{1-f_s}{1-f_{s0}} \right)^{k-1} \quad (\text{II-18})$$

Dans le cas des alliages à plusieurs solutés, on considère pour établir le chemin de solidification (C_s^* fonction de f_s), qu'il n'y a pas d'interactions entre éléments [6,45].

II.2.3. Evolution de la qualité cristalline

L'un des objectifs de cette thèse est de comprendre la formation des défauts qui portent atteinte à la monocristallinité du cristal. Ce sont par exemple des joints de grains, ou une désorientation plus ou moins continue du réseau cristallin. L'étude des travaux antérieurs sur cet aspect de la solidification nous aidera à comprendre la formation de ces défauts.

Dans la littérature, on ne trouve que des études qui ont porté sur des barreaux cylindriques.

a. Défauts observés lors d'une croissance [001]

a.1. Cartographie des désorientations

Quatre auteurs se sont spécialement intéressés à la répartition géométrique des désorientations ; ils ont étudié des barreaux monogranulaires d'alliages base nickel réalisés à partir d'un germe et solidifiés suivant des directions proches de [001].

Agapova et al. [73] ont utilisé la topographie X en balayage angulaire sur des sections transversales et longitudinales² d'un barreau tiré à une vitesse de 10 mm/min, dont la direction de croissance est exactement [001]. Les conditions thermiques de croissance sont telles que l'espacement primaire entre dendrites est de 250 μm . Leur méthode d'investigation visualise les désorientations par des déplacements d'images.

Klam et Blank [28] ont employé la diffraction Laue en réflexion, avec un diamètre de faisceau X de 500 μm , sur une section transversale prise près du germe, au début d'un barreau tiré dans la direction [001] à une vitesse de 2 mm/min sous un gradient dans la zone pâteuse de 100 K/cm. Ces barreaux ont été solidifiés à partir de germes sur une longueur de 15 cm ; le haut d'un barreau sert de germe pour un nouveau tirage.

Bellet et Bastie [74] ont combiné l'utilisation de la diffraction γ et de la topographie aux neutrons³.

Giamei [75] utilise l'imagerie en électrons secondaires, employée comme technique cristallographique, sur des sections transversales prises en haut d'un barreau tiré suivant [001].

• échelle de la section

Les études présentent un certain nombre de points communs. Il apparaît deux échelles de défauts. A l'échelle des sections transversales, tous les auteurs mettent en évidence la présence de quatre larges secteurs (4 ou 5 pour Bellet et Bastie) et dont les frontières

² Une section longitudinale est une section parallèle ou pratiquement parallèle à la direction de tirage.

³ La topographie neutron est une technique qui permet d'imager les désorientations à l'intérieur du volume de la pièce, décrite par Bellet dans sa thèse [74].

forment une croix. Il est observé que chacun de ces secteurs a une mosaïcité⁴ intrinsèque faible, mais qu'ils présentent cependant les uns par rapport aux autres une orientation cristallographique moyenne différente. Bellet et Bastie ont chiffré les désorientations entre et dans les secteurs, en fin de barreau : ils observent une rotation entre les secteurs autour de l'axe [001] d'au maximum 3°, alors qu'à l'intérieur des secteurs la désorientation autour de cet axe n'est en moyenne que de 0,4°. Entre les secteurs, la désorientation autour des axes [100] ou [010] est plus forte puisqu'elle peut atteindre 9°. La figure II-17 montre les désorientations entre les secteurs dans le cas de l'étude de Agapova et al. Dans cette étude les limites entre secteurs s'étendent radialement suivant les directions cristallographiques [100] et [010]. Une étude fine de la frontière des secteurs montre la présence de "blocs" occupant toute la longueur du sous-joint entre secteurs. Agapova et al. ont également mesuré les désorientations associées aux sous-joints : ils ont trouvé que l'axe de désorientation est dans le plan du sous-joint, plan parallèle à la direction de croissance de l'échantillon. Plus, précisément, la direction de cet axe est proche de [100] ou [010], la composante hélicoïdale étant négligeable : il y a peu de rotation autour de [001] entre deux secteurs. En moyenne, la valeur de la désorientation entre deux secteurs est de 0,4°. Au contraire de ces auteurs, Bellet et Bastie estiment, compte tenu de leurs résultats en topographie neutron, que les limites entre secteurs correspondent plutôt à des plans {110}. Outre la présence de secteurs, Klam et Blank observent une région de grande mosaïcité au centre de la section, située au-dessus de la zone non refondue du germe. Agapova et al. ont noté que cette région est fortement désorientée par rapport au reste de la section.

Ces observations cristallographiques sont associées dans les études de Klam et Blank et de Bellet et Bastie à un aspect macrographique particulier des sections transversales. La figure II-18 montre ainsi que la région au centre de la section présente un réseau dendritique irrégulier. Dans l'étude de Bastie et Bellet, la métallographie optique de la figure II-19 révèle une croissance des dendrites non seulement dans la direction de croissance des barreaux [001] mais également dans les directions [100] et [010]. D'après les résultats de Bellet et Bastie, chaque secteur rassemble les alignements d'une même direction.

Klam et Blank déduisent de l'existence des secteurs, de mosaïcité intrinsèque faible, que les désorientations ne peuvent pas être reliées à la croissance dendritique en elle-même. Néanmoins, ils n'expliquent pas la présence de ces secteurs. Agapova et al. estiment que les

⁴ Dans le cadre de cette étude, on définit la mosaïcité comme étant la désorientation dans l'espace.

résultats obtenus sont reliés au fait qu'une composante radiale du gradient de température existe : les dendrites se développent plus vite dans la partie centrale de la section et sur les rayons de direction [100] et [010], là où la direction cristallographique de la croissance dendritique est voisine de la direction du flux de chaleur. Selon eux, les blocs et la région centrale sont de moins bonne qualité cristalline parce que leur formation s'effectue dans des conditions plus éloignées de l'équilibre que ce n'est le cas des secteurs qui croissent plus lentement.

• échelle des dendrites

Giamei et Agapova et al. notent la présence d'une sous-structure. Elle correspond à des groupements de quelques dendrites (1 à 5) de même orientation cristallographique. Dans l'étude de Agapova et al., la désorientation moyenne aux frontières de ces sous-groupes est de $0,17^\circ$ ($10,2'$).

D'autres auteurs ont étudié les désorientations à cette même échelle, mais en cherchant leur relation avec la microstructure dendritique. Rappaz et Blank ont ainsi étudiés ces relations sur des monograins de Ni-22,2at%Cr-3,6at%C réalisés à partir de sélecteurs [57] et d'autres échantillons Ni-Cr-C base nickel réalisés en solidification dirigée polycristalline [76]. Dans le cas des monograins, ils ont employé la technique de topographie X de Berg-Barrett [77], sur des plans {023}. La figure II-20 présente une telle topographie. On peut y voir des rangées de dendrites qui diffractent séparées par des régions hors de diffraction. Sur ces sections, les auteurs ont mis en évidence par attaque chimique l'existence d'alignements de dendrites. Chaque alignement correspond à une rangée de dendrites qui ont des positions de diffraction très proches. Ainsi, les auteurs mettent en évidence des désorientations entre dendrites qui excèdent rarement $0,1^\circ$ à $0,3^\circ$ dans un alignement. Par contre des alignements voisins peuvent être désorientés les uns par rapport aux autres de $0,5^\circ$ à 1° .

Sur d'autres échantillons d'alliage base nickel réalisés en solidification dirigée avec sélecteur, mais présentant plusieurs grains, Rappaz et Blank [78,79] ont associé la topographie X et des mesures d'orientation cristallographique en microdiffraction X pour étudier les désorientations sur sections transversales. L'orientation cristallographique individuelle d'une vingtaine de dendrites a été ainsi mesurée et une corrélation qualitative avec la disposition des dendrites sur la section effectuée. Les auteurs mettent en évidence l'existence d'une direction, sur la section, dans laquelle les orientations des troncs dendritiques sont moins dispersées (figure II-21). Cette direction correspond à une direction de croissance des bras secondaires. Ils estiment que ce phénomène provient du mécanisme de branchement (cf § II.2.1.a et b.).

a.2. Effet de la distance

Giamei [75] s'est intéressé le premier à l'étude des paramètres susceptibles d'influencer la qualité cristalline des barreaux monograins de superalliages base nickel. Pour des barreaux solidifiés suivant la direction [001], il note une dégradation de la qualité cristalline quand la distance à partir du début de la pièce (près du sélecteur ou du germe) augmente : alors que le début des barreaux présente une très bonne qualité cristalline, des désorientations de 2° sont observées sur des sections transversales situées en fin de pièce. Klam et Blank [28] ont chiffré cette dégradation pour les mêmes échantillons que ceux sur lesquelles ils ont observé des secteurs. Ils mesurent une divergence angulaire de 2° à 1 cm du début du barreau, lors du premier tirage, alors qu'elle atteint 8° au bout de 30 cm, en haut du deuxième tirage. Pour les différentes conditions de croissance (gradient thermique et vitesse) étudiées par Bellet et Bastie [74], seuls les barreaux cylindriques solidifiés sous faible gradient thermique et forte vitesse de tirage présentent un effet de la distance au germe. Cet effet se traduit également par une détérioration de la qualité cristalline et correspond à une augmentation de la désorientation entre secteurs quand la distance augmente.

Giamei suppose que cette dégradation de la qualité cristalline est due à l'existence d'une convection thermique ou mécanique pendant la solidification. Klam et Blank estiment plutôt qu'elle provient de la zone de superposition des champs de solutés derrière la pointe des dendrites où les bras des dendrites commencent à se faire face, tout en ressentant encore les effets de la surfusion constitutionnelle. Selon ces auteurs, la dégradation serait ainsi le résultat d'un phénomène de compétition de croissance entre bras de dendrites différentes, qui donnerait lieu à des efforts de torsion agissant sur les axes primaires.

b. Effet des conditions de croissance

b.1. Direction de croissance

L'un des faits intéressants reporté dans la littérature est que l'évolution de la qualité cristalline varie avec l'orientation des directions cubiques par rapport à la direction de tirage du barreau cylindrique. Giamei [75] a comparé des barreaux tirés suivant $\langle 001 \rangle$, $\langle 011 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$. Il a trouvé des désorientations et une dégradation de la qualité cristalline avec la distance semblables pour les directions $\langle 001 \rangle$ et $\langle 011 \rangle$. Cependant cet auteur montre que des barreaux solidifié suivant $\langle 111 \rangle$ conservent, indépendamment de la distance au germe, leur direction de croissance initiale et une très bonne qualité

crystalline, avec une mosaïcité inférieure au degré (figure II-22). L'étude de Klam et Blank [28] confirme ce résultat.

Dans le cas d'une orientation initiale de barreau intermédiaire entre [001], [111] et [011], Klam et Blank remarquent que le cristal subit une rotation du réseau cristallographique, sans qu'il y ait germination de nouveaux grains, pour se rapprocher en haut du barreau d'une orientation [111].

Agapova et al. [73] rapportent que, sur des barreaux dans lesquels l'axe [001] est désorienté de 10° par rapport à la direction de croissance de la pièce, les zones équivalentes aux secteurs dans le cas d'une croissance [001] sont plus nombreuses et plus désorientées les unes par rapport aux autres. Par contre, la sous-structure ne présente pas de différence avec celles des barreaux tirés suivant [001].

Giamei explique cette différence de comportement entre des barreaux tirés suivant [001], [011] et [111] en invoquant une différence dans la possibilité de mouvement des défauts : suivant $\langle 001 \rangle$ et $\langle 011 \rangle$, les plans cubiques verticaux tendent à propager les imperfections, tandis que pour $\langle 111 \rangle$, l'inclinaison des plans cubiques tend à ce qu'un défaut associé au déplacement des dendrites disparaisse sans perpétuation ni accumulation. Cette explication paraît incomplète dans la mesure où elle ne donne pas la cause de tels défauts.

Pour expliquer l'évolution de la qualité cristalline suivant la direction de tirage, Klam et Blank s'appuient sur leurs études précédentes [57,76,78,79]. Ils notent, d'après la figure II-18, que, pour décrire la structure dendritique d'un monograin entier, plusieurs domaines d'arrangement régulier des dendrites (c'est-à-dire d'alignements) représentant des sous-grains dans le réseau dendritique, doivent être définis. Ces domaines sont séparés par des zones de défauts plus ou moins étendues, comparables aux joints de grains, dans lesquelles l'alignement des dendrites et les espacements sont perturbés. A partir des résultats de microdiffraction X, ils associent à ces zones perturbées visibles par métallographie des défauts dans le réseau cristallin. Ils estiment que la qualité cristalline dépend de l'interaction entre dendrites voisines durant la croissance. D'après ces auteurs, dans les zones où une compétition de croissance se produit entre des bras dendritiques appartenant à des dendrites différentes, des moments de courbure se créent et agissent sur les axes primaires dendritiques en causant des déviations locales d'orientation. Klam et Blank expliquent alors que la compétition de croissance dans les cristaux orientés $\langle 111 \rangle$ est très réduite parce que les trois types de bras dendritique $\langle 100 \rangle$ "touchent" l'isotherme (liquidus - $\Delta T_{\text{surfusion}}$) sous des angles identiques et ne sont pas soumis à une force motrice additionnelle due à la surfusion.

Cet effet pourrait, d'après Klam et Blank, expliquer l'excellente qualité des cristaux orientés $\langle 111 \rangle$. D'après ces explications, chaque secteur décrit par Klam et Blank correspond à un ensemble d'alignements de dendrites ayant la même direction. La compétition aurait lieu uniquement dans les zones entre secteurs, où des alignements de dendrites de direction différente sont en contact. Nous verrons par la suite, dans le cadre de notre étude, que même dans les secteurs, la qualité cristalline se dégrade dans des pièces tirées suivant $\langle 001 \rangle$. Il paraît alors douteux que la compétition de croissance entre bras secondaires puisse être la cause de la dégradation de la qualité cristalline pour les barreaux tirés suivant $\langle 001 \rangle$.

b.2. Effet de la vitesse et du gradient thermique

Bellet et Bastie [74,80] ont étudié par diffraction gamma (cf III.3.4) et topographie neutrons l'effet des conditions thermiques de croissance sur les désorientations obtenues dans des barreaux cylindriques tirés suivant $[001]$. Dans le tableau II-1 sont reportées les valeurs des désorientations mesurées sur les profils de diffraction gamma en fonction de la vitesse de tirage V et du gradient thermique longitudinal dans la zone pâteuse G . Les désorientations ont été chiffrées par l'étendue angulaire sur laquelle elles apparaissent et la largeur à mi-hauteur moyenne (LMH) des différents pics de diffraction.

G	30 K/cm			100 K/cm			
	V	axe de rotation	étendue	LMH	axe de rotation	étendue	LMH
4	mm/min	$[100]$	3,4°	0,75°	$[100]$	10,8°	3,5°
		$[010]$	2,7°	0,55°	$[010]$	10,5°	3,4°
		$[001]$	1,2°	0,4°	$[001]$	2,1°	0,7°
13	mm/min	$[100]$	4,8°	0,5°	$[100]$	11°	1,75°
		$[010]$	2,7°	0,5°	$[010]$	12°	1,75°
		$[001]$	1,2°	0,35°	$[001]$	5,4°	1°

Tableau II-1 : valeurs des désorientations obtenues sur des barreaux cylindriques pour différentes conditions de croissances.

Il ressort de ces valeurs que, dans tous les cas, la désorientation autour de l'axe $[001]$ est plus faible que les désorientations autour des autres axes, quelles que soient les conditions de coulée.

Les valeurs de l'étendue montrent que le gradient thermique semble avoir un effet plus marqué que la vitesse. L'étude en topographie neutrons de la répartition spatiale des désorientations paraît montrer que G et V jouent en fait deux rôles différents. Bellet met en évidence que les échantillons solidifiés sous faible vitesse et faible gradient (figure II-23) sont constitués de paquets faiblement désorientés de dendrites, de type "secteurs". Il s'agit de variations à l'échelle de la section. Les échantillons solidifiés sous faible gradient et forte vitesse présentent des secteurs plus désorientés entre eux (figure II-24). Chaque secteur a cependant une bonne qualité cristalline intrinsèque. Quant au barreau solidifié sous fort gradient et faible vitesse, dont la topographie neutrons est présentée sur la figure II-25, il fait apparaître des désorientations à une échelle plus petite : il apparaît de petits paquets de dendrites répartis de façon homogène sur toute la section. Ces paquets pourraient être l'équivalent des sous-structures déjà rencontrées. Enfin, les échantillons tirés sous fort gradient et forte vitesse présentent des désorientations très importantes et apparemment, à petite échelle.

Compte tenu des études précédentes et de ces résultats, on peut imaginer quels sont les effets de la vitesse et du gradient. La vitesse semble jouer sur l'intensité des désorientations, plus que sur leur échelle. Le gradient thermique joue sur l'échelle des désorientations : à faible gradient, la contribution principale est la désorientation entre secteurs, les sous-structures étant faiblement désorientées entre elles. A fort gradient, la contribution principale à la désorientation provient des sous-structures.

c. *Effet des traitements thermiques*

Un autre paramètre va avoir de l'importance dans notre étude ; il s'agit des traitements thermiques. Au niveau industriel, ce paramètre décidera si les défauts cristallins existant dans les pièces brutes de coulée sont des défauts réhivitoires encore présents dans la pièce finale, après traitement thermique.

Giamei [75] indique que les traitements thermiques ont une influence négligeable sur la qualité cristalline des barreaux. En revanche Bellet et Bastie [74] observent que le recuit d'homogénéisation permet de diminuer globalement (à l'échelle de l'échantillon) les désorientations des plans réticulaires. Ils estiment que cela est dû à une relaxation des contraintes dans le matériau. Cet effet du recuit observé pour les barreaux solidifiés sous faibles gradients thermiques est beaucoup moins marqué pour les monocristaux obtenus sous fort gradient thermique.

Etant donné ces résultats, on peut dire que dans l'ensemble, les désorientations sont peu modifiées par les traitements thermiques. Les désorientations ne peuvent pas alors être éliminées par traitements thermiques et constitue donc un défaut gênant pour les pièces finales. On admet que, à l'échelle de quelques dendrites, la relaxation des contraintes après traitement thermique est faible, et que les désorientations demeurent, ce qui sera confirmé au paragraphe V.1.1.b.1.

Chapitre 111

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

III.1. Le matériau brut de solidification

III.1.1. Données physiques et chimiques

Le matériau utilisé dans cette étude est l'AM1 ; c'est un superalliage base nickel conçu pour la fabrication de pièces monogranulaires. Il est constitué à température ambiante de deux phases γ et γ' , les précipités de γ' servant à durcir la matrice γ . A cette température, les précipités occupent une fraction volumique d'environ 70%. La phase γ' se caractérise par une structure cubique faces centrées dont le paramètre de maille $a_{\gamma'}$ est très proche de celui de la phase γ : l'écart paramétrique relatif $\delta = (a_{\gamma'} - a_{\gamma}) / a_{\gamma}$ est positif à température ambiante et inférieur à 5.10^{-3} . La composition de l'AM1 est donnée dans le tableau III-1, sa densité est de 8,6 :

élément	W	Co	Cr	Al	Mo	Ta	Ti	Ni
% pond.	5,5	6,5	7,5	5,2	2	8,6	1,2	reste

Tableau III-1 : teneurs massiques des éléments d'alliage dans l'AM1.

Le rôle des différents éléments d'alliage a été rappelé par Fredholm [81] : l'aluminium durcit le matériau en tant que constituant principal de la phase γ' ; il apporte, avec le chrome, une protection à haute température contre l'oxydation. Le titane et le tantale durcissent les précipités. Le molybdène et le tungstène favorisent un durcissement de phase solide. Enfin le cobalt a pour rôle principal de diminuer la solubilité dans γ des éléments favorisant la précipitation. Dans ce type de superalliage base nickel, dits de seconde génération, les éléments renforçateurs des joints de grains ont été éliminés. Cette absence d'éléments comme le carbone, le bore ou le zirconium accroît la température de fusion commençante de l'alliage et augmente la "fenêtre" de mise en solution. Cette fenêtre, qui correspond à l'écart de température entre la température de fusion commençante et le solvus de l'alliage, permet de remettre les précipités de γ' en solution pour effectuer ensuite par traitement thermique une précipitation optimale [1,82,83].

L'intervalle de solidification de l'AM1 est de 54 °C : la solidification commence à 1364 °C en phase γ (température de liquidus) et se termine par un dépôt eutectique $\gamma-\gamma'$ à 1310 °C [84]. Dans les pièces étudiées, brutes de solidification, la fraction volumique de phase eutectique a été mesurée par analyse d'images ; elle est de $4,5 \pm 1$ %. Les valeurs des coefficients de partage à l'équilibre, k_i , et des pentes de liquidus, m_i , pour les différents éléments d'alliage sont tirés de la thèse de Chehaïbou [53] ; elles sont reportées dans le tableau III-2. Les variations de composition relevées dans le solide pour un alliage de composition voisine de l'AM1 entre les zones de début de solidification, au centre des

axes primaires de dendrites, et les zones de fin de solidification sont indiquées sur la figure III-1. Comme l'ont déjà observé Kattamis et Flemings [85] sur un acier faiblement allié, Chehaïbou note que la composition de l'alliage est plus homogène dans les zones solidifiées les premières, à l'échelle dendritique. La portion de solide qui correspond à une composition homogène sera appelée "cœur de dendrite" ; elle correspond aux croix blanches sur la micrographie de la figure II-2.

élément	W	Co	Cr	Al	Mo	Ta	Ti
k_i	1,38	1,09	0,92	0,91	0,78	0,76	0,58
m_i en K K/% pond.	0,80	0,70	- 3	- 15	- 4,8	- 5	- 16

Tableau III-2 : valeurs des coefficients de partage et des pentes de liquidus, d'après [53].

III.1.2. Précipitation

La température de précipitation dépend de la vitesse de refroidissement et de la composition à l'échelle locale. La précipitation a donc lieu dans un intervalle de température. Dans les conditions industrielles de solidification, la précipitation commence à 1293 °C [84] dans les zones de fin de solidification, c'est-à-dire dans les espaces interdendritiques, pour se terminer au cœur des dendrites. La morphologie des précipités obtenus sur des échantillons bruts de solidification est caractéristique : des chapelets de précipités, tels que ceux montrés sur la figure III-2 marque la zone d'accolement de deux dendrites, où la précipitation s'est effectuée en premier lieu. La forme arrondie des précipités, ainsi que leur grande taille, montre l'existence de contraintes ou de défauts dans cette zone. De part et d'autre de la surface d'accolement, sur une épaisseur de 15 μm , la morphologie des précipités est grossière (figure III-3), alors qu'à l'intérieur des dendrites, ils se présentent sous forme de cuboïdes (figure III-4). Cette différence caractéristique de morphologie permet de séparer clairement le cœur de la dendrite, de composition homogène, du solide de fin de solidification, ou espace interdendritique.

III.2. Réalisation des éprouvettes

Les éprouvettes utilisées dans le cadre de cette étude ont été réalisées à la SNECMA et solidifiées dans des fours industriels.

III.2.1. Thermique

a. Dans le four

a.1. Principe de la solidification dirigée

La solidification a lieu sous vide, dans un four cylindrique constitué de deux parties : une partie chaude en haut du four et une partie froide en bas définissant un gradient thermique vertical. La partie haute du four est chauffée grâce à un résistor en graphite situé sur le pourtour du four. La partie basse est refroidie par un serpentín en cuivre dans lequel circule de l'eau à température ambiante. Pour limiter les échanges thermiques et garder un gradient thermique longitudinal le plus élevé possible, les deux parties du four sont séparées par un écran thermique. Le moule étant porté à une centaine de degrés au-dessus de la température de liquidus de l'alliage, le métal liquide est versé dedans. La solidification débute en bas du moule au contact d'une sole constituée d'une plaque circulaire en cuivre refroidie à l'eau [82]. L'ensemble moule-métal est alors tiré vers le bas et passe successivement de la zone chaude du four à la zone froide, à vitesse imposée. Dans la zone chaude, le résistor fournit de la chaleur par rayonnement à l'ensemble moule-métal ; la chaleur est ensuite extraite par rayonnement dans la partie refroidie et par conduction à travers le solide et la sole.

Afin d'obtenir une solidification dirigée longitudinale, le gradient de température et la vitesse de tirage sont choisis pour que le front de solidification soit légèrement au-dessus de l'écran thermique [86]. On estime alors que la vitesse d'avancée du front est égale à la vitesse de tirage. La figure III-5 présente les différents types de structure de solidification obtenus en fonction des conditions de solidification. Les frontières des différents domaines de croissance dépendent du rapport G/V (cf § II.1.1.a). La figure montre qu'il est nécessaire, afin d'éviter une croissance équiaxe, de rester dans un domaine où le rapport G/V est inférieur à une valeur critique [1,86]. Par ailleurs, afin d'obtenir une structure fine et donc des temps de traitement thermique les plus courts possibles, mais aussi, pour diminuer le risque de germination parasite et augmenter la productivité, les industriels cherchent à atteindre des gradients thermiques et des vitesses de tirage élevés. De ce fait, la solidification a lieu dans le domaine de croissance colonnaire dendritique [87].

a.2. Existence de gradients thermiques radiaux

Du fait du mode de chauffage et de refroidissement, il existe dans le four des gradients thermiques latéraux. Lorsque le métal se trouve dans la partie chaude du four, la température est plus basse pour les régions des pièces situées vers le centre du four. Au contraire, en-dessous des écrans thermiques, le profil de température s'inverse.

b. Dans une pièce

Un des paramètres qui détermine le gradient thermique au niveau de la zone pâteuse est la forme de l'écran thermique [86], qui limite plus ou moins les pertes radiatives entre la partie chaude et la partie froide du four. Ces pertes dépendent donc de la forme des pièces à solidifier. Ainsi, suivant la forme de la pièce, ou s'il y a plusieurs pièces coulées en même temps, le gradient effectivement obtenu dans la zone pâteuse sera différent pour des conditions nominales de coulées identiques. Il variera également dans une pièce en cours de solidification en fonction de la distance au début de la pièce et dépendra des dimensions des sections transversales [86,88]. A cause des gradients thermiques latéraux existants dans le four, les conditions de solidification seront différentes suivant la position des différentes régions des pièces dans le four. Différentes coulées instrumentées réalisées dans les fours utilisés pour cette étude montrent que d'une façon générale, la vitesse d'avancée du front de solidification est supérieure à la vitesse de tirage.

III.2.2. Forme des éprouvettes

Des pièces modèles monogranulaires ont été réalisées en solidification dirigée. Les conditions de coulée correspondent à celles du procédé industriel : gradient thermique longitudinal faible, de 20 K/cm dans la zone pâteuse, et vitesse de tirage de 4 mm/min. Les pièces ont été coulées par grappe de quatre, placées symétriquement par rapport au centre du four.

a. Sélection et repères cristallographiques

Chacune des pièces est munie de son propre sélecteur. Celui-ci utilise les directions cubiques $\langle 001 \rangle$ de croissance facile des cfc pour sélectionner un grain unique. Les dendrites appartenant à ce grain ont l'une de leurs directions de croissance proche de la direction de tirage. Dans la suite de l'étude, cette direction cristallographique de croissance sera la direction [001]. Le sélecteur permet également de choisir l'orientation des autres directions secondaires $\langle 100 \rangle$ par rapport au rayon du four. Un repère cristallographique a

alors été associé à chaque éprouvette, pour décrire sa position par rapport au sélecteur ou par rapport au four.

La majorité de l'étude a été réalisé avec des éprouvettes dans lesquelles l'une des directions cubiques est proche de celle du rayon du four passant par le centre de la pièce: il s'agit de la direction [010]. La direction [100] est choisie en fonction des deux premières directions pour réaliser un trièdre direct ; elle est donc proche d'une tangente au rayon du four.

Pour compléter l'étude, quelques pièces ont été coulées à partir d'un sélecteur qui donne des directions secondaires faisant un angle de 45° avec le rayon du four passant par le centre de l'éprouvette. Sans autre précision, les pièces auxquelles il sera fait référence dans la suite de l'étude correspondent à des pièces dont la direction [010] est proche d'un rayon du four.

b. Forme des éprouvettes

En s'éloignant du sélecteur où la solidification débute, les différentes pièces réalisées comportent les parties suivantes : des zones de séparation dans lesquelles le grain initial se divise, des branches indépendantes et parallèles à la direction de tirage, et enfin une zone de raccordement où les branches se rejoignent. Deux types d'éprouvettes, comportant respectivement deux et quatre branches, ont ainsi été fabriquées.

b.1. Eprouvettes à deux branches

Le schéma de ces pièces ainsi que la position dans le four de la grappe de quatre éprouvettes, sont indiqués sur la figure III-6. La zone de séparation de ces pièces est ménagée, c'est-à-dire que les surfaces extérieures sont inclinées par rapport à la direction de tirage. Les branches sont longues de 110 mm et de sections identiques ($11 \times 19 \text{ mm}^2$), leur écartement est de 30 mm. Ces branches sont situées dans un plan tangentiel, perpendiculaire à un rayon du four cylindrique. Les pièces se terminent par une zone de raccordement, elle aussi ménagée. Une seule de ces pièces a principalement été utilisée.

b.2. Eprouvettes à quatre branches

Deux grappes d'éprouvettes ont été utilisées. Le schéma de ces éprouvettes est montré sur la figure III-7. Les zones de séparation sont abruptes, c'est-à-dire à angle droit par rapport à la direction de tirage. En sortie de sélecteur, on a placé une première zone de

séparation du grain. Une partie du grain initial se poursuit dans une branche verticale située au-dessus de la sortie du sélecteur, que l'on appellera "branche du milieu". Celle-ci conduit le grain jusqu'à une deuxième zone de séparation positionnée à 90° de la première. Les zones de séparation sont situées soit parallèlement à un rayon du four, soit tangentiellement. Les quatre branches issues des zones de séparation, aboutissent à une couronne circulaire qui constitue la zone de raccordement. Les éprouvettes réalisées suivant ce type se différencient par la position dans le four de la première zone de séparation, parallèle ou tangentielle au rayon du four, par la longueur des branches issues de la deuxième zone de séparation ou encore par la position du sélecteur dans le four et par la sélection de l'orientation des directions secondaires $\langle 100 \rangle$. Dans ces éprouvettes, la longueur des branches les plus longues est de 44 mm et la section de toutes les branches est de $7 \times 7 \text{ mm}^2$. On appellera "branches tangentielles" les branches issues de la zone de séparation perpendiculaire au rayon du four et "branches radiales" les deux autres. Par ailleurs on différenciera la "radiale centrale" située le plus près du centre du four de la "radiale externe". Enfin, on désignera par "côté interne", le côté des branches situé vers le centre de l'éprouvette.

III.3. Techniques d'investigation

III.3.1. Etude des ségrégations

Les études de ségrégations chimiques ont été réalisées par microanalyse X. Un faisceau électronique bombarde une zone d'une section à analyser. Sous l'effet de ce faisceau, des électrons sont arrachés aux atomes dont la configuration électronique se réarrange. Ceci conduit à une émission de rayons X dont les longueurs d'onde correspondent à des transitions entre niveaux électroniques, caractéristiques des éléments chimiques constitutifs du matériau. L'intensité du rayonnement est reliée à la concentration de l'élément étudié dans le matériau. Les résultats bruts obtenus sont exploités après correction par un programme informatique tenant compte de l'absorption, du numéro atomique et de la fluorescence en fonction des divers éléments présents dans le matériau (programmes ZAF et PAP). Ces programmes sont utilisables pour des échantillons épais d'au moins plusieurs micromètres, qui absorbent complètement le rayonnement incident [89]. Les programmes de correction permettent de connaître la concentration de l'élément étudié pourvu que celle-ci soit la même dans toute la zone excitée par le faisceau électronique.

L'analyse à la microsonde de Castaing a été utilisée pour mesurer les ségrégations à l'échelle des dendrites ainsi qu'à l'échelle de sections transversales. Compte tenu de l'existence de précipités à l'échelle de quelques microns, on a cherché à recueillir une intensité X moyennant celles de la matrice et des précipités. Pour cela, le faisceau électronique a été défocalisé à un diamètre de 10 μm pour englober l'ensemble des deux phases γ et γ' . D'autre part il a été réglé à un diamètre de 500 μm pour moyenner les variations de composition à l'échelle dendritique dans le cas de l'étude des ségrégations à l'échelle de la section. On a estimé les compositions des phases γ' et γ suffisamment proches, et les ségrégations chimiques entre dendrites et espaces interdendritiques suffisamment faibles, pour que les programmes de correction puissent être appliqués aux intensités X moyennes.

a. Conditions opératoires

a.1. Préparation des échantillons

La profondeur de la zone excitée d'où provient le rayonnement X est faible ($\approx 1\mu\text{m}$) : la microsonde est avant tout une technique de surface, utilisée sur des sections découpées dans le métal. Pour que cette surface soit représentative du métal étudié, il est nécessaire d'éviter toute altération chimique provenant par exemple d'une attaque métallographique. Un relief de la surface peut être également source d'artefacts. Pour minimiser les erreurs de mesure, les surfaces à analyser sont donc polies mécaniquement jusqu'à un drap avec pâte diamant de granulométrie 3 μm et ne sont pas attaquées.

a.2. Pics mesurés

Dans la mesure du possible et en fonction des contraintes de temps, les huit éléments constituant l'alliage ont été analysés. Pour cette étude, deux microsondes ont été employées : une CAMEBAX MBX pour les analyses non automatiques et une CAMEBAX SX50 pour les mesures réalisées de façon automatique. Dans le premier cas, les transitions électroniques (les pics) et les tensions d'accélération des électrons incidents sont choisies de façon à obtenir le meilleur rendement avec les spectromètres disponibles. Dans le second cas, une seule tension d'accélération a été utilisée : un compromis entre les différents éléments à analyser a dû être fait. Le rayonnement X est analysé à l'aide de monocristaux PET, TAP ou LiF. Ils sont montés dans l'appareil de telle sorte que le cristal, la région analysée de l'échantillon et le détecteur se trouvent sur un cercle de focalisation comme l'indique la figure III-8 [90]. D'autre part, le courant électronique incident est réglé à une valeur proche de 25 nA.

Les éléments présents dans l'alliage étant nombreux, un soin particulier dans le choix des pics servant à l'analyse a été apporté pour éviter des chevauchements entre pics de différents éléments.

• analyse non automatique :

Le meilleur rendement est obtenu quand l'énergie des électrons incidents est 3 à 4 fois supérieure à l'énergie d'ionisation de la couche choisie. Les raies d'ordre supérieur à 1 sont éliminées par le système électronique associé aux détecteurs. Le tableau III-3 indique les tensions d'accélération choisies et les raies étudiées pour chacun des éléments d'alliage de l'AM1. Il présente également les raies voisines des autres éléments pouvant perturber la mesure de la concentration de l'élément donné.

Elément	Tension (kV)	Raie	Cristal analyseur	Raies voisines des autres éléments
Al	10	K α 1	TAP	Ti K α 1 (3ème ordre) Cr K β 1 (4ème ordre) Ni K α 1 (3ème ordre)
Mo	10	L α 1	PET	Co K α 1 (3ème ordre)
Ti	25	K α 1	LiF	
Cr	25	K α 1	LiF	Ta L α 1 (2ème ordre)
Co	25	K α 1	LiF	
Ni	25	K α 1	LiF	Co K β 1 (1er ordre) W L α 1 (1er ordre)
W	25	L α 1	LiF	Ni K β 1 (1er ordre)
Ta	25	L α 1	LiF	Ni K β 1 (1er ordre)

Tableau III-3 : conditions de dosage par microanalyse X des différents éléments.

Le tableau III-3 montre que, malgré l'élimination des raies d'ordre supérieur à 1, le dosage d'éléments comme le nickel, le tungstène, le tantale, voire le chrome peut être perturbé. Dans le cas du nickel et du chrome, la perturbation est très faible, soit parce que les raies perturbatrices sont des raies de très faible intensité, soit parce que le nickel est présent en grande quantité dans l'AM1, au contraire du cobalt et du tungstène. Le problème principal reste la perturbation de la mesure du tungstène et du tantale par le nickel. On en a tenu compte dans les mesures, en retranchant la contribution du nickel aux longueurs d'onde du tantale et du tungstène.

• analyse automatique

La tension a été prise égale à 20 kV. Les raies et les cristaux choisis pour l'étude avec la microsonde SX50 sont identiques à ceux utilisés avec la microsonde MBX pour presque tous les éléments ; seules les raies $K\alpha$ du titane et du chrome ont été étudiées avec un cristal PET à la place d'un cristal LiF. Dans ce cas, la contribution du nickel aux raies du tungstène et du tantale n'a pas été retranchée.

a.3. *Exploitation des résultats bruts*

Pour déduire le pourcentage massique d'un élément à partir de l'intensité du pic étudié I_{PE} , celle-ci est comparée, après déduction du bruit de fond I_{BFE} , à l'intensité nette I_T obtenue sur des témoins.

$$\text{Rapport } c = \frac{I_E}{I_T} = \frac{I_{PE} - I_{BFE}}{I_{PT} - I_{BFT}} \quad (\text{III-1})$$

Dans le cas de l'analyse non automatique, les témoins utilisés sont des éléments purs ; dans le cas de l'analyse automatique, c'est un échantillon d'AM1 homogénéisé à 1300°C pendant 100 h et dont la composition, donnée dans le tableau III-6, a été analysée par voie chimique par le laboratoire de recherche d'IMPHY S.A. Un balayage microsonde a permis de vérifier que l'échantillon était effectivement homogène. Dans le cas des témoins purs, le bruit de fond a été mesuré sur l'échantillon et le témoin considéré de part et d'autre du pic analysé. De plus, pour le tantale et le tungstène, la raie $K\beta$ du nickel a également été mesurée sur le témoin de nickel en vue d'estimer sa contribution sur l'échantillon.

Le rapport c entre intensités nettes du pic de l'élément analysé sur l'échantillon et sur le témoin est ensuite corrigé par le programme ZAF développé par Ruste [91] pour la microsonde MBX et par le programme PAP réalisé par Pouchou et Pilchoir [92] pour la microsonde SX50. En ce qui concerne l'alliage étudié, La correction des résultats bruts par ces programmes correspond à la multiplication du rapport d'intensité par un coefficient m variant peu d'une mesure à l'autre. Dans le cas où tous les éléments d'alliage n'ont pu être analysés, ce coefficient m , donné dans le tableau III-4 permet d'obtenir la composition massique.

m	Al	Mo	Ti	Cr	Co	Ni	Ta	W
ZAF	1,355	1,247	1,066	0,971	1,031	0,994	1,189	1,315
PAP	1,303	1,242	1,040	0,953	0,996	0,988	1,237	1,374

Tableau III-4 : coefficients de correction donnés par les programmes ZAF et PAP.

Après correction par le programme ZAF ou PAP, seuls sont retenus les résultats dont les bouclages varient entre 102,5% et 97,5%. Dans le cas de l'analyse non automatique, certaines séries de résultats révèlent des bouclages systématiquement inférieurs à 99%. Dans ce cas, chaque analyse de la série dont le bouclage est supérieur à 97,5% voit la somme de ses compositions massiques ramenée à 100% par un coefficient multiplicatif. Excepté ce cas, les résultats sont laissés tels quels. En ce qui concerne les résultats obtenus sur la microsonde automatique, tous les bouclages sont ensuite ramenés à 100%.

b. Macroségrégations

La présence d'éventuelles macroségrégations dans les pièces a été recherchée, en analysant la composition moyenne de sections transversales à différentes hauteurs dans la pièce. Pour estimer la composition moyenne des sections, le faisceau électronique incident, défocalisé de diamètre 500 μm , est utilisé sur la microsonde non automatique. Un quadrillage de 14 points sur les sections de 209 mm^2 et de 9 points sur les sections de 49 mm^2 est alors effectué. Ce quadrillage est choisi de façon à ce que sa périodicité soit non multiple de celle des structures de solidification ; le large diamètre de la sonde, du même ordre de grandeur que la taille de ces structures, permet d'intégrer les variations de celles-ci et d'améliorer la prise de moyenne. Dans ces conditions, la moyenne des compositions obtenues pour chacun des points d'analyse représente la composition moyenne sur la section. Il est bon de noter cependant que, même si la taille du faisceau est grande, les points situés au voisinage immédiat du cercle de focalisation auront plus de poids que ceux situés sur le bord de la surface analysée du fait du système de détection par cristal analyseur (figure III-8). La défocalisation du faisceau électronique produit ainsi un élargissement des pics du rayonnement X, la position du maximum restant identique à celle obtenue lorsque le faisceau n'est pas défocalisé. Le temps de comptage est, pour chaque point et pour chaque élément, de 3 fois 10 s (le fait de recommencer 3 fois la mesure permet de limiter une éventuelle dérive de la chaîne de comptage). Pour ces analyses, l'intensité du pic sur les témoins purs est aussi mesurée avec un faisceau défocalisé.

c. Compositions au cœur des dendrites

La possibilité d'évaluer des sursaturations pourrait permettre d'obtenir des renseignements sur les conditions de croissance à la pointe des dendrites. Pour avoir accès à cette grandeur, il faut connaître la composition du premier solide déposé et pouvoir la comparer à la composition du liquide initial. Sur des échantillons bruts de solidification, la composition du premier solide déposé à la pointe des dendrites est assimilé à la composition

au centre des axes primaires des dendrites, et la composition du liquide à la composition moyenne obtenue lors de l'étude des macroségrégations.

Aussi, avec la même microsonde et avec des conditions d'analyse les plus proches possibles de celles employées pour les études de macroségrégations, les compositions au centre des axes primaires des dendrites ont été mesurées sur les sections transversales en utilisant un faisceau défocalisé de 10 μm de diamètre, de façon à intégrer localement la matrice et les précipités.

Le centre des axes primaires de la dendrite est repéré par trois empreintes de microdureté, effectuées sur la section après attaque chimique. La section est ensuite polie pour ôter la couche chimiquement altérée et lisser le relief sans effacer les empreintes. Le point d'impact du faisceau est vérifié a posteriori en attaquant chimiquement la section, comme le montre la figure III-9. Pendant l'analyse à la microsonde, le craquage des molécules d'huile provenant de la pompe à vide sous l'effet du faisceau électronique aboutit à un dépôt de carbone protecteur vis-à-vis des attaques chimiques. Pour limiter les effets de ce dépôt sur les résultats des mesures, les éléments analysés avec la tension d'accélération la plus faible (10 kV) sont mesurés en premier, le dépôt ayant moins d'influence sur les résultats obtenus avec les fortes tensions d'accélération (25 kV). Le temps de comptage utilisé est plus long que dans le cas des macroségrégations, puisque l'on s'intéresse non plus à des moyennes mais à des valeurs précises de la composition en chaque point. Le temps de comptage employé est de 12 fois 10 s.

d. *Microségrégations*

Le déroulement de la solidification à l'échelle de la microstructure dendritique a été étudié en analysant la redistribution des éléments d'alliages de sections transversales. Pour cela, des mesures ponctuelles, avec un faisceau défocalisé à 10 μm , ont été réalisées de façon automatique sur une trame de 12 x 12 points, avec une période spatiale de mesure de 200 μm . La microsonde utilisée est la CAMEBAX SX50 du Centre Commun de Microanalyse de NANCY I. Une attaque métallographique permet de révéler a posteriori les endroits analysés pour vérifier la validité du point de mesure et noter les points remarquables : centre de dendrites et eutectique. Le temps de comptage varie suivant les éléments. Il a été choisi égal à 10 s pour le nickel, le cobalt et le chrome, à 20 s pour le titane, le molybdène et l'aluminium, et à 30 s pour le tantale et le tungstène.

e. *Résultats*

e.1. Incertitude

Le rayonnement X est un phénomène aléatoire dont la statistique suit la loi de POISSON. Les incertitudes dépendent du nombre brut d'impulsions reçues, N, et donc de la chaîne de mesure [93]. Pour chacune des conditions d'analyse employées en mesures non automatiques, le temps de comptage t_{PE} du pic sur les témoins a été de 60 s, tandis que la mesure du bruit de fond a duré sur échantillon et sur témoin un temps t_{BF} de 30 à 60 s. Dans les conditions où ont été réalisées les analyses, les erreurs relatives pour chacune des mesures sont données dans le tableau III-5. Les incertitudes sont plus faibles dans le cas de la défocalisation à 10 μm parce que les pics sont plus intenses et les temps de comptage sur l'échantillon plus longs. La valeur de l'incertitude relative V_c est calculée à partir des incertitudes relatives V_X obtenues sur l'échantillon et le témoin (respectivement X = E ou T) :

$$V_x = \frac{\sigma_x}{I_x} = \frac{\sqrt{\frac{N_{PX}}{t_{PX}^2} + \frac{N_{BFX}}{t_{BFX}^2}}}{\frac{N_{PX}}{t_{PX}} - \frac{N_{BFX}}{t_{BFX}}} \quad (\text{III-2})$$

Pourvu que V_E et V_T soient inférieurs à 10 %, le rapport c suit alors une loi normale. Son incertitude relative, et donc celle sur les compositions, est alors donnée par :

$$V_c = \frac{\sigma_c}{c} = \sqrt{V_E^2 + V_T^2} \quad (\text{III-3})$$

	Ti	Cr	Co	Al	Mo	W	Ta	Ni
	incertitudes relatives							
faisceau 500 μm	<4,7%	0,7%	0,7%	0,9%	4,7%	2,5%	0,7%	0,6%
faisceau 10 μm	1,4%	0,4%	0,4%	0,5%	<1,4%	0,6%	0,4%	0,5%
	incertitudes absolues (en pourcentage massique)							
faisceau 500 μm	0,05	0,05	0,04	0,05	0,09	0,14	0,06	0,38
faisceau 10 μm	0,02	0,03	0,03	0,02	0,03	0,03	0,03	0,32

Tableau III-5 : incertitudes relatives et absolues, liées aux fluctuations statistiques du rayonnement X. L'évaluation est faite pour la composition nominale de l'AM1.

Pour vérifier la validité expérimentale des incertitudes évaluées à partir de la statistique du rayonnement X, divers pointés ont été réalisés sur l'ensemble de la section transversale de l'échantillon d'AM1 homogénéisé qui a servi de témoin pour les analyses automatiques. Le coefficient de variation, rapport entre l'écart-type de la population de pointés et la composition moyenne, obtenu pour chaque élément est inférieur ou égal à l'incertitude relative calculée. Ce bon accord confirme la validité des calculs.

e.2. Justesse

En analyse automatique, l'échantillon d'AM1 homogénéisé et analysé par voie chimique a servi de témoin. Pour la microsonde MBX, cet échantillon a servi d'étalon pour vérifier la justesse des mesures. La comparaison des résultats obtenus en microsonde et ceux obtenus par voie chimique montre une différence avec un écart relatif qui varie suivant l'élément. Les valeurs de teneurs massiques sont données dans le tableau III-6. Le programme PAP permet de diminuer légèrement les différences, sauf pour des éléments comme le tantale et le tungstène. Avec un faisceau défocalisé de diamètre 10 μm , l'écart avec la composition réelle diffère peu de l'écart obtenu avec un faisceau défocalisé à 500 μm , sauf pour l'aluminium et le tungstène. Les résultats de calculs de sursaturation, effectués à partir de mesures réalisées avec ces deux modes de défocalisation, devront être utilisés avec précaution en ce qui concerne ces deux éléments.

	analyse par voie chimique	microsonde défoc. 10 μm programme ZAF	microsonde défoc. 500 μm programme ZAF	microsonde défoc. 500 μm programme PAP
Ti	1,200 %	1,29 %	1,27 %	1,24 %
Cr	7,425 %	8,14 %	8,20 %	8,06 %
Co	6,490 %	6,79 %	6,80 %	6,56 %
Al	5,110 %	5,60 %	5,775 %	5,54 %
Mo	1,990 %	1,98 %	2,00 %	1,99 %
W	5,275 %	5,38 %	5,23 %	5,46 %
Ta	7,995 %	8,13 %	8,13 %	8,48 %
Ni	64,408 %	64,29 %	65,00 %	64,67 %
C	0,0142 %			
Fe	0,0425 %			
Si	0,03 %			
P	0,02 %			

pourcentage total	100 % (calcul de Ni par différence)	101,6 %	102,4 %	102 %
-------------------	-------------------------------------	---------	---------	-------

Tableau III-6 : comparaison des valeurs de teneurs massiques de l'échantillon d'AM1 homogénéisé, obtenues par voie chimique et par mesures réalisées avec la microsonde non automatique.

III.3.2. Métallographie

a. *Attaque métallographique*

Pour révéler la structure dendritique, des sections transversales ou longitudinales sont prélevées dans les pièces. Après un polissage jusqu'au feutre à pâte diamant de granulométrie 3 μm , les sections sont attaquées avec le réactif "FRY" : 80 ml HCl, 10 g CuCl_2 , 60 ml H_2O , 30 ml $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$. Le réactif agit en attaquant différemment les phases γ et γ' . Il permet d'obtenir une attaque dépendant des structures de solidification et sensible également à l'orientation cristallographique des différentes sections. Les sections sont ensuite photographiées sous microscope, en général avec un grossissement de 1,6 ; diverses mesures, comme la mesure de densité d'axes dendritiques primaires sont effectuées sur les photos obtenues. La figure II-2 présente un exemple des structures de solidification telles qu'elles apparaissent sur sections transversales.

Des attaques macrographiques des pièces entières ont également été réalisées par la SNECMA, après polissage au jet de sable. Ces attaques macrographiques permettent de mettre en évidence l'existence éventuelle de plusieurs grains et l'orientation approximative des dendrites (figure III-10).

b. *Mesure de densités d'axes*

Les mesures de densité d'axes primaires ont été réalisées sur sections transversales. Ces mesures sont faites par comptage sur une surface matérialisée par un cache carré. Pour limiter l'erreur de comptage due aux dendrites touchant le bord du masque, la procédure suivante a été suivie : toute dendrite touchant les bords haut et gauche n'a pas été comptabilisée ; par contre toute dendrite en contact avec les bords bas et droite a été prise en compte. L'erreur obtenue par ce procédé, estimée à partir de plusieurs comptage sur la même zone et avec différentes tailles de cache, est de l'ordre de $\pm 0,5 \text{ mm}^{-2}$. Les surfaces de comptage ont été choisies de façon à pouvoir dénombrer environ une quarantaine de dendrites : la taille du cache principalement utilisé correspond à une surface réelle sur la

section de 9 mm². Ce choix, de 40 dendrites est un compromis entre la nécessité d'avoir suffisamment d'axes primaires dans le champ d'analyse pour diminuer l'erreur d'échantillonnage et le risque d'erreur de comptage quand un trop grand nombre d'axes doivent être repérés, du fait que le comptage s'effectue manuellement. De plus, un trop grand nombre de dendrites risque de masquer des variations de densité à l'échelle de la section.

Lorsque les sections sont petites et les variations de densité clairement visibles, un nombre moins grand de dendrites a servi pour l'estimation de la densité d'axes primaires.

Le passage de la densité d'axes primaires au calcul de l'espacement primaire λ_1 a été fait à partir des travaux de Jacobi et Schwerdtfegger et Lacaze [60,61] (cf § II.2.1.b) : la relation $\lambda_1 = 1,0375.n_p^{-0,5}$ a été utilisée pour tenir compte d'un arrangement dendritique en partie carré et en partie hexagonal.

c. Arrangement dendritique

c.1. Simulation de moirés

Sur certaines coupes longitudinales, il est possible de voir apparaître un effet de moiré associé au fait que la coupe n'est pas parfaitement parallèle aux axes de croissance des dendrites $\langle 001 \rangle$. Cet effet est mis en évidence par la présence de bandes claires sur les coupes, plus ou moins longues et périodiques comme l'illustre la figure III-11. Cet effet a été simulé par Rappaz et Blank [57] en considérant que les dendrites sont agencées selon un réseau orthorhombique centré (cf § II.2.1.b). Un programme informatique a été réalisé à partir du modèle proposé par ces auteurs, mais après introduction d'un paramètre supplémentaire permettant de simuler un réseau dendritique plus aéré et tenant ainsi mieux compte de l'arrangement dendritique réel. La figure III-12 montre le réseau simulé par Rappaz et Blank, tandis que la figure III-13 montre le réseau employé dans cette étude.

La figure III-14 visualise les motifs obtenus lors de l'intersection du réseau de dendrites avec un plan de coupe quelconque. Cette simulation a permis de montrer que chaque bande claire de l'effet de moiré correspond à une rangée de dendrites alignées suivant un axe [010] ou [100] : la bande claire est la trace de l'intersection des axes secondaires avec le plan de coupe. A partir de ce résultat, le programme de simulation permet de relier la périodicité des bandes à l'orientation de la rangée par rapport au plan de coupe et de montrer l'existence d'une proportionnalité de cette périodicité avec la distance entre rangées. L'inclinaison des bandes permet d'estimer l'orientation de l'alignement, c'est-à-dire l'orientation des bras dendritiques secondaires et l'orientation des axes primaires eux-mêmes par rapport au plan de coupe. Les abaques qui donnent les relations existant

entre la désorientation du plan de coupe par rapport au réseau dendritique et les grandeurs mesurables sur le plan de coupe sont indiquées en annexe B. Les abaques réalisées montrent que la précision sur l'orientation est d'autant plus grande que les angles entre plan de coupe et axes de type $\langle 010 \rangle$ sont faibles.

c.2. Etude des premiers voisins

A l'échelle de la section transversale, la position des dendrites et de leurs premiers voisins a été étudiée. Pour cela, la positions du centre de tous les axes primaires a été recueillie dans un fichier de points de coordonnées (x,y), ce qui permet un calcul direct de la distribution des axes primaires. Cette technique permet de plus de chercher des corrélations spatiales pour n'importe quelle sorte de caractéristique qui pourrait être associée à chaque axe primaire, par exemple le nombre de premiers voisins ou une caractéristique cristallographique.

Pour cette partie de l'étude, il est nécessaire de définir précisément ce que l'on appelle premier voisin. Nous avons choisi de nommer premières voisines, les dendrites limitant la croissance latérale durant la solidification de la dendrite concernée. Cela se traduit concrètement par imaginer pas à pas à partir des micrographies la croissance transversale simultanée de la dendrite et de ses voisines. Celles qui bloquent alors la dendrite sont déclarées premières voisines. Cette opération se fait manuellement, à l'œil ; les résultats ont donc un caractère subjectif.

III.3.3. Topographie X

a. Quelques rappels cristallographiques

a.1. Loi de Bragg

Quand un monocristal reçoit un faisceau de rayons X, une famille de plans réticulaires réfléchit ce faisceau si la loi de Bragg est vérifiée :

$$2.d.\sin \theta = n.\lambda \quad (\text{III-4})$$

avec θ , angle de Bragg : angle entre le faisceau incident et les plans cristallins diffractants. d est la distance interréticulaire, λ la longueur d'onde des faisceaux incident et réfléchi et n l'ordre de la réflexion, n prenant une valeur entière. Le faisceau réfléchi forme un angle de 2θ avec le faisceau incident pour une longueur d'onde et une famille de plans données. Sa

direction est contenue dans le plan défini par la direction du faisceau incident et la normale aux plans diffractants. Le plan ainsi défini est appelé plan d'incidence (figure III-15).

Une variation des angles 2Θ et Θ peut être induite par une variation de la longueur d'onde ou une variation de la distance d entre plans :

$$d\Theta = \tan \Theta \left(\frac{d\lambda}{\lambda} - \frac{d(d)}{d} \right) \quad (\text{III-5})$$

a.2. Tir de Laue

L'expérience de Laue en réflexion permet de connaître l'orientation d'un monocristal. Elle est réalisée avec un faisceau X incident polychromatique. Chaque famille de plans réticulaires réfléchit ce faisceau avec un angle Θ et dans une direction caractéristique de l'orientation du monocristal, en choisissant dans le faisceau incident la longueur d'onde appropriée qui vérifie la loi de Bragg. Les clichés obtenus sur des films positionnés face à la surface de métal analysée sont l'équivalent d'une projection du réseau réciproque sur un plan. Chaque tache du cliché est donnée par une famille de plans réticulaires et contient l'image entière de la zone irradiée convoluée à la divergence du faisceau incident.

b. Le rayonnement synchrotron du LURE

Les expériences de topographie en diffraction X ont été réalisées à Orsay, au LURE (Laboratoire pour l'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique), avec le rayonnement X synchrotron de l'anneau DCI. Ce rayonnement est émis par des positons ultra-relativistes tournant dans l'anneau de stockage. Il est dû à l'accélération centripète que subissent les positons dans les aimants de courbure [94]. Le rayonnement ainsi produit possède plusieurs propriétés intéressantes en comparaison des sources X classiques. En premier lieu, le rayonnement est "blanc" ; pour DCI, le spectre de longueurs d'ondes disponibles est continu dans la gamme des énergies de photons X de 20 keV à 4 keV (figure III-16). Le faisceau X est stable dans l'espace et dans le temps. La propriété essentielle de ce faisceau pour les expériences réalisées est sa très grande brillance ou flux de photons par unité de surface, qui, au niveau de l'utilisateur, est plus forte de 1 à 2 ordres de grandeur que celle délivrée par les générateurs de rayons X classiques [95]. Cette brillance du rayonnement synchrotron s'explique non seulement par le flux intense de photons X produits mais aussi par la très faible divergence de la source. En effet, les photons X produits par les positons se trouvent rassemblés dans un cône d'ouverture angulaire d'environ $0,015^\circ$. On considère alors que, horizontalement, le faisceau est quasiment parallèle et que la divergence verticale est environ $0,015^\circ$. Du fait de cette divergence, le faisceau apparaît, au niveau de

l'utilisateur qui se trouve à quelques dizaines de mètres de la source, avoir horizontalement une largeur de 25 mm et verticalement une hauteur d'environ 14 mm.

On peut choisir d'utiliser le spectre blanc du faisceau tel quel ou une longueur d'onde donnée à l'aide d'un monochromateur. Le grand flux de photons permet de réaliser les expériences de topographie en des temps courts. Enfin, sa faible divergence permet d'obtenir des images de haute résolution. La résolution obtenue dans le cadre de cette étude est de l'ordre de quelques dizaines de microns. La grande taille du faisceau incident permet, dans les conditions adéquates, d'éclairer une grande partie, voire la totalité, de l'échantillon étudié.

c. Principe de la technique

c.1. Préparation des échantillons

Comme la longueur de pénétration des rayons X est faible dans le superalliage AM1 (estimée à une dizaine de microns), la technique de topographie X est une technique de surface. Ceci veut dire que les surfaces analysées doivent être soigneusement préparées, les contraintes résiduelles existant sur la surface du fait de la coupe et du polissage éliminées au maximum. Flack [96] a montré qu'un polissage soigné à la pâte diamant de 3 μm suffisait pour avoir des images de bonne qualité.

c.2. Observations réalisées

La technique de topographie X a été employée en observant sur des films photographiques la réflexion d'un faisceau X sur des sections prélevées dans les pièces étudiées. Le faisceau X synchrotron permet d'éliminer dans les taches de diffraction obtenues la part due à la divergence du faisceau incident. Chaque tache de diffraction, que ce soit en faisceau polychromatique ou monochromatique, donne alors une image de haute résolution, où chaque point de la surface ayant diffracté peut être repéré.

c.3. Origine des contrastes

D'une façon générale, les contrastes dans les images obtenues proviennent de deux effets : déplacement d'une partie de l'image par rapport à d'autres ou absence de diffraction. Dans le premier cas, la direction de la normale aux plans diffractants varie d'une région de l'échantillon à l'autre ; ceci correspond soit à une variation du plan d'incidence soit, dans le cas du faisceau polychromatique, à un changement de l'angle de Bragg nécessaire pour que

les plans diffractent. Le second cas se produit en faisceau monochromatique et correspond au fait que les plans ne sont plus en position de Bragg pour diffracter. D'après l'équation III-5, l'angle de Bragg peut changer soit parce que la longueur d'onde varie, soit parce que la distance interréticulaire d varie, du fait de l'existence de contraintes ou de variations de composition chimique. Ce changement de l'angle de Bragg induit en faisceau monochromatique une extinction de la réflexion.

c.4. Choix des conditions d'observations

Il est particulièrement intéressant d'avoir des images de la section les moins distordues possible par rapport à la section elle-même. Le meilleur positionnement du film et de la section par rapport au faisceau incident a été décrit par Newkirk [77] : pour éclairer la plus grande surface possible, le faisceau doit arriver en incidence rasante sur la surface. Pour éviter la distorsion de l'image, la réflexion étudiée doit d'abord être telle que la normale à la surface soit dans le plan d'incidence. De plus, le film doit être perpendiculaire au faisceau réfléchi. La meilleure image sera obtenue pour un film parallèle à la surface.

Les plans diffractants étudiés ont été choisis de façon à éviter les réflexions parasites [96] tout en se rapprochant au mieux des conditions de Newkirk [77]. Pour des sections $\langle 001 \rangle$, les familles de plans $\{113\}$ ont été employées. Les surfaces analysées ont principalement été des sections transversales car l'étude des désorientations cristallines dans les pièces a montré que les désorientations correspondant à des rotations autour de l'axe $[001]$ étaient plus faibles, voire négligeables devant les rotations autour des autres axes $\langle 100 \rangle$. Pratiquement, et surtout dans le cas de l'étude en faisceau polychromatique, le film est placé à une distance supérieure à 50 mm de l'échantillon pour éviter une superposition des différentes taches de diffraction.

d. Topographie en faisceau blanc

La figure III-17 présente une topographie X réalisée en faisceau polychromatique sur une tache de diffraction $\{113\}$ d'une section transversale. La topographie montre la surface dans sa totalité, avec des déplacements relatifs d'image entre les différentes régions de la surface conduisant à la présence sur le film de zones superposées et de zones vides. La technique de topographie en faisceau blanc permet alors de recueillir des informations cristallographiques sur toute la section, et en un seul film. Du fait de la polychromaticité du réseau, chaque plan, dans les différentes régions de la surface, est en position de Bragg. Une variation éventuelle de d , à cause d'une variation de la composition chimique ou de l'existence de contraintes, est automatiquement compensée par le choix d'une longueur

d'onde différente. Les déplacements d'image sont donc uniquement dû à l'existence de désorientations du réseau cristallin d'une région à l'autre de la section. La technique permet de connaître, au moins de façon qualitative, la mosaïcité du réseau cristallin. Une des applications premières est de visualiser l'existence de sous-joints ou de joints de grains.

e. Topographie en faisceau monochromatique

e.1. Principe (figure III-18)

L'étude quantitative des désorientations apparaissant sur une section a été réalisée en faisceau monochromatique. Celui-ci est obtenu par réflexion préliminaire du faisceau blanc sur un monocristal de germanium de grande qualité taillé parallèlement à ses plans (220). La diffraction du faisceau sur les plans de ce cristal obéit à la loi de Bragg et la longueur d'onde réfléchie dépend directement de l'angle de Bragg, angle entre le faisceau incident et la surface du cristal de germanium. Par cette méthode, il est possible de sélectionner toute longueur d'onde désirée, par simple rotation du monochromateur. Le faisceau monochromatisé contient la longueur d'onde désirée, ainsi que toutes ses harmoniques. La réflexion du faisceau monochromatique sur la section pour une famille de plans donnée est ensuite photographiée, le film étant placé sur la position de Bragg 2θ . Pendant l'étude, la section est tournée autour d'un axe de rotation perpendiculaire au plan formé par la normale à la surface et la direction du faisceau incident. Pour chaque pas de rotation pour lequel une image apparaît, une photo est prise. Comme expliqué précédemment, le contraste qui apparaît entre les photos provient de la désorientation des plans ou d'une variation de d . Connaissant la valeur du pas de rotation, il est alors possible de chiffrer les désorientations entre plans. Pour chiffrer toutes les désorientations existant sur la section, en considérant que la rotation autour de [001] est négligeable, deux axes de rotation ont été utilisés, perpendiculaires l'un à l'autre et dans le plan de la section.

e.2. Mise en oeuvre

La longueur d'onde de 1,54 Å, longueur d'onde de la raie $K\alpha$ du cuivre employée par les générateurs de rayons X classiques, a été utilisée. Ceci revenait à choisir un angle de Bragg de $22,7^\circ$ pour le cristal de germanium. Pour des familles de plans {113}, ceci permet d'avoir un angle entre le faisceau monochromatique et la surface de l'échantillon d'environ 20° et un angle de Bragg de $45,9^\circ$ ($45^\circ 54'$). La projection stéréographique du réseau cristallin cfc de l'AM1, centrée sur la normale $\langle 001 \rangle$ aux sections étudiées, est présentée à la figure III-19. On y a indiqué la direction du faisceau incident et la normale aux

familles de plans étudiées. Cette projection montre que les seuls axes de rotation possibles sont des axes $\langle 110 \rangle$.

En pratique, il est apparu nécessaire, pour pouvoir comparer les différents films pris autour d'un même axe de rotation ou autour d'axes de rotation différents, de prendre des repères sur la surface analysée. Pour cela des rayures parfaitement rectilignes ont été faites avec une pointe Vickers sous une charge d'environ 5 N . Les déformations du réseau engendrées au voisinage immédiat de la rayure empêchent celui-ci de diffracter pour les mêmes valeurs angulaires que le reste de la section : les rayures apparaissent alors sur les films par leur absence de réflexion.

e.3. Etude des désorientations

Quand on étudie la rotation d'un plan par rapport à un autre suivant la région de la surface, on peut décomposer le vecteur rotation Ω en trois composantes : Ω_1 , normale aux plans diffractants, Ω_2 , normale au plan d'incidence, et Ω_3 perpendiculaire au plan (Ω_1, Ω_2) [4]. Ω_1 ne change pas les conditions de diffraction et ne produit donc pas de contraste. Ω_2 change l'angle d'incidence du faisceau X monochromatique sur les plans diffractants, de telle sorte que la condition de Bragg n'est plus satisfaite dès que la rotation excède la valeur $\delta\theta$ induite par la divergence du faisceau incident. Enfin, Ω_3 a relativement peu d'influence sur la condition de Bragg, mais changera essentiellement la direction du faisceau diffracté. Sur les films, Ω_3 conduira à un déplacement relatif des différentes régions de la section, tandis que Ω_2 sera mesuré par la rotation de la section, celle-ci permettant de rattraper l'angle de Bragg : des régions de la section qui n'apparaissent pas sur le même film auront une composante de leur désorientation parallèle à Ω_2 .

Il faut noter que s'il existe entre deux régions de la surface une variation du paramètre de maille (variation de composition, existence de contraintes), celle-ci aura le même effet qu'une rotation Ω_2 . La variation de l'angle de diffraction autour de l'axe de rotation sera donc la somme d'une éventuelle désorientation Ω_2 et d'une éventuelle variation de paramètre de maille (on appellera "contraste de maille" l'effet induit par cette variation). Pour séparer les deux contributions, Robert et Lefaucheur [97] proposent d'étudier la rotation pour des mêmes plans diffractants autour d'au moins deux axes à 180° l'un de l'autre. La contribution du contraste de maille donnera une variation systématique dans un sens tandis que le signe de Ω_2 sera inversé.

e.4. Précision

La précision de la technique de topographie X en faisceau monochromatique dépend de plusieurs facteurs. La résolution spatiale, sur les films, dépend de la divergence du faisceau réfléchi, donnée directement par la divergence du faisceau incident et du film photographique utilisé. Celui-ci est un film Kodak M dont la taille des grains est de l'ordre de $0,20 \mu\text{m}$, dimension très inférieure à celle des structures visualisées. En pratique, cette résolution dépend surtout de la qualité du polissage réalisé sur la section. La résolution angulaire de la technique dépend de la divergence verticale du faisceau incident, et du profil de diffraction du cristal de germanium servant de monochromateur. Ces paramètres conduisent en outre à un élargissement de la longueur d'onde sélectionnée. Ce profil de diffraction est donné par la théorie dynamique de la diffraction X pour les cristaux parfaits [98] ; sa largeur à mi-hauteur est égale à $11,8''$, soit $0,0033^\circ$: elle est négligeable devant la divergence du faisceau synchrotron incident ($0,015^\circ$). Celui-ci donnera un élargissement $\Delta\lambda/\lambda$ d'environ 7.10^{-4} pour un faisceau monochromatique ayant une longueur d'onde de $1,54 \text{ \AA}$. La combinaison de la divergence du faisceau et de l'élargissement $\Delta\lambda$ conduit à une divergence angulaire équivalente $\delta\theta$ du faisceau monochromatique. Compte tenu des profils de diffraction typiques présentés par les sections étudiées (figure III-20), le pas de rotation a alors été choisi supérieur à cette valeur $\delta\theta$, et généralement égal à $0,25^\circ$ ($15'$). Il sera donc le facteur limitant la précision angulaire.

e.5. Intérêts

Comme la technique de topographie X en faisceau monochromatique est une technique d'imagerie de surface, la comparaison avec les résultats obtenus en métallographie (visualisation des structures de solidification, arrangement dendritique, ...) est un des intérêts majeurs de cette technique. L'étude comparative des rotations autour des différents axes permet de dresser une carte complète des désorientations. La technique de topographie X, et spécialement en faisceau blanc, permet en outre de repérer immédiatement les désorientations entre régions de la section étudiée.

III.3.4. Diffraction gamma

a. Mise en oeuvre

La technique de diffraction gamma a été utilisée pour étudier les désorientations cristallographiques dans le volume des pièces étudiées. Son principe est similaire à celui de la diffraction X monochromatique et obéit à la loi de Bragg. La longueur d'onde du

rayonnement employé est très faible, 0,02 Å, et les réflexions qui peuvent être étudiées correspondent à de très petits angles de Bragg, inférieurs au degré. De ce fait, la technique est sensible uniquement aux désorientations du réseau cristallin.

L'étude des désorientations du réseau cristallin a été faite par la méthode du cristal tournant. En sélectionnant un type de réflexion et en faisant tourner la pièce autour d'un axe perpendiculaire au plan d'incidence, on obtient un profil de diffraction, c'est-à-dire les variations de l'intensité du rayonnement reçu en fonction de l'angle. Pour étudier les désorientations dans l'espace, les profils de diffraction ont été réalisés pour trois axes de rotation, perpendiculaires entre eux. Les profils de diffraction obtenus par cette technique correspondent à la mosaïcité du réseau cristallin convoluée à la divergence du faisceau incident, les phénomènes d'extinction étant négligeables [74,99].

b. Intérêt de la technique

b.1. Etude en volume

Les photons γ , très énergétiques, sont faiblement absorbés par le superalliage AM1 : l'inverse du coefficient d'absorption du rayonnement par le superalliage est égal à environ 3 cm. Cette faible absorption permet d'étudier les désorientations cristallines dans des morceaux épais de la pièce, voire directement dans la pièce même : la technique permet une étude non destructive. De plus, étant donné que la surface représente un faible volume, sa contribution au profils de diffraction est négligeable. L'état de surface n'intervient pas et l'échantillon ne nécessite alors aucune préparation préliminaire.

b.2. Estimation des volumes diffractants

Avec cette technique, la surface d'un pic du profil de diffraction est en principe proportionnelle au volume diffractant [74]. Cette proportionnalité permet normalement de comparer les volumes diffractants correspondant à différents pics de profils de diffraction (bien entendu pour le même axe de rotation). En pratique, il est malaisé d'utiliser cette information car la comparaison des volumes diffractants n'est utile que si le volume irradié par le rayonnement γ reste identique, notamment pour que l'absorption ne joue pas différemment d'un pic à l'autre. Ceci n'est pas forcément vrai lorsque des profils de diffraction proviennent de deux régions différentes d'une pièce de forme complexe ou lorsque, sur un même profil de diffraction, l'écart angulaire entre deux pics est grand : dans ce cas, le volume de métal que "voit" le rayonnement incident est différent suivant l'angle.

c. Conditions opératoires

Les conditions opératoires et l'appareillage employés sont identiques à ceux utilisés par Bellet [74] (figure III-21) et sont brièvement rappelées ici.

Les expériences ont été réalisées à l'Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble, avec l'aide de P. Bastie et de D. Bellet. La source utilisée est le césium 137 dont la désintégration fournit une seule raie très monochromatique dans le domaine γ à 662 keV. Il est possible de choisir les dimensions du faisceau incident à l'aide d'une fente collimatrice verticale (parallèle à l'axe de rotation). Avec une fente de $2 \times 10 \text{ mm}^2$, l'intensité du faisceau incident reçue est d'environ 10000 coups/seconde. La localisation de la zone irradiée de l'échantillon s'effectue en remplaçant le faisceau γ par un faisceau laser émettant dans le visible. La localisation précise de la zone irradiée reste cependant difficile car, d'une part, le faisceau laser n'a pas la même taille que le faisceau γ , et, d'autre part, la lumière diffracte sur les bords de la fente.

Compte tenu des caractéristiques géométriques de l'appareil, la divergence angulaire du faisceau primaire est voisine de $0,025^\circ$, ce qui est très inférieur aux plus petites désorientations rencontrées dans le matériau. D'autre part, le détecteur n'est pas sensible à la composante verticale du faisceau réfléchi. Chaque profil de diffraction donne alors la projection, dans le plan perpendiculaire à l'axe de rotation, de la distribution des orientations du réseau cristallin (figure III-22).

c.1. Plans et axes de rotation étudiés

Pour caractériser et chiffrer les désorientations présentes dans le matériau, les profils de diffraction étudiés sont ceux obtenus pour la réflexion du rayonnement γ sur des plans réticulaires $\langle 002 \rangle$, avec un balayage angulaire autour d'axes $\langle 001 \rangle$. Ces axes de rotations ont été choisis afin de relier plus facilement les résultats obtenus à la structure de solidification dendritique. Pour avoir accès aux désorientations dans l'espace, que l'on appelle la mosaïcité, les rotations autour des trois axes $\langle 001 \rangle$ ont été étudiées dans un premier temps. Compte tenu des faibles valeurs de désorientation obtenues pour l'axe [001], seule la désorientation autour des deux autres axes a ensuite été effectivement analysée en détail.

Les paramètres quantifiés sur les profils de diffraction dépendent de la forme de ceux-ci. Quand les profils de diffraction ne présentent qu'un seul pic, la largeur à mi-hauteur

(LMH) de ce pic est mesurée. Quand les profils de diffraction présentent plusieurs pics, l'écart angulaire entre les maxima a été mesuré ainsi que la largeur à mi-hauteur de chacun des pics. Certains "pics" présentent une multitude de maxima tels que ceux-ci ne peuvent pas être associés à des pics distincts; ces "pics" ont une forme étalée. La désorientation associée est alors chiffrée par l'écart angulaire entre maxima les plus éloignés. Les formes des différents profils de diffraction rencontrés sont illustrées sur la figure III-23.

Le pas de rotation et le temps de comptage par pas de rotation résultent d'un compromis entre la durée de réalisation des profils de diffraction et la précision. Compte tenu des désorientations rencontrées, un pas de rotation de $0,05^\circ$ permet de tracer le pic le plus fin avec 9 points. Le temps de comptage est souvent choisi égal à 10 s, le rapport signal/bruit étant dans les plus mauvais cas de 4, pour un signal de 8 coups/seconde, et en moyenne de 20. Le temps moyen de réalisation d'un profil de diffraction sur une plage de 5° est de 17 minutes.

d. Précautions et limites d'emploi

Il est apparu au cours des expériences que divers artefacts pouvaient intervenir et fausser les résultats. Le plus important de ceux-ci, et celui qui nécessite les réglages les plus longs, concerne les pics parasites.

d.1. Pics parasites

Parce que l'angle de Bragg est très petit, d'autres familles de plan que celle sélectionnée pour l'étude peuvent se trouver en position de réflexion. En tournant l'échantillon autour de la normale aux plans effectivement étudiés, la réflexion de ces plans n'est pas modifiée ; par contre, la position des plans parasites est fortement modifiée et ceux-ci ne peuvent plus réfléchir le rayonnement. Un des premiers réglages avant toute expérience consiste donc à faire varier l'angle autour de la normale aux plans diffractants pour éliminer les pics parasites de la plage angulaire de mesure.

d.2. Détection de plans très désorientés

Certaines parties de l'échantillon peuvent être très désorientées par rapport à d'autres et sortir de la plage angulaire choisie pour réaliser le profil de diffraction ; dans certains cas, il n'est possible de s'en rendre compte qu'en comparant la surface totale de tous les pics présents dans les profils de diffraction, cette surface devant être le témoin de tout le

volume irradié. Cependant, cette vérification n'est utilisable qu'avec des échantillons de forme simple, dans lesquels le volume de métal irradié reste identique durant la rotation de l'échantillon (cf § III.3.4.b).

e. Utilisation des techniques cristallographiques

Il est très difficile en diffraction γ de localiser précisément les zones diffractantes à l'intérieur du volume irradié. Cette difficulté peut être levée en étudiant, comme l'a fait Bellet [74] la mosaïcité de deux familles de plans autour du même axe de rotation. Entre ces deux expériences, le volume irradié est différent, et, par recoupement, la localisation des zones diffractantes est possible. Cette méthode est lourde est limitée à la localisation de zones de grands volumes.

La diffraction γ permet d'avoir une vue d'ensemble et de chiffrer précisément les désorientations d'un échantillon. Elle permet de localiser d'une manière qui reste approximative les régions où existent des défauts. Une fois repérées ces régions, des sections sont réalisées et préparées pour l'analyse en topographie X. La topographie X en faisceau polychromatique fournit alors rapidement une visualisation globale des défauts cristallins les plus importants. Ces images sont cependant floues et d'utilité limitée. Au contraire, les topographies X faites en faisceau monochromatique sont de bonne qualité et permettent la réalisation d'une cartographie des désorientations. Une comparaison ultérieure avec des observations métallographiques est alors possible.

Chapitre 10

ANALYSE METALLURGIQUE

IV.1. Microstructure

L'étude de la microstructure dendritique est fondamentale pour comprendre l'évolution de la solidification à l'échelle macroscopique et par-là même le changement de qualité cristalline entre le début et la fin des pièces coulées. Un premier paramètre, largement employé dans la littérature pour décrire la microstructure, est la mesure de la densité d'axes primaires, ou, de façon équivalente, la mesure de l'espacement primaire. Celle-ci permet de mettre en évidence des variations de conditions de solidification dans la pièce. Par ailleurs l'étude de l'arrangement dendritique s'avère intéressante, et nous verrons dans le chapitre V les liens avec la qualité cristalline dans les pièces coulées. Dès la formation des structures, par exemple en bas des pièces, et plus spécialement lors des changements de section, il est nécessaire de savoir si les pièces sont monocristallines. L'évolution de la microstructure en régime quasi-permanent de croissance sera aussi analysée.

IV.1.1. Formation des structures

a. Mécanismes de croissance du réseau dendritique

Au cours de la solidification, l'arrangement des dendrites dans le matériau se modifie, soit de façon progressive à section constante, soit à la suite de modifications dans les conditions de croissance du réseau dendritique. L'un des mécanismes de base qui causent ces modifications est le changement de la forme des sections transversales, que ce soit de façon abrupte dans le cas des éprouvettes à quatre branches ou de façon plus progressive dans le cas de l'éprouvette à deux branches. Dans ces zones, le réseau dendritique s'étend par création de nouveaux axes, par branchements successifs à partir de bras secondaires et tertiaires. La figure IV-1 présente cette extension dans le cas d'une augmentation de section ménagée, avec des bords de section non parallèles à la direction de croissance dendritique. Le mécanisme de branchements successifs a lieu près du bord de la section.

b. Changements de section

b.1. Changement de section ménagé

• coupes transversales

Les coupes transversales réalisées dans les zones de séparation ménagée montrent un arrangement caractéristique tel que celui illustré à la figure IV-2 où trois régions

distinctes peuvent être distinguées. Au centre existe une zone sans périodicité apparente, où la densité d'axes est élevée, située au-dessus de la sortie du sélecteur et repérée par la lettre A sur la figure. Elle est entourée par une zone de densité plus faible repérée par la lettre B, où apparaissent des alignements parallèles à une direction dendritique $\langle 100 \rangle$. Ces alignements proviennent de la multiplication antérieure des dendrites sur le bord de sections plus proches du sélecteur. Enfin, aux abords de la surface de la pièce, une zone, C, caractérisée par de grands bras secondaires et de multiples amorces de bras tertiaires, c'est la zone d'extension active pour cette section.

On observe une morphologie similaire sur les sections transversales de la zone de raccordement de l'éprouvette à deux branches qui est, elle aussi, ménagée. Dans ce cas, les zones sans périodicité apparente se situent au-dessus des branches. On retrouve également la formation de séries d'alignements qui partent de chacune de ces zones pour se rencontrer au milieu de la section. Ces observations montrent que le mécanisme d'extension du grain mis en jeu est exactement le même dans les deux cas.

• coupes longitudinales

Sur les coupes longitudinales de la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches apparaissent en moiré (cf § III.3.2.c) de longues bandes claires (figure III-11). Leur régularité est l'indice d'un réseau de dendrites bien ordonné. Ces bandes confirment que, au moins dans un premier temps, les nouveaux axes primaires qui apparaissent dans la zone de séparation ont crû en formant des alignements réguliers. La zone située au-dessus de la sortie du sélecteur présente un ensemble de taches relativement incohérent, qui correspond à l'absence de périodicité dans le réseau dendritique observé dans les zones correspondantes des sections transversales. Sur la figure III-11, le brusque changement de motif présent dans la partie gauche de la zone de séparation doit correspondre à la traversée d'un sous-joint de grain.

b.2. Changement abrupt de section

• zones de séparation des éprouvettes à quatre branches

La solidification dans ces zones de séparation a lieu dans un champ thermique complexe, dont aucune des trois composantes n'est a priori négligeable. Compte tenu du critère de surfusion à la pointe des dendrites (cf § II.2.1.c), ce champ thermique peut conduire à un arrangement des structures de solidification lui-même complexe.

Des compétitions de croissance sont visibles sur les figures IV-3 et IV-4. La figure IV-3 montre une section longitudinale perpendiculaire à la plus grande longueur de la zone de

séparation et met en évidence une compétition entre les directions dendritiques [001] et [010] : il y a compétition entre la direction parallèle à la direction de tirage, dans le sens du gradient thermique longitudinal et la direction parallèle au gradient thermique radial du four. Cette direction est aussi la direction de la largeur de la zone de séparation. L'aspect des dendrites en forme de croix, tel que celui visible sur la figure II-2, typique d'une croissance perpendiculaire au plan de la section, n'apparaît que très rarement. La figure IV-4 montre cependant quelques alignements pratiquement parallèles à la plus grande longueur de la zone de séparation, dans la direction [100]. Sur la figure, la zone située au-dessus du sélecteur est repérable (notée A sur la figure IV-4) par sa plus grande densité d'axes et la présence d'alignements dans une seule direction. Au contraire des zones ménagées, où le mécanisme d'extension joue uniquement sur les bords des sections, les branchements successifs ont lieu aussi, dans le cas présent, dans le volume de la pièce.

• couronnes

A chacun des débouchés de branches dans la zone de raccordement des éprouvettes à quatre branches, une disposition d'alignements caractéristique telle que celle schématisée sur la figure IV-5 se répète. De la même façon que pour les autres cas étudiés précédemment, les régions situées au-dessus des branches ne présentent pas de périodicité spécifique de l'arrangement des dendrites. Des séries d'alignements partent de part et d'autre du voisinage de ce débouché. Dans chaque série, l'un des alignements est plus long que les autres, qui paraissent stoppés par des alignements perpendiculaires. Cet alignement très long est toujours situé vers le centre de la pièce.

b.3. Discussion

Les alignements correspondent aux axes secondaires favorisés par rapport aux autres directions dendritiques, du fait des gradients latéraux existant dans la pièce lors de la solidification ; ces gradients ont privilégié, à l'échelle locale, les alignements dont la direction est la plus proche de la direction du gradient thermique maximal local.

L'étude des zones de changement de section montre que le gradient local dépend d'abord des gradients créés entre les zones plus froides que sont a priori les sorties de sélecteurs, ou les débouchés des branches, et le bord des pièces. Au fur et à mesure que la solidification a lieu, le gradient thermique variera en fonction de la position du front de solidification par rapport aux bords des pièces. En première approximation, les gradients thermiques latéraux les plus grands seront obtenus dans le cas des distances les plus petites entre zones froides et bords de pièce : autrement dit, les alignements existeront plutôt le long des petites dimensions des pièces. Ce critère sera appelé critère de "distance minimale".

Dans le cas des changements de section ménagés, le gradient thermique qui jouera est celui qui existe dans la région active d'extension des dendrites (zone C sur la figure IV-2), donc sur une faible distance au bord des éprouvettes. La forme du pourtour de la section de la figure IV-2 permet effectivement d'expliquer la direction des alignements à partir du critère de "distance minimale". Il permet aussi d'expliquer que, dans les zones de raccordement ménagé, les alignements existent le long de la plus grande dimension de la section, donc suivant [100] : ces alignements se sont constitués progressivement sur le bord en pente de l'éprouvette, là où le gradient était proche de la direction [100].

Le cas des changement de section abrupte est plus complexe, car la solidification doit avoir lieu pratiquement en même temps sur une grand distance. Les gradients latéraux induits par l'existence d'autres pièces et par la présence de gradients thermiques radiaux dans le four, modifient la thermique à l'intérieur de la pièce étudiée et peuvent jouer de façon plus apparente. Ceci peut expliquer le fait que l'alignement le plus long se trouve vers le centre de la pièce sur la couronne (figure IV-5). On suppose alors que cet alignement en "étend" d'autres pour stopper la progression des autres alignements partant du débouché des branches. On en déduit que les régions situées vers le centre de la pièce, sur la couronne, doivent être plus froides que les autres régions.

c. Sections constantes

Les alignements sont encore présents au bas des branches de l'éprouvette à deux branches, mais disparaissent ensuite au fur et à mesure que l'on s'éloigne du sélecteur, comme le montre la figure IV-6. Le réseau de dendrites possède alors une périodicité de moins en moins bien définie. Cette disparition des alignements n'est pas associée à un défaut majeur qui pourrait être observé métallographiquement. En particulier, l'orientation des bras secondaires de dendrites apparaît identique sur toute la surface des sections.

De courts alignements subsistent sur l'un des petits bords des sections transversales, qui ont la direction [010]. Dans le paragraphe IV.1.3, nous montrerons qu'il existe une désorientation moyenne des axes primaires par rapport aux bords de la pièce. Cette désorientation fait que de nouveaux axes primaires apparaissent sur le bord des sections. Ils se forment par branchements successifs d'un nombre limité de dendrites et génèrent des alignements. On montre ainsi qu'il est possible d'expliquer tous les alignements visibles dans les directions cubiques comme étant la conséquence de ce mécanisme d'extension.

La disparition des alignements correspond, comme nous le verrons par la suite, à une évolution qui n'est pas seulement métallographique. Il apparaît intéressant d'étudier la nouvelle disposition que prennent progressivement les dendrites dans le réseau d'axes

primaires. Une partie d'une section transversale d'une branche a été digitalisée, qui correspond à environ 400 axes primaires. La distribution du nombre de premiers voisins est représentée sur la figure IV-7 ; elle montre une assez large variation, de 3 à 9, avec une valeur moyenne de 5,7, ce qui est en accord avec des observations antérieures [61]. La distance moyenne entre premiers voisins a été calculée à partir des coordonnées des axes primaires, elle est de 570 μm , avec un écart-type de 140 μm . Par ailleurs, la densité d'axes estimée par comptage des dendrites dans une surface a été trouvée égale à 3,48 mm^{-2} . La densité d'axes mesurée correspond, pour un réseau carré à un espacement primaire de 536 μm , et pour un réseau hexagonal, à un espacement primaire de 576 μm .

La valeur calculée de l'espacement primaire et le nombre moyen de premiers voisins indiquent que le réseau dendritique est plutôt hexagonal.

D'une façon plus directe, on a cherché des corrélations géométriques à partir des coordonnées des axes primaires et de leurs premiers voisins. Sur la figure IV-8, le nombre de paires de premiers voisins est porté en fonction de la direction de ces paires dans le plan de la section, mesurée par rapport à une origine arbitraire. Nous avons cherché à partir des pics les plus marqués à trouver des écarts angulaires caractéristiques. Il apparaît que les paires de premiers voisins sont plus nombreuses dans des directions qui correspondent à un réseau mixte, carré et hexagonal. Il existe cependant un décalage de l'une des directions hexagonales par rapport à la position attendue. Ce mélange de deux types d'arrangement est en accord avec des observations antérieures [61].

IV.1.2. Caractérisation quantitative du réseau dendritique

a. Dans la zone de séparation ménagée

Sur plusieurs sections transversales prises dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches (figure IV-2), la densité d'axes au centre des sections, au-dessus de la sortie de sélecteur, dans la région A, est plus élevée que dans la région B, située entre le centre et l'extrême bord de la section. Ces densités d'axes dans les régions A et B diminuent fortement quand la distance au sélecteur augmente ; leur écart diminue également comme le montre la figure IV-9. Il convient de noter que ces variations importantes de densité d'axes primaires ont lieu sur une épaisseur inférieure à celle de la zone pâteuse. En effet, l'épaisseur de celle-ci étant égale à $\Delta T_s/G$, elle a, pour un gradient de 20 K/cm, une valeur de l'ordre de 2,7 cm. On peut en déduire que la densité d'axes s'adapte rapidement aux variations de conditions thermiques de croissance.

Ces variations très rapides de densité ont lieu dans une zone où l'aire de la section transversale augmente avec la distance au sélecteur. Cette augmentation de la section, qui correspond à une augmentation de la masse de métal à solidifier, conduit à une diminution de la vitesse de refroidissement V_r . Si la densité est proportionnelle à $G.V^{0,5}$ (cf § II.2.1.a.1.), elle est donc, en première approximation, proportionnelle à $V_r.V^{-0,5}$. Pour une vitesse d'avancée du front de solidification constante, une diminution de la densité d'axes correspond effectivement à une diminution de la vitesse de refroidissement. La différence de densité d'axes sur une section transversale donnée entre les régions A et B est plus difficilement explicable. Il est possible que la moindre densité dans les régions B soit liée au fait qu'il s'agisse d'anciennes zones de multiplication.

b. Evolution avec la distance au sélecteur

La densité d'axes moyenne a été mesurée sur différentes sections transversales, perpendiculairement à la direction de tirage dans l'éprouvette à deux branches. Pour les sections situées dans la zone de séparation, la mesure de densité moyenne ne tient pas compte des régions de multiplication des dendrites par branchements successifs (région C). La figure IV-10 présente la variation de la densité d'axes par rapport à la distance à la sortie du sélecteur. On constate l'existence de deux régions : on retrouve dans la zone de séparation la décroissance très rapide de la densité d'axes, tandis que dans la deuxième zone, qui correspond aux branches de l'éprouvette, la densité d'axes varie peu avec la distance au sélecteur et est identique d'une branche à l'autre.

c. Evolution sur sections transversales dans les branches

Bien qu'en moyenne le régime de croissance soit quasi-permanent dans les branches, caractérisé par une densité d'axes primaires constante, des observations plus fines permettent de mettre en évidence de légères variations à l'échelle de la section transversale.

c.1. Eprouvette à deux branches

Ces variations peuvent se décomposer en deux évolutions :

- diminution de la densité d'un petit bord à l'autre de la section, de l'extérieur vers le centre du four.
- augmentation de la densité du centre à la périphérie des sections.

c.2. Eprouvette à quatre branches

Des évolutions sont également visibles sur les sections prélevées dans les branches d'une éprouvette à quatre branches : densité plus forte au centre que sur les bords sur une branche radiale centrale, diminution de densité entre le côté situé vers l'extérieur du four et celui situé vers le centre pour l'une des branches tangentielles (figure IV-11) et pour la radiale centrale.

Le tableau IV-1 résume les variations observées sur les deux éprouvettes :

Branches d'éprouvette	densité d'axes aux extrémités		densité d'axes au centre
	vers le pourtour du four	vers le centre du four	
éprouvette à deux branches	4,8	3,9	3,6
éprouvette à quatre branches :			
branche radiale centrale	8,3	7,2	9,9
branche tangentielle	6,2	3,9	6,0

Tableau IV-1 : variation de la densité d'axes sur sections transversales. Les densités sont données en mm^{-2} , et mesurées sur des sections situées vers le milieu des branches.

c.3. Evolution avec la distance (éprouvette à deux branches)

Les variations observées sont à la limite de la précision de la mesure, évaluée d'après les écart-types rencontrés à $\pm 0,5 \text{ mm}^{-2}$. Néanmoins, pour l'éprouvette à deux branches, le sens de variation est systématiquement le même pour toutes les sections, ce qui indique que les variations sont significatives. De plus, l'analyse de l'ensemble des sections montre que les écarts de densité diminuent quand la distance au sélecteur augmente, comme l'illustre la figure IV-12.

c.4. Discussion

• éprouvette à deux branches

Si l'on estime que, sur une même section, la vitesse d'avancée du front est constante, la densité d'axes varie comme le gradient thermique longitudinal. D'après les considérations notées dans le paragraphe III.2.1 sur les conditions thermiques de solidification, la diminution de la densité d'axes entre le bord de la section située près du pourtour du four et celui situé plus près du centre s'explique par une différence dans le gradient thermique

longitudinal. On peut imaginer que les régions des pièces positionnées vers le centre du four seront moins sensibles au gradient longitudinal imposé, le reste de la pièce faisant écran. La diminution des écarts sur les sections lorsque la distance au sélecteur augmente indique un gradient thermique plus uniforme, dû peut-être à un déplacement du front de solidification vers la zone supérieure du four, plus loin des écrans thermiques.

La différence de densité d'axes entre le centre des sections et les bords donnent des indications sur la variation d'épaisseur de la zone pâteuse, donc sur la position relative des isothermes solidus et liquidus. Une densité d'axes plus faible au centre veut dire que le gradient longitudinal est plus élevé au centre des sections : on peut imaginer l'existence de pertes latérales de chaleur sur les bords, plus importantes au niveau du solidus que du liquidus.

• éprouvette à quatre branches

La forte différence de densité d'axes moyenne entre branches a été expliquée à l'aide d'une coulée instrumentée. Celle-ci a montré que la vitesse d'avancée des isothermes est plus faible et la vitesse de refroidissement plus grande pour une branche radiale centrale que pour une branche tangentielle. D'après le paragraphe IV.1.2.a, ceci correspond effectivement à une plus grande densité d'axes. Si on suppose que la vitesse d'avancée du front est constante sur une section donnée, l'observation d'une densité d'axes plus élevée au centre des sections ne peut s'expliquer qu'en imaginant que le refroidissement est plus important au centre des sections.

d. Conclusion

En supposant, comme le montre l'analyse des zones de séparations ménagées, que la densité d'axes est sensible aux conditions thermiques locales de croissance, l'étude détaillée de cette grandeur permet de mettre en évidence les variations des conditions de solidification lors du tirage : dans une branche, le gradient longitudinal, plus élevé en début de tirage pour les régions de la section situées près du pourtour du four devient, à la fin, plus grand pour celles situées vers le centre du four. D'autres effets dépendent de la thermique donnée par la forme des pièces : variation de la densité d'axes entre le centre et le bord des sections, variations lors des changements de section, effet des pièces voisines.

IV.1.3. Continuité du réseau dendritique

Pour analyser l'évolution du réseau dendritique à section constante et comprendre le pourquoi de la disparition des alignements (cf § IV.1.1.c), on a cherché, à l'aide de coupes

transversales successives assez proches, à suivre le réseau dendritique en fonction de la distance au sélecteur dans les branches de l'éprouvette à deux branches.

Dans ce cas, les photos brutes des sections apparaissent trop chargées d'informations. Comme l'évolution du réseau dendritique correspond à l'évolution des axes primaires et comme les axes secondaires ont seulement une épaisseur de quelques microns dans la direction longitudinale, la position des axes primaires est le seul paramètre important dans cette partie de l'étude. A partir des photos des sections transversales, la position des axes primaires a été relevée manuellement sur des calques. Les différents calques provenant de sections situées à environ 1 mm les unes des autres sont comparés entre eux par superposition. Sur ces calques sont notées les variations de position des dendrites ainsi que les axes primaires qui apparaissent d'une section à l'autre et ceux qui disparaissent. Une erreur possible dans cette démarche est de confondre axe primaire et axe tertiaire. Pour éviter cette erreur, les axes tertiaires sont supposés correspondre aux axes apparaissant sur une section et disparaissant sur la section suivante : cela revient à supposer que les axes tertiaires ont une longueur inférieure à 2 mm.

a. Continuité du réseau dendritique

L'étude détaillée de la position des axes primaires montre qu'il est possible de superposer des sections transversales distantes de 10 à 15 mm et de retrouver alors, de façon plus ou moins nette, le réseau dendritique, et chacun des axes primaires. Cependant, des apparitions et des disparitions de dendrites sur les bords des sections montrent d'une façon générale que les axes primaires dendritiques ne sont pas parallèles à la direction de tirage de la pièce mais inclinés vers l'extérieur du four d'environ 6°. L'évolution du réseau dendritique, en particulier la disparition des alignements, provient :

- de modifications faibles de la position des dendrites dans le réseau, puisque l'on retrouve les axes sur des distances de 10 à 15 mm
- d'un renouvellement du réseau dendritique, à cause de l'inclinaison de la direction générale de croissance des dendrites par rapport aux bords de la pièce. Ce renouvellement crée sur les bords de nouveaux alignements.

La désorientation de la direction de croissance des dendrites par rapport à la direction de tirage introduit une erreur sur les densités d'axes mesurées sur les sections transversales. Cette erreur n'excède pas 3% dans le cas où la direction de croissance des dendrites est désorientée de 10° par rapport aux bords de la pièce.

b. Apparitions et disparitions d'axes primaires à courtes distances

L'étude de 6 sections transversales séparées de 1 mm montre, en ne tenant pas compte de ce qui se passe sur le bord des sections, qu'on observe l'apparition et la disparition d'axes primaires au milieu de la pièce. En moyenne, on note 3 apparitions et 5 disparitions par millimètre dans la direction de croissance, pour un total d'environ 1000 dendrites. Sur chaque section, ces événements ne semblent pas liés a priori à un défaut particulier puisqu'ils ont lieu au hasard de la section.

b.1. Espacements primaires associés aux événements

L'espacement primaire associé à chaque événement, apparition ou disparition de dendrite, a été étudié, notamment pour déterminer les conditions de disparition et d'apparition en terme d'adaptabilité du réseau. On a cherché à chiffrer les espacements minimum et maximum autorisés. L'étude des disparitions permet d'avoir accès à l'espacement minimum ; celui-ci sera l'espacement entre la dendrite qui est sur le point de disparaître et son plus proche voisin. En ce qui concerne les apparitions, l'espacement caractéristique correspond à l'espacement existant entre dendrites avant que la nouvelle apparaisse. On peut supposer dans ce cas que ce sont les dendrites les plus proches qui auront la plus grande influence : l'espacement minimum entre deux dendrites entre lesquelles la nouvelle dendrite va s'intercaler a été mesuré. Les mesures ont porté sur 18 nouvelles dendrites et 19 disparitions. L'espacement caractéristique est ensuite rapporté à l'espacement primaire moyen des dendrites dans la région de la section dans laquelle se produit l'événement, puisque l'on a vu qu'il existe des variations de densités d'axes primaires sur la section. L'erreur dans le calcul du rapport espacement caractéristique / espacement primaire tient compte des erreurs de mesure des espacements sur photographies ; elle a été estimée à 22 %.

Pour les disparitions, ce rapport entre espacement minimum et espacement primaire vaut $0,42 \pm 0,12$. Lorsque de nouvelles dendrites apparaissent, il est clairement visible sur les photos qu'elles proviennent d'un bras tertiaire d'une dendrite voisine qui s'est suffisamment développé pour devenir axe primaire. Ainsi à chaque nouvelle dendrite, on peut associer une "dendrite initiale" d'où provient la "dendrite-événement". En grande majorité, pour 15 apparitions sur 18, la dendrite voisine la plus proche est précisément cette dendrite "mère", et l'espacement minimum entre dendrites avant apparition se situe entre cette "dendrite initiale" et une voisine. Le rapport espacement minimum avant apparition sur espacement primaire moyen est égal à $1,46 \pm 0,32$. Le rapport entre

distance à la "dendrite initiale" et espacement primaire a également été mesuré : il est de $0,62 \pm 0,14$.

b.2. Discussion

On observe l'existence d'une plage d'espacements primaires possibles entre un espacement minimum et un espacement maximum. Ceci confirme la dispersion des valeurs observée par Quested et McLean ([48], § II.2.1.b) montrant qu'il existe un domaine de variation de l'espacement primaire λ pratiquement centré autour d'une valeur moyenne λ_1 . Dans notre cas, λ est compris entre $0,42.\lambda_1$ et $1,46.\lambda_1$. Kurz [100] propose d'expliquer ceci par le fait que la création d'une dendrite est un phénomène compliqué, puisqu'il implique l'existence de branchements de bras successifs. Ceci pourrait expliquer le fait que l'espacement entre un axe créé et sa dendrite "mère", espacement minimum de la nouvelle dendrite avec ses proches voisins, est supérieur à l'espacement minimum pour la disparition d'un axe : $0,62.\lambda_1$ contre $0,42.\lambda_1$: la création d'un axe nécessiterait plus d'énergie de distorsion du réseau dendritique que dans le cas d'une disparition. D'autre part, alors que Esaka et al. ([54], § II.2.1.a) avaient observé que l'espacement entre dendrites pouvaient atteindre $2.\lambda_1$ avant création, l'étude réalisée ici montre que l'espacement entre dendrite ne dépasse pas $1,46.\lambda_1$. La différence peut provenir de ce que l'étude d'Esaka et al. a été réalisée sur une ligne de dendrites, alors qu'ici le réseau dendritique a deux dimensions.

Une étude approchée de la variation de la sursaturation dans l'espace interdendritique associée à la variation d'espacements primaires a été faite sur la base de l'équation de Rohatgi et Adams [101]. On peut supposer en effet que la position relative des champs de diffusion autour des dendrites et leur éventuelle superposition est le paramètre qui contrôle λ . Pour cela, on estime que le profil de composition du liquide entre les dendrites est parabolique, avec un minimum au milieu de l'espacement. L'analyse a été faite pour un alliage binaire. La composition correspondant au minimum n'est plus égale à la composition à l'infini (ou composition initiale), comme le supposent Rohatgi et Adams, mais à déterminer. Les événements ont lieu en début de solidification, pour des fractions de solide identiques et des compositions w_1^* à l'interface solide-liquide identiques. Enfin la vitesse de solidification df_s/dt est constante et égale à l'inverse du temps local de solidification. La relation utilisée pour déterminer la composition du liquide au milieu de l'espacement interdendritique est :

$$\Delta w = w_1^* - w_{\lambda/2} = {}^0w.(1-k) \cdot \frac{\lambda^2}{8.D^l} \cdot \frac{df_s}{dt} \quad (IV-1)$$

On en déduit la variation de composition au milieu du liquide interdendritique entre l'espacement minimum $\lambda_{\min.}$ et l'espacement maximum $\lambda_{\max.}$, valeurs extrêmes de la gamme d'espacements primaires. Soit pour l'alliage considéré : coefficient de partage du soluté $k = 0,76$, avec un coefficient de diffusion du soluté dans le liquide D^l de $5.10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$, et pour les conditions de solidification : temps local de solidification $t_f = 270 \text{ s}^5$ et un espacement primaire moyen λ_1 de 0,5 mm, on obtient :

$$w\lambda/2\min. - w\lambda/2\max. = 0,011.^\circ w$$

La variation de composition au centre du liquide interdendritique est très faible, et l'espacement primaire doit donc être très sensible aux moindres variations de composition. Une approche plus réaliste, basée sur la redistribution auour d'une pointe parabolique utilisant le modèle de Trivedi, donnerait cependant un coefficient plus important.

c. Evolution du réseau dendritique à moyennes distances

Alors que l'étude de sections proches les unes des autres ne montre que des apparitions et des disparitions de dendrites au hasard, l'analyse comparée de sections situées à 10 mm de distance fait apparaître l'existence de lignes de nouvelles dendrites, lignes pratiquement parallèles aux petit bord de la section et à l'une des directions de bras secondaires. Ces lignes séparent deux régions de la pièce dont les axes primaires ne sont pas superposables en même temps : entre les deux régions, il est nécessaire de déplacer le calque de relevé de la position des axes primaires d'une des sections pour pouvoir faire coïncider les axes primaires appartenant à l'autre région. On en déduit l'existence d'une désorientation de l'ensemble des dendrites d'une région par rapport à l'autre, et donc l'existence d'un joint de grain légèrement désorienté ou sous-joint, matérialisé par la présence de lignes de nouvelles dendrites. La distance dont il faut déplacer le calque pour retrouver la superposition permet d'avoir une estimation grossière de l'angle de désorientation au sous-joint. Cette désorientation se fait autour d'une direction à peu près parallèle aux petits bords, et a pour valeur, à une distance d'environ 6 cm de la sortie de sélecteur, $0,5^\circ$ pour la branche 1 et $1,7^\circ$ pour la branche 2.

⁵ Le temps de solidification t_f est égal à $\Delta T_s / (G.V)$. Il est de 270 s pour un gradient de 20 K/cm dans la zone pâteuse et une vitesse d'avancée du front de solidification de 6 mm/min.

IV.2. Microségrégations

Les microségrégations sont les témoins du mécanisme de croissance dendritique et des conditions de solidification. La sursaturation à la pointe est liée aux conditions de croissance des dendrites. L'étude des variations de composition à l'échelle de la microstructure dendritique donne une idée du déroulement de la solidification. L'absence de macroségrégations à l'échelle des pièces, notamment dans le cas de l'éprouvette à deux branches, a été démontré par une étude préliminaire présentée en annexe C.

IV.2.1. Sursaturation à la pointe

a. Résultats

a.1. Composition au centre des axes primaires

La composition au centre des axes primaires a été mesurée pour une dizaine de dendrites sur les sections transversales situées à différentes hauteurs dans l'une des branches de l'éprouvette à deux branches. L'une de ces sections est située au-dessus de la zone de raccordement. Pour présenter ces résultats, le tantale et le tungstène ont été choisis car ils sont susceptibles de ségréger fortement, comme l'indique leur coefficient de partage à l'équilibre dont la valeur est éloignée de 1. De plus, présents en moyenne quantité dans l'AM1, ils ont, parmi les éléments ségrégeant fortement, la plus faible incertitude relative théorique (cf § III.3.1.e). Le tantale et le tungstène sont donc les éléments susceptibles de subir les plus fortes variations d'un centre de dendrites à l'autre. Les résultats montrent une remarquable homogénéité des teneurs en ce qui concerne le tantale et le tungstène, comme le montre la figure IV-13. Sur celle-ci est indiqué, pour comparaison, le domaine d'incertitude théorique dû à la statistique du rayonnement X.

Quelques mesures réalisées sur les sections de l'éprouvette à quatre branches déjà étudiées pour les macroségrégations montrent des compositions en tantale et en tungstène des centres d'axes primaires également homogènes. Il est intéressant de noter que la section prise dans la branche radiale centrale présente des centres d'axes primaires légèrement plus riches en tungstène et légèrement plus pauvres en tantale que sur les autres sections de l'éprouvette, comme le montre la figure IV-14. Dans la mesure où les coefficients de partage à l'équilibre de ces deux éléments sont respectivement supérieur et inférieur à 1, ce fait peut être significatif. Or l'étude des densités d'axes sur une section dans la branche radiale centrale et la branche tangentielle avait montré une différence notable (cf § IV.1.2.c), due à une vitesse d'avancée du front et à un gradient thermique longitudinal

différents. La significativité des variations de composition entre centres d'axes primaires pourra alors être discutée ultérieurement à partir des modèles théoriques, en considérant les sursaturations correspondantes.

a.2. Sursaturation

Les centres des axes primaires correspondent au premier solide qui se dépose durant la solidification, à la pointe des dendrites. On peut alors considérer que les mesures réalisées peuvent donner une bonne estimation de l'état de sursaturation du liquide au front dendritique. Au cours de la solidification et durant le refroidissement du métal jusqu'à la température ambiante, la diffusion à l'état solide peut réduire l'intensité des microségrégations et donc modifier la composition au centre des axes primaires de dendrites. Cependant cette modification doit être faible, d'une part parce que les gradients de concentration sont faibles en début de solidification ainsi que l'ont montré Kattamis et Flemings [85] sur des aciers et Chehaïbou [53], sur des échantillons trempés en solidification dirigée pour un alliage ternaire proche de l'AM1, et d'autre part parce que le temps effectif de diffusion est petit au regard des temps caractéristiques de diffusion à l'état solide de certaines espèces chimiques. La grandeur Ω' , mesurée sur l'échantillon solidifié et utilisée comme estimation de la sursaturation Ω , est exprimée pour chaque élément i , à partir de l'équation de la sursaturation (II-2) :

$$\Omega'_i = \frac{w_i^s - k_i \cdot {}^\circ w_i}{w_i^s \cdot (1 - k_i)} \quad (IV-2)$$

Comme il a été trouvé qu'il n'existait pas de macroségrégation, les teneurs nominales sont assimilées à la valeur moyenne obtenue pour chaque éprouvette par microanalyse X.

Les sursaturations estimées à partir des mesures réalisées durant cette étude sont reportées sur la figure IV-15 et dans le tableau IV-2. Les incertitudes $\Delta\Omega'_i$ associées ont été déterminées à partir des incertitudes théoriques sur les mesures de composition et en supposant que les valeurs de coefficients de partage sont exactes :

$$\frac{\Delta\Omega'_i}{\Omega'_i} = \frac{k_i}{\Omega'_i \cdot |1 - k_i|} \cdot \frac{{}^\circ w_i \cdot \Delta w_i^s + w_i^s \cdot \Delta {}^\circ w_i}{(w_i^s)^2} \quad (IV-3)$$

	élément	Al	Co	Cr	Mo	Ta	Ti	W	
	k_i	0,91	1,09	0,92	0,78	0,76	0,58	1,38	
épreuve à deux branches	$^{\circ}w_i$	5,23	6,80	8,36	2,18	8,05	1,27	5,50	
	w_i^S	5,21	7,20	7,91	1,78	6,19	0,82	7,26	
	Ω'_i	0,96	0,33	0,35	0,20	0,05	0,24	0,12	
épreuve à 4 branches :	$^{\circ}w_i$	5,62	6,78	7,89	1,95	7,81	1,35	5,21	
	w_i^S	5,55	7,06	7,49	1,75	6,17	0,94	6,80	
	Ω'_i	0,88	0,52	0,38	0,59	0,16	0,40	0,15	
	radiale	w_i^S	-	-	7,81	-	6,08	0,92	6,92
		Ω'_i	-	-	0,88	-	0,10	0,35	0,10

Tableau IV-2 : teneurs moyennes (en % massique) des cœurs de dendrites et sursaturations pour chaque élément d'alliage et pour différentes sections.

Le résultat important qui apparaît ici est le fait que la sursaturation varie d'un élément à l'autre. Pour les éléments qui ségrègent le plus, de même que pour l'aluminium, et compte tenu de l'incertitude théorique, on peut estimer que la sursaturation est similaire dans les trois sections étudiées. Ω'_i vaut alors pour le titane environ 0,35 ; pour le tantale 0,10 ; pour le tungstène 0,12 et pour l'aluminium 0,9.

Si l'on ne tient pas compte de l'incertitude sur la valeur de Ω'_i , la sursaturation en tantale et en tungstène entre la branche radiale centrale et la branche tangentielle de l'éprouvette à quatre branches passe de 0,10 à 0,155.

b. Comparaison avec les modèles

b.1. Modèles reliant la sursaturation aux conditions de croissance

Pour décrire les conditions de croissance des pointes de dendrites au front de solidification, prédire les sursaturations possibles lors de la formation du premier solide qui se dépose, et les comparer aux valeurs calculées, le modèle d'Ivantsov de redistribution du soluté autour de la pointe et le critère de stabilité marginale indiquant le rayon de courbure ont été utilisés. Plus précisément, l'extension aux alliages multiconstitués réalisée par Bobadilla et al. [8] du modèle de croissance utilisant le critère de stabilité marginale a été employé (Annexe A).

• validité du critère de stabilité marginale

Le critère de stabilité marginale (cf § II.1.1.c.) propose d'estimer que le rayon de courbure des dendrites est égal à λ_s . Nous avons utilisé des résultats des mesures de rayon

de courbure effectuées par Chehaïbou sur des échantillons de solidification dirigée de divers alliages base nickel pour vérifier la validité de ce critère dans le cas de ces alliages. Pour cela, les rayons de courbure expérimentaux obtenus dans l'étude de Chehaïbou ont été comparés à la valeur théorique obtenue par le modèle de Bobadilla et al. dans les conditions de croissance des expériences, et pour un coefficient de diffusion dans le liquide identique pour tous les éléments. Le tableau IV-3 montre la sensibilité du calcul des rayons de courbure à la valeur du coefficient de diffusion dans le liquide. Le tableau montre également que les rayons de courbure mesurés sont approximativement cinq fois plus grand que la longueur de stabilité marginale, pour un coefficient de diffusion dans le liquide égal à 5.10^{-5} cm²/s.

Rayons de courbure (en μm)						
	V (10^{-3} cm/s)	G (K/cm)	résultats expérimentaux	calcul D= 2.10^{-5} cm ² /s	calcul D= 5.10^{-5} cm ² /s	calcul D= 1.10^{-4} cm ² /s
alliage ternaire	6	33	31	3,9	6,2	8,8
	6	79	31	3,9	6,2	8,9
	20	99	23	2,1	3,4	4,8
alliage S	2	40	32	6,0	9,6	13,5
	12,5	45	24	2,4	3,8	5,4

Composition pondérale :

alliage ternaire : Ni: bal.; Ta: 6,4%; Al: 7,2%

alliage S : Ni: bal.; Ta: 5,95%; Al: 6,08%; W: 8,73%; Co: 5,03%; Cr: 5,64%; Mo: 1,98%

Tableau IV-3 : rayons de courbure prédits par le modèle de Bobadilla et al. et mesurés par Chehaïbou dans différents cas d'alliages et de conditions de croissance.

Ainsi pour comparer les sursaturations obtenues à partir des mesures aux sursaturations prédites par le modèle d'Ivantsov, il semble plus exact de considérer que les dendrites croissent avec un rayon de courbure à la pointe environ cinq fois plus grand que la longueur de stabilité marginale. On parlera dans la suite de l'étude de l'utilisation d'un facteur multiplicatif égal à 5.

• application du modèle de Trivedi

Une analyse plus fine du phénomène de croissance à la pointe consiste à tenir compte de l'existence d'un gradient de température autour de la dendrite en utilisant le modèle de

Trivedi [18] pour calculer la sursaturation. Pour un alliage binaire, celle-ci prend la forme :

$$\Omega = \phi \cdot \left[\frac{1 + \xi}{1 + \xi \cdot \phi \cdot (1 - k)} \right] \quad (\text{IV-4})$$

avec ξ , terme correctif.

Pour calculer le point d'avancée de la dendrite, on intègre cette nouvelle valeur de la sursaturation dans la recherche de la longueur de stabilité marginale. Le modèle de Trivedi a été développé pour des alliages binaires. Aussi, pour évaluer l'effet du gradient dans le cas de l'AM1, un alliage binaire "équivalent" a été déterminé à partir du modèle de Bobadilla et al. dans le domaine des vitesses et des gradients considérés. Cet alliage "équivalent" a été choisi en tenant compte de la relation trouvée par ce modèle entre rayon de courbure et vitesse (équation II-6) ainsi qu'entre surfusion constitutionnelle et sursaturation (II-3). Les données physiques de cet alliage équivalent sont rassemblées dans le tableau IV-4 :

alliage binaire équivalent à l'AM1	
intervalle de solidification à l'équilibre ΔT_0	41,5 K
coefficient de partage à l'équilibre k	0,76
m.°w	-130 K

Tableau IV-4 : données physiques et chimiques de l'alliage binaire "équivalent" à l'AM1.

L'intervalle de solidification de l'alliage AM1 est calculé à partir des pentes de liquidus au voisinage de la composition initiale et des coefficients de partage à l'équilibre :

$$\Delta T_0 = \sum_i m_i \cdot w_i \cdot \left(1 - \frac{1}{k_i} \right) \quad (\text{IV-5})$$

Les courbes d'évolution de la surfusion et de la sursaturation en fonction de la vitesse sont présentées dans la figure IV-16. Elles montrent que dans le domaine de vitesses considéré, le gradient thermique dans le liquide n'a que peu d'influence. Le modèle de Trivedi donne des valeurs peu différentes de celles du modèle d'Ivantsov, et en particulier dans le cas où le rayon est pris cinq fois plus grand que la longueur de stabilité marginale.

b.2. Discussion des résultats

Pour une vitesse de tirage de 4 mm/min, la sursaturation calculée avec le facteur multiplicatif est de 0,25. Elle est de 0,28 si l'on estime que la vitesse réelle d'avancée du front de solidification est de 6 mm/min. Ces valeurs de sursaturation sont de l'ordre de grandeur de la plupart des sursaturations Ω'_i observées. Ces courbes théoriques n'expliquent cependant pas les différences visibles dans la sursaturation mesurée Ω'_i en fonction des éléments d'alliage. Cette différence peut provenir de simplifications faites dans l'application des modèles ; en particulier, les courbes ont été calculées en prenant en compte un coefficient de diffusion dans le liquide identique pour tous les éléments d'alliage. D'autre part, la sursaturation mesurée Ω'_i peut ne pas représenter exactement la sursaturation Ω parce que de la diffusion à l'état solide existe et modifie la composition au centre des axes primaires sur l'échantillon entièrement solide par rapport à la composition du premier solide déposé.

• diffusion dans le liquide

Il est logique d'imaginer que les éléments d'alliage ont des coefficients de diffusion dans le liquide différents les uns des autres. On imagine aisément que l'aluminium, parce que le rayon de son atome est très petit diffusera plus facilement que l'atome de tungstène. Pour estimer l'influence sur la sursaturation apparente des divers éléments de leur coefficient de diffusion dans le liquide, un gradient longitudinal et une vitesse d'avancée du front ont été choisis, qui sont supposés correspondre aux conditions réelles de solidification. Le rayon de courbure à la pointe des dendrites est alors déterminé par le modèle de Bobadilla et al. ; il ne varie pas d'un élément d'alliage à l'autre. D'après l'équation II-5, le seul paramètre qui change le Péclet solutal sera alors le coefficient de diffusion dans le liquide. Les différentes sursaturations en fonction des éléments d'alliage seront données par l'équation d'Ivantsov (équation II-4). Le tableau IV-5 montre les sursaturations obtenues dans une gamme de coefficients de diffusion D^l variant entre $2 \cdot 10^{-5}$ et $1 \cdot 10^{-4}$ cm²/s. On suppose que si les coefficients de diffusion dans le liquide varient en fonction des éléments, ils doivent rester dans cette plage de valeurs.

R (μm)	R = λ _s			R = 5.λ _s		
	3,53			17,65		
D ^l (cm ² /s)	2.10 ⁻⁵	5.10 ⁻⁵	1.10 ⁻⁴	2.10 ⁻⁵	5.10 ⁻⁵	1.10 ⁻⁴
Ω	0,187	0,102	0,062	0,438	0,279	0,187

Tableau IV-5 : sursaturations obtenues pour différents coefficients de diffusion dans le liquide. Les conditions de croissance sont G = 20 K/cm et V = 6 mm/min.

On montre ici qu'un élément qui diffuse faiblement, donc qui a un faible coefficient de diffusion, conduit à une plus grande sursaturation. Ce résultat est à l'opposé des résultats

expérimentaux, où l'on observe la plus faible sursaturation pour le tungstène et le tantale, et la plus forte pour l'aluminium. Les variations imposées du coefficient de diffusion dans le liquide ne permettent donc pas d'expliquer les différences dans les sursaturations mesurées.

• diffusion dans le solide

Divers auteurs, tels que Merz et al. [102] et Chehaïbou [53] ont montré que certains éléments peuvent diffuser rapidement à l'état solide dans des alliages base nickel. Merz et al. ont travaillé sur des alliages ternaires Ni-7,5%Al-2%Ta. Dans leur étude, ils ont observé que l'aluminium diffuse beaucoup pendant la solidification alors que le tantale, lui, diffuse peu, même lors du refroidissement. Compte tenu de ces résultats, ces deux éléments nous serviront de références. Ainsi, la diffusion importante de l'aluminium, associée au fait que cet élément ségrège peu, permet d'expliquer les valeurs voisines de 1 obtenues pour la sursaturation estimée.

Les équations de Brody et Flemings [68] (cf § II.2.2.) décrivant la diffusion dans le solide pendant la solidification font intervenir une variable $\alpha.k$, α étant le paramètre d'homogénéisation dont la définition est donnée par l'équation II-13) et k le coefficient de partage à l'équilibre. Qualitativement, α correspond à la capacité qu'a un élément à diffuser et k est lié aux différences de composition à l'échelle de la microstructure. Un calcul de la valeur de $(\alpha.k)$ pour chacun des éléments donnera alors une idée de l'importance de la diffusion à l'état solide et de son influence sur les sursaturations mesurées Ω'_i .

Le calcul de α est effectué à partir des données des coefficients de diffusion disponibles dans la littérature ; ceux-ci ne concernent que des alliages binaires, voire même la diffusion d'un élément à l'état de traces dans le nickel. Ces coefficients de diffusion sont donnés dans une gamme de température, par le terme pré-exponentiel D_{0i}^s et l'énergie d'activation Q_i (équation IV-6) ; la revue bibliographique des valeurs est présentée dans le tableau IV-6 :

$$D_i^s = D_{0i}^s \cdot \exp\left(\frac{-Q_i}{r.T}\right) \quad (IV-6)$$

élément d'alliage	D_{0i}^s (cm ² /s)	énergie d'activation Q_i (J/mol.)	domaine de température (°C)	réf.
Al	1,87	267 900	1100-1300	[103]
	1,0	260 000 ± 13 000	641-939	[104]
Cr	8,52	292 100	950-1200	[105]
Mo	3	284 600	1150-1400	[103]
Ti	0,86	257 000	1100-1300	[103]
Co	2,77	285 000	1050-1400	[106]
	1,46	285 900	900-1250	[103]
W	2,87	329 000	1050-1400	[106]
	11,1	321 400	1100-1300	[103]
	1,1	297 200	1100-1275	[103]
Ta	2,05	298 200		[102]

Tableau IV-6 : revue bibliographique des coefficients de diffusion à l'état solide des éléments dans le nickel.

L'espacement entre bras secondaires de dendrites λ_2 a été mesuré sur les macrographies de coupes longitudinales : il est proche de 100 μm . Pour chaque élément d'alliage, un paramètre α_i équivalent a été calculé suivant la procédure employée par Merz et al. [102] en vue de tenir compte de l'abaissement en température :

$$\alpha_i = \frac{4}{(\lambda_2)^2} \int_{T_i}^{T_{\text{eutect.}}} D_{0i}^s \cdot \exp\left(\frac{-Q_i}{r \cdot T}\right) \cdot \frac{dT}{GV} \quad (\text{IV-7})$$

soit, en utilisant à la place de l'intégrale une sommation par intervalle ΔT_m de 1 K entre la température de début de solidification (1637 K) et la température de fin de solidification (1583 K), correspondant au dépôt de l'eutectique :

$$\alpha_i = \frac{4 \cdot D_{0i}^s}{G \cdot V \cdot (\lambda_2)^2} \cdot \Delta T_m \cdot \sum_{T=1637 \text{ K}}^{T=1583 \text{ K}} \exp\left(\frac{-Q_i}{r \cdot T}\right) \quad (\text{IV-8})$$

La diffusion dans le solide peut intervenir lors de la solidification mais aussi, en plus, lors du refroidissement, tout au moins jusqu'à la précipitation de la phase γ' . On a donc également calculer la valeur de $(\alpha \cdot k)$ pour un abaissement en température depuis la température de début de solidification jusqu'à une température moyenne de précipitation de

1250°C (1523 K). Les valeurs ($\alpha.k$) ainsi obtenues pour la diffusion pendant la solidification et pendant le refroidissement sont reportées dans le tableau IV-7 :

élément	($\alpha.k$) solidification	($\alpha.k$) refroidissement
Al	0,0369 - 0,0383	0,0573 - 0,0591
Ta	0,0037	0,0055
W	0,0009 - 0,0064	0,0014 - 0,0094
Co	0,0094 - 0,0189	0,0142 - 0,0287
Cr	0,0290	0,0438
Ti	0,0253	0,0394
Mo	0,0151	0,0230

Tableau IV-7 : valeurs de ($\alpha.k$) obtenues à partir des données de la littérature.

On peut tout d'abord voir que la diffusion durant le refroidissement, après solidification, n'est pas négligeable pour les éléments tels que l'aluminium, le chrome, le titane et le molybdène. En effet, pour ces éléments la valeur de ($\alpha.k$) au refroidissement est sensiblement plus élevée que celle calculée uniquement pour la solidification. On peut admettre que le tantale ne diffuse pas à l'état solide ; il en est de même pour le tungstène. Pour les autres éléments, les valeurs de ($\alpha.k$) sont intermédiaires entre celles de l'aluminium et du tantale. Le graphique de la figure IV-17 présente les valeurs de sursaturation mesurées Ω'_i en fonction du paramètre de diffusion ($\alpha.k$). Il permet de constater qu'il existe une corrélation nette entre ces deux grandeurs. Compte tenu de cette corrélation, et comme la diffusion dans le liquide ne permet pas d'expliquer les différences entre les sursaturations Ω'_i , on peut conclure que ces différences proviennent essentiellement de l'existence d'une diffusion à l'état solide pendant le refroidissement.

La valeur réelle de la sursaturation à la pointe des dendrites ne peut être alors estimée que dans le cas des éléments qui diffusent très peu, c'est-à-dire le tantale et le tungstène. Elle a, en moyenne, pour valeur 0,10 à 0,12 et correspond à la sursaturation prédite par le modèle de Trivedi ou celui d'Ivantsov dans le cas où le rayon de courbure à la pointe des dendrites est pris égal à la longueur de stabilité marginale.

La différence entre les sursaturations en tantale (ou tungstène) entre la branche radiale centrale et la branche tangentielle de l'éprouvette à quatre branches peut maintenant être analysée. Les modèles montrent que le gradient thermique longitudinal n'a pratiquement pas d'influence dans notre cas sur la sursaturation. Les différences de sursaturation pourraient éventuellement être dues aux différences de vitesses. Une sursaturation de 0,10 correspond à une vitesse de 6 mm/min. Une sursaturation de 0,155 correspond à une vitesse d'environ

20 mm/min. On a pu vérifier sur la coulée instrumentée que cette vitesse n'est jamais atteinte dans les branches. La différence entre les sursaturations dans les deux branches n'est donc pas reliée à la différence de densité d'axes. Elle doit avoir plutôt pour origine des fluctuations statistiques.

IV.2.3. Microségrégations et chemin de solidification

a. Microségrégations

La répartition des éléments d'alliage a été étudiée sur des sections transversales pour caractériser les microségrégations résiduelles. Celles-ci peuvent, moyennant certaines hypothèses, renseigner sur la solidification à l'échelle locale, au niveau de la dendrite. Pour cela, des analyses microsonde ponctuelles ont été effectuées aux noeuds d'une trame de points à pas de 200 μm , suivant une procédure employée par Hazotte [107] (cf § III.3.1.d.), sur des portions de sections transversales prises dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches. Ces sections présentent des densités d'axes différentes, et donc, a priori, des répartitions des éléments d'alliage différentes.

Hazotte a montré [107] qu'il existe une relation linéaire entre le coefficient de variation V_c des mesures de chaque élément d'alliage et le coefficient de partage à l'équilibre k_i correspondant. Cette relation est linéaire si l'on donne une valeur négative au coefficient de variation des éléments ayant un coefficient de partage supérieur à 1. Hazotte a également montré que la pente de la droite représentant la relation $V_c(k_i)$ est d'autant plus forte que les ségrégations résiduelles sont plus marquées : la pente est plus faible pour un échantillon homogénéisé à 1300°C pendant 3 heures que pour un échantillon brut de solidification, elle est nulle après un traitement thermique de 100 heures à 1300°C. La figure IV-18 montre que de telles relations existent pour nos mesures, réalisées sur deux portions de sections transversales de densités d'axes différentes. La pente des analyses réalisées sur la portion de section de densité d'axes 11,8 mm^{-2} est légèrement plus faible que celles des mesures faites sur la portion de section de densité d'axes 7,6 mm^{-2} , ce qui indique des ségrégations plus faibles. Ceci ne peut pas être expliqué par un effet de la diffusion à l'état solide vu plus haut.

A partir de l'ensemble des résultats des mesures ponctuelles réalisées, on peut tracer les courbes de corrélation entre les teneurs de différents éléments d'alliage. La figure IV-19 présente les courbes obtenues pour les divers éléments en fonction du tantale. Celui-ci est un élément ségrégeant fortement et donc un excellent témoin des microségrégations résiduelles. Les courbes de la figure IV-19 montrent une forte corrélation entre chacun

des éléments et le tantale. Elles correspondent au dépôt de solide entre le centre des dendrites (première zone à se solidifier) et l'eutectique de fin de solidification. Ce sont donc des projections du chemin de solidification dans le diagramme de phases. La figure IV-19 montre que l'on peut séparer les courbes en deux parties : chaque courbe est composée de deux "pseudo-droites", l'une vers les faibles valeurs de teneur en tantale et l'autre, qui croise la première, est située plutôt vers les fortes teneurs en tantale. Ces droites sont désignées respectivement par les lettres S et E sur la figure IV-19a. Dans le cas du tungstène et du titane, les deux droites sont confondues, tandis que dans le cas du molybdène et du chrome leurs pentes sont de signes opposées. On peut remarquer également que la première droite contient beaucoup plus de points de mesures que la deuxième. Cela veut dire que la majeure partie de la solidification s'est effectuée en suivant la première droite.

Compte tenu de ces remarques, on imagine très facilement que la première droite correspond au dépôt du solide primaire. On peut noter que la pente de cette droite est positive, donc que l'élément ségrège dans le même sens que le tantale, lorsque le coefficient de partage à l'équilibre est inférieur à 1 comme celui du tantale, et que la pente est négative dans le cas contraire. Les plus faibles valeurs de teneur en tantale correspondent au dépôt du premier solide, au centre des dendrites. Or, sur les micrographies des échantillons après analyse X, il est possible de repérer les zones analysées, et particulièrement le centre des dendrites et la phase γ' de l'eutectique γ/γ' . Les compositions mesurées sur ces zones sont présentées dans le tableau IV-8.

	Al	W	Cr	Mo	Ta	Ti	Co	Ni
composition nominale	5,2	5,5	7,5	2	8,6	1,2	6,5	63,5
composition mesurée par analyse chimique	5,08	5,51	7,29	1,97	7,90	1,11	6,50	bal.
Plage de densité 11,8 mm ⁻²								
moyenne	4,91	5,37	7,47	1,93	7,95	1,18	6,54	64,7
centre des dendrites	4,68	7,07	7,28	1,75	6,17	0,83	6,93	65,3
γ' eutectique	4,57 à 5,51	1,70 à 4,05	6,20 à 8,69	1,76 à 2,61	9,03 à 11,93	1,61 à 2,02	5,69 à 6,64	65,3 à 62,8
Plage de densité 9 mm ⁻²								
moyenne	5,07	5,54	7,38	1,98	7,95	1,18	6,43	64,5

centre des dendrites	4,78	8,07	7,04	1,69	6,13	0,77	6,63	64,9
Plage de densité 8,6 mm ⁻²								
moyenne	4,86	5,31	7,34	1,78	8,03	1,18	6,55	64,9
centre des dendrites	4,60	7,52	7,14	1,62	6,19	0,80	6,84	65,3
	4,54	6,63	7,48	1,78	6,80	0,87	6,79	65,1
γ'	5,64 à	1,14 à	4,91 à	1,37 à	9,55 à	1,54 à	5,38 à	64,5 à
eutectique	4,69	3,65	7,60	2,01	13,02	2,38	6,24	66,5
Plage de densité 7,6 mm ⁻²								
moyenne	5,05	5,28	7,28	1,95	8,17	1,22	6,46	64,6

Tableau IV-8 : valeurs des compositions moyennes, de celles des centres des dendrites et des pointés englobant des plages eutectiques, après vérification sur micrographies. Les eutectiques ayant de petites dimensions, certains pointés englobent à la fois eutectique et métal environnant.

La deuxième "pseudo-droite" des courbes correspond au dépôt du solide eutectique. On peut en apporter une preuve en comparant le comportement des différents éléments entre le solide non eutectique et le solide eutectique. Dans le cas du solide non eutectique, qui se dépose en phase γ , ce comportement est défini par le coefficient de partage à l'équilibre k_i . Dans le cas du solide eutectique, mélange de phase γ et de phase γ' primaire, il est défini qualitativement par le coefficient de partition à haute température (1050°C) qui montre la répartition des éléments entre la matrice γ et les précipités γ' . Cette comparaison entre k_i et le coefficient de partition permet d'expliquer l'origine de la deuxième droite des courbes de la figure IV-19 en expliquant pourquoi, dans certains cas, les signes des pentes des deux droites de la courbe $w_i(w_{Ta})$ sont opposés. Les coefficients de partition utilisés sont ceux mesurés par Fredholm [81] sur l'AM1, à 1050°C. Le tableau IV-9 donne la valeur de ces deux coefficients.

élément d'alliage	Co	Cr	Mo	W	Al	Ti	Ta
coefficient de partage $k_i = w_i^{s*} / w_i^{l*}$	1,09	0,92	0,78	1,38	0,91	0,58	0,76
coefficient de partition $w_i^{\gamma} / w_i^{\gamma'}$	1,92	6,25	5	1,54	0,56	0,36	0,34

Tableau IV-9 : valeurs du coefficient de partage à l'équilibre et du coefficient de partition dans l'AM1, pour les différents éléments d'alliage.

Le tableau IV-9 permet de montrer que le molybdène et le chrome sont les seuls éléments à changer de comportement par rapport au tantale entre le solide non eutectique et le solide

eutectique (les coefficients doivent être comparés à la valeur 1). Or le molybdène et le chrome sont les seuls éléments dont les deux droites ont des pentes de signes opposés : il est fondé de penser que la deuxième droite sur les courbes de la figure IV-20 correspond au dépôt de solide eutectique.

En s'appuyant sur les interprétations des résultats fournis par Hazotte [107], il reste à expliquer pourquoi certains pointés relevés sur la droite du dépôt eutectique se trouvent vers des valeurs en tantale plus faibles que la fin de la droite de dépôt non eutectique. Les compositions des plages de γ primaire correspondent aux compositions les plus riches en tantale. Or l'eutectique se présente sous la forme d'un précipité de γ primaire entouré par une fine zone de γ eutectique. Les pointés sur la droite de dépôt eutectique correspondant aux compositions de tantale les plus faibles pourraient être dus à cette zone de γ eutectique. Les variations de composition sur cette droite peuvent provenir du parcours de la vallée eutectique. Elles pourraient être aussi dues en partie à des artefacts de mesure, quand dans un même pointé on analyse deux phases simultanément.

b. Cinétique de solidification

Le cinétique de solidification, c'est-à-dire l'évolution de la fraction de solide avec la température a été calculé pour l'AM1 en considérant l'équation de Scheil (pas de diffusion dans le solide) et la règle du bras de levier (diffusion complète dans le solide).

Le pourcentage d'eutectique peut être mesuré très simplement par analyse d'image, à partir des macrographies, en considérant sur une trame carrée, le pourcentage d'intersections appartenant à la phase eutectique. Ce pourcentage donne directement la fraction volumique d'eutectique. La mesure a été faite avec une trame comportant des intersections tous les 57 μm et le pourcentage volumique d'eutectique obtenu est de $4,5 \pm 1 \%$.

Les études précédentes sur des alliages ternaires ou polyconstitués à base nickel [53,108], montrent un écart entre les courbes expérimentales et la loi de Scheil (figure IV-20). Cet écart existe notamment en début de solidification. Chehaïbou attribue les différences ultérieures à une diffusion limitée dans le solide. A partir des modèles d'Abbaschian et de Solari et Biloni (cf § II.2.2.), des cinétiques de solidification ont été calculés pour tenir compte de la sursaturation à la pointe des dendrites. La figure IV-21 montre les cinétiques de solidification obtenus sur l'AM1, avec des sursaturations et donc des surfusions différentes dans le cas du modèle d'Abbaschian. Celle de Solari et Biloni diffère très peu de celle obtenu par l'équation de Scheil ; elle ne permet pas d'expliquer les

résultats de Chehaïbou. Dans le cas du modèle d'Abbaschian, les courbes de surfusions différentes se croisent, ce qui est à l'opposé des comportements des courbes observés par Chehaïbou, pour des surfusions initiales différentes. Ni le modèle de Solari et Biloni, ni le modèle d'Abbaschian ne permettent donc d'expliquer les résultats de Chehaïbou.

Chapitre V

ETUDE DE LA QUALITE CRISTALLINE

V.1. Les différents types de mosaïcité

L'analyse de la qualité cristalline des différentes pièces a été réalisée en topographie X et diffraction γ , dans le but d'observer le type de défauts présents et leur évolution, et finalement pour tenter de trouver leur origine. Différentes échelles de désorientations ont été observées : au niveau des dendrites, de quelques dizaines de dendrites, ou encore à l'échelle des sections voire même à l'échelle des pièces.

V.1.1. Les dendrites

Les désorientations existant à cette échelle ne sont visibles qu'en topographie X car la diffraction gamma ne permet pas de séparer la contribution de chacune des dendrites (cf § III.3.4.e.).

a. *Désorientations entre dendrites*

La topographie en faisceau polychromatique d'une section transversale, présentée sur la figure III-17, a montré qu'il est possible de visualiser les différents axes dendritiques⁶. Cette visualisation est possible car les images de ces axes sont déplacées les unes par rapport aux autres, ce qui indique l'existence de désorientations entre dendrites. De la même façon, sur la portion de section longitudinale de la figure V-1, les axes dendritiques apparaissent sous forme de lignes.

En faisceau monochromatique sur sections transversales, on a pu estimer les désorientations entre dendrites voisines, à l'aide de séries de topographies telles que celles de la figure V-2. Entre les topographies de gauche et celles de droite, l'angle faisceau incident/surface Φ a été changé de $-15'$ ($-0,25^\circ$) ; les dendrites qui diffractent sont différentes, ce qui indique l'existence de désorientations entre elles. En moyenne, les désorientations estimées entre dendrites voisines sont égales à la valeur du pas de rotation, soit $15'$; cependant dans certains cas particuliers, dont nous parlerons ultérieurement, la désorientation entre dendrites voisines peut atteindre 1° . La valeur de $15'$ a été adoptée

⁶ Entre le cœur des dendrites, qui a une composition homogène, et les zones de fin de solidification, il existe une forte variation de la composition à laquelle est associée une variation continue du paramètre de maille. Le réseau cristallin doit être courbé pour accommoder les variations de paramètre. Ceci conduit à ce que les espaces interdendritiques diffractent d'une façon diffuse et contribuent au bruit de fond enregistré sur la topographie polychromatique. Les croix noires visibles sur la topographie correspondent au cœur des dendrites.

comme pas angulaire pour la plupart des observations effectuées afin de minimiser le nombre de topographies nécessaires à la cartographie des désorientations (cf § III.3.3.e.4.). Elle est suffisante pour visualiser la diffraction de toutes les dendrites.

Des rayures rectilignes ont été réalisées sur les sections (cf § III.3.3.e.2.) pour repérer les dendrites. L'image de ces rayures, visible sur la topographie en haut à droite de la figure V-2, présente des décrochements et des distorsions, au fur et à mesure de la traversée des différentes dendrites, qui visualisent également les désorientations.

La désorientation entre dendrites est la grandeur intéressante dans cette partie de l'étude. En particulier des cartographies des désorientations seront réalisés (cf § V.1.4.). Le repérage des dendrites est fait en comparant les topographies avec les micrographies optiques des sections attaquées. On reconnaît les dendrites sur les topographies par leur position par rapport aux rayures et par la comparaison de la disposition des dendrites les unes par rapport aux autres. Un dernier moyen de repérage concerne la forme du cœur des dendrites, avec l'existence éventuelle de bras tertiaires, qui apparaissent de la même façon en métallographie et en topographie X.

b. Contraste observé dans la dendrite

La topographie X permet de mettre en évidence les désorientations entre dendrites. Sur les topographies X, une étude plus fine fait apparaître également des variations de contraste à l'intérieur des dendrites.

b.1. Contraste cœur de dendrite/espace interdendritique

Une dendrite particulière a été repérée par une flèche sur chaque topographie en haut de la figure V-2 [4]. Le changement d'angle modifie l'aspect de la dendrite sur la topographie : la dendrite apparaît à gauche comme une croix noire, avec ses bras tertiaires, alors qu'à droite seuls ses contours sont visibles et ont un aspect flou. Quand on continue la rotation, on obtient une image "fantôme", grisâtre, et dans laquelle les formes ne sont plus que difficilement visibles. Cette image fantôme peut subsister sur un assez grand angle de rotation. Un tel phénomène est observable sur la série de topographies de la figure V-3 qui présente l'évolution avec la rotation autour de $[\bar{1}10]$ de la diffraction des plans (113) d'une portion de section transversale prise dans l'une des branches de l'éprouvette à deux branches. Après que les dendrites aient cessé de présenter l'image de croix noires, leurs contours apparaissent mais sont de plus en plus flous. Sur la série de topographies au bas de la figure V-2, qui a été réalisée autour d'un axe de rotation situé à 180° de celui utilisé

pour la série de topographies du haut, il existe une évolution semblable de l'image de la dendrite. Cette évolution a lieu pour un même sens de rotation autour de l'axe.

Lorsque l'image de la dendrite apparaît sous la forme d'une croix noire, son aspect est semblable à celui obtenu en micrographie optique. La dendrite ne présente cet aspect que pour une petite variation de l'angle de rotation, dans une série de topographies, tandis que l'image floue s'étale sur une plage d'angles plus importante. Ces deux arguments suggèrent que l'image de croix noire provient de la diffraction du cœur de dendrite, de composition chimique relativement homogène, tandis que l'aspect flou provient de la diffraction de l'espace interdendritique, où existent de plus forts gradients de composition. Le contraste entre les deux topographies serait plutôt dû au contraste de maille qu'à d'éventuelles désorientations à l'intérieur de la dendrite (cf § III.3.3.).

Deux faits confirment de façon plus ou moins directe cette hypothèse. En premier lieu, la variation des paramètres de maille pour les deux phases γ et γ' entre le cœur des dendrites et l'espace interdendritique dû à la différence de composition chimique a été estimé [4]. Les paramètres calculés sont donnés dans le tableau V-1, où l'on constate que le paramètre de maille des deux phases augmente. Le paramètre moyen représentatif de ces deux phases supposées cohérentes augmente donc lui aussi. D'après l'équation III-5, et pour une famille de plans diffractants donnée, ceci doit se traduire expérimentalement par une diminution de l'angle de Bragg, et donc par une diminution de l'angle Φ , quelque soit l'axe de rotation employé [97].

	centre des dendrites	espace interdendritique
a_γ	3,589 Å	3,600 Å
$a_{\gamma'}$	3,593 Å	3,598 Å

Tableau V-1 : valeurs estimées des paramètres de maille des phases γ et γ' au centre des dendrites et dans les zones de fin de solidification.

Les expériences de topographie X montrent effectivement que, quelque soit l'axe de rotation et l'échantillon, les croix noires nettes (ou les lignes noires dans le cas de sections longitudinales) représentant le cœur des dendrites sont visibles pour des angles Φ plus grands que ceux pour lesquels l'image floue apparaît. Le sens de variation correspond bien à un accroissement du paramètre, en accord avec les résultats des calculs montrés dans le tableau V-1. Sur les topographies, l'angle nécessaire pour passer de la croix aux contours flous est de l'ordre de grandeur du pas de rotation, soit 15' à 20' (0,25° à 0,33°). Ces valeurs expérimentales concordent avec la variation d'angle de Bragg de 10' estimée à partir des variations de paramètre de maille pour la phase γ .

Un autre argument confirme l'hypothèse d'un contraste de maille à l'intérieur de la dendrite. Un échantillon a été complètement homogénéisé d'un point de vue chimique par un traitement thermique de 100 h à 1300°C. Une attaque métallographique réalisée sur une section [001] n'a pas révélée d'hétérogénéités chimiques résiduelles, non plus qu'un balayage en microsonde. Une série de topographies, telles que celle de la figure V-4, prises avec un pas de rotation de 15', révèle la présence de blocs désorientés dont la taille correspond à celle des dendrites. On ne distingue plus de différence entre le cœur de la dendrite et l'espace interdendritique : les zones diffractantes ont une forme et une surface qui correspondent à celle des dendrites "complètes", cœur et espace interdendritique compris. Ainsi supprimer les hétérogénéités chimiques conduit à supprimer la différence entre croix et image floue ; ceci conforte l'idée d'un pur effet de contraste de maille. Par ailleurs, on remarque, comme cela avait déjà été noté par d'autres auteurs (§ II.2.3.c.), que le traitement thermique ne supprime pas les désorientations entre dendrites.

b.2. Désorientations au cœur de la dendrite

En très grande majorité, le cœur d'une dendrite apparaît complet et avec une plus forte intensité sur une seule topographie. On a donc supposé que la désorientation dans le cœur de la dendrite était négligeable à l'échelle qui nous intéresse. Bellet et Bastie [74] ont étudié les désorientations dans les dendrites par astérisme en topographie X polychromatique. A partir de la différence de déformation de l'image des bras secondaires suivant la tache de diffraction analysée, ils trouvent des désorientations à l'intérieur de la dendrite de l'ordre de 5' à 7'.

Cette désorientation est faible au regard des désorientations qui nous intéressent, c'est-à-dire à l'échelle de la pièce (de l'ordre du degré) et à l'échelle de quelques dendrites (de l'ordre de 15' à 20'). La technique de topographie X employée dans cette étude n'a donc pas été développée pour mesurer ces désorientations internes. Mesurer ces désorientations à l'intérieur de la dendrite en topographie X monochromatique pourrait cependant être possible moyennant quelques précautions : il faudrait, en particulier, diminuer au maximum la divergence du faisceau incident, et préparer la surface par un polissage électrochimique pour enlever toutes les contraintes résiduelles. On pourrait alors connaître le profil de diffraction de chaque dendrite, et donc les désorientations intradendritiques, par mesure de densité optique sur les topographies ; ceci nécessiterait par ailleurs d'avoir des conditions de temps d'exposition aux rayons X et de développement des photos identiques pour chaque topographie. Pour séparer le contraste de maille résiduel des désorientations, la méthode proposée par Robert et Lefauchaux [97] est utilisable ; elle

consiste à évaluer les parts respectives des deux phénomènes à la variation de l'angle Φ en tournant les plans diffractants de 180° autour de leur normale. Il vaut mieux pour cela utiliser les mêmes plans diffractants plutôt que des plans différents de la même famille. Pratiquement on emploiera alors une réflexion du faisceau symétrique, avec des plans diffractants parallèles à la surface de l'échantillon.

b.3. Conclusion

Le contraste cœur de dendrite/espace interdendritique est pour l'essentiel un contraste de maille. On négligera dans le cadre de notre étude les petites désorientations au cœur de la dendrite mises en évidence par Bastie et Bellet. Chaque dendrite est donc considérée comme une entité cristallographique, à laquelle est associée une direction spécifique de réseau cristallin.

V.1.2. Composantes de la mosaïcité

La figure V-5 présente trois profils de diffraction γ , obtenus respectivement autour des axes [100], [010] et [001] sur une portion d'une des branches de l'éprouvette à deux branches. Ces trois profils de diffraction correspondent aux trois composantes de la mosaïcité. La figure V-6 présentent la même expérience réalisée sur deux branches d'une éprouvette à quatre branches ; le profil de diffraction autour de [001] est obtenu simultanément pour les deux branches. Ces deux séries de profils de diffraction font apparaître une désorientation moindre autour de l'axe [001], qui est l'axe de croissance des dendrites, caractérisée par le fait qu'un seul pic apparaît, de largeur à mi-hauteur faible par rapport aux pics des deux autres profils de diffraction. Cette observation est générale, elle a été vérifiée dans tous les cas où les désorientations autour de l'axe [001] ont été étudiées, que ce soit dans le cas de l'éprouvette à deux branches ou de l'éprouvettes à quatre branches.

La faible contribution de la rotation autour de [001] a été observée, dans le cadre de cette étude, sur des pièces coulées sous faible gradient et avec une faible vitesse. Bastie et al. [80] (cf § II.2.3.b.2. et tableau II-1) ont montré que la contribution de la désorientation autour de [001] était également plus faible que celle des autres désorientations dans le cas d'autres conditions thermiques de fabrication de pièce. D'une façon générale, il existe une désorientation entre axes primaires de dendrites plutôt qu'une rotation des dendrites autour de la direction cristallographique correspondant à leur axe de croissance principal. Si la part respective des différentes contributions à la mosaïcité reste la même quand les conditions thermiques changent, l'ordre de grandeur des désorientations varie. Dans l'étude

de Bastie et al., les désorientations sont caractérisées notamment par l'étendue, évaluée sur les profils de diffraction γ par l'intervalle angulaire dans lequel l'échantillon diffracte. Le tableau II-1 nous montre ainsi que, pour toutes les composantes de la mosaïcité, la valeur de l'étendue augmente fortement lorsque le gradient thermique longitudinal croît. Son influence sur la mosaïcité apparaît beaucoup plus sensible que celle de la vitesse.

V.1.3. Les sous-joints de grains

A l'échelle de la pièce, les désorientations apparaissent de façon spectaculaire par l'existence de sous-joints, voire même de joints de grains. Ces sous-joints de grains ont été étudiés par différentes techniques : diffraction gamma, topographie X et métallographie. La topographie X n'ayant été mise en œuvre que sur des sections de l'éprouvette à deux branches, la partie correspondante de l'étude ci-dessous ne porte que sur cette éprouvette.

a. Mise en évidence par diffraction gamma

La bande blanche visible sur la topographie polychromatique de la figure III-17 montre qu'une partie de la section en question est désorientée par rapport à l'autre : cela correspond à un sous-joint de grains coupant la section en deux parties à peu près égales, suivant la largeur, donc suivant une direction proche de [100]. Les profils de diffraction gamma de la zone de la branche correspondante, présentés à la figure V-5, montrent la présence de deux pics très différenciés pour la rotation [100]. Compte tenu du fait qu'on a pu déterminer, par topographie X, la présence de sous-grains sur le plan de la section, on peut dire que chacun des pics de diffraction gamma correspond à un sous-grain.

Dans les éprouvettes à deux branches, les désorientations entre maxima de chaque pic peuvent atteindre 3°. Cette valeur relativement faible, associée aux faibles désorientations autour des autres axes, permet de dire qu'il existe des relations entre les deux grains. Autrement dit, il ne peut pas s'agir de grains parasites ayant crû de façon complètement indépendante.

Dans l'éprouvette à deux branches, un sous-joint de grain a également été observé sur une section transversale de l'autre branche de l'éprouvette. Pour des raisons de facilité, cette branche sera appelée branche 1, alors que la branche 2 désigne celle contenant le sous-grain vu en topographie polychromatique (figure III-17) et en diffraction gamma sur la figure V-5. La figure V-7 présente les profils de diffraction gamma du sous-joint de la branche 1. L'axe [100] est dans ce cas également l'axe de désorientation principale entre les sous-grains. La topographie X monochromatique montre que ce sous-joint coupe également la section suivant sa largeur, en deux parties égales.

De la même façon, sur les éprouvettes à quatre branches, aucun grain parasite n'a été rencontré, même si les désorientations observées sont plus élevées. Ce fait a été confirmé par l'absence, jusqu'à la couronne, de marques montrant une différence de réflectivité en attaque macroscopique. Des marques de joints de grains peuvent cependant apparaître sur la couronne, à la jonction des grains issus des différentes branches.

Dans le cas de l'éprouvette à deux branches, on peut donc considérer que l'on est en présence sur toute la section d'un grain contenant deux sous-grains dans chacune des branches. Le cas des désorientations rencontrées dans les branches des éprouvettes à quatre branches est différent : nous verrons dans le paragraphe V.3.1.b. que les profils de diffraction rencontrés dans les branches présentent la plupart du temps des pics étalés, sans qu'il soit toujours possible de séparer nettement les différents maxima. Il n'est alors plus question de parler de sous-grains, mais plutôt d'un grain unique présentant une très forte mosaïcité.

b. Etude des sous-joints par topographie X monochromatique

Les sous-joints présents dans les branches 1 et 2 peuvent être mis en évidence par topographie monochromatique, car les sous-grains diffractent pour des angles différents. Les figures V-8 et V-9 montrent les topographies X obtenues en faisant varier, pour chaque série de topographies, l'angle entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon. Les séries ont été réalisées pour deux axes de rotation sur chacune des sections transversales : la figure V-8 correspond à la branche 2, et la figure V-9 à la branche 1. Les différents sous-grains apparaissent sur chaque série comme des régions de la section dans lesquelles des dendrites plus ou moins éloignées les unes des autres diffractent en même temps. De façon générale, un sous-grain diffracte pour une certaine plage d'angles Φ différente de celle de l'autre sous-grain. Qui plus est, dans le cas de la branche 2, pour l'une des séries de topographies, seul l'un des sous-grains diffracte. La technique de topographie X permet alors d'étudier en détail les dendrites qui constituent la frontière entre les sous-grains et les désorientations associées au sous-joint [109]. Nous avons choisi de déterminer les limites angulaires et spatiales d'un sous-joint en décidant que le sous-joint commence à partir du moment où il reste seulement quelques dendrites loin du sous-joint qui diffractent. La plage angulaire du sous-joint se termine au moment où quelques dendrites de l'autre sous-grain, loin du sous-joint, apparaissent. On mesure ainsi, comme désorientation associée au sous-joint, l'écart angulaire minimum pour passer d'un sous-grain à l'autre. Sur la section, les limites spatiales du sous-joint sont déterminées par les dendrites diffractant dans la plage angulaire du sous-joint.

Le sous-joint de la branche 2, visualisé sur la topographie polychromatique, possède une épaisseur variant d'un bord à l'autre de la section alors que la valeur de la désorientation associée ne change pas. D'un côté, le sous-joint s'étend sur six dendrites, tandis que de l'autre, des dendrites très désorientées les unes par rapport aux autres se côtoient. C'est dans ce cas que des dendrites voisines peuvent avoir une désorientation atteignant 1° . Le sous-joint de la branche 1 a un comportement différent : son épaisseur est constante et correspond à six à sept dendrites. Dans ce sous-joint, pratiquement toutes les dendrites diffractent pour une orientation donnée. Le profil de diffraction gamma autour de $[100]$ de la figure V-7 confirme ce fait, puisque l'on observe un petit pic placé entre les deux pics des sous-grains. Ce petit pic doit provenir du sous-joint qui, en l'occurrence, ressemble à un petit sous-grain placé entre les deux sous-grains principaux. Les désorientations associées à chaque sous-joint sont mesurées par la rotation autour des axes $\langle 110 \rangle$. Chacune est une combinaison des désorientations obtenues par diffraction gamma autour des axes $\langle 100 \rangle$. Pour chaque axe de rotation $\langle 110 \rangle$, la désorientation du sous-joint de la branche 1, celui dont l'épaisseur est constante, est voisine de $0,5^\circ$. Pour le sous-joint de la branche 2, visualisé sur la topographie III-17, la valeur des désorientations est plutôt de 1° .

c. Mise en évidence par métallographie

Les sous-joints observés par topographie X correspondent aux lignes d'apparition de dendrites observées en métallographie (cf § IV.1.3.c). Notons que les valeurs des désorientations au niveau des sous-joints, estimées à partir des observations métallographiques, sont en bon accord avec celles obtenues par topographie monochromatique.

V.1.4. Mosaïcité interne aux sous-grains

Outre l'existence de défauts de qualité cristalline correspondant à la présence de sous-joints de grains, des désorientations internes aux sous-grains affectent la qualité cristalline des pièces. L'étude a porté principalement sur les sections analysées en topographie X, c'est-à-dire sur les sections déjà présentées des branches 1 et 2 de l'éprouvette à deux branches.

Sur les profils de diffraction gamma des figures V-5 et V-7, on peut voir que chaque pic, correspondant à chaque sous-grain, s'étale sur une certaine largeur angulaire. Le maximum du pic correspond simplement au fait qu'on trouve pour cette orientation un plus grand nombre de dendrites du sous-grain qui diffractent. La correspondance entre profil de

diffraction et topographie X a été illustrée par Flack et al.⁷ [4] (figure V-10). On observe que, sur toute la largeur angulaire du pic, des dendrites différentes diffractent. Ceci montre qu'il existe à l'intérieur du grain des variations angulaires reliées au réseau de dendrites. Le grain possède donc une mosaïcité interne, chiffrée par la largeur angulaire du pic de diffraction. La cartographie des désorientations internes à chaque sous-grain s'avère alors particulièrement intéressante et apporte des informations importantes pour comprendre le mécanisme d'évolution de la qualité cristalline.

Dans les deux sections étudiées, les sous-grains présentent le même type de désorientations. Trois des quatre sous-grains ont pu être analysés, puisque la diffraction d'un de ceux-ci n'a pas été photographiée (cf § V.1.3.b.). La figure V-8a présente une série de topographie d'un sous-grain de la branche 2 réalisée pour les plans diffractant (113) en faisant varier l'angle Φ autour de l'axe $[\bar{1}10]$. On observe un déplacement de la zone diffractante d'un bord du sous-grain à l'autre, essentiellement suivant la largeur de la section. Un tel déplacement a été observé pour tous les sous-grains étudiés, ceci pour les deux axes de rotation $\langle 110 \rangle$. La diffraction d'un sous-grain s'étend sur environ 1° pour chaque axe de rotation. Ce déplacement de la zone diffractante correspond à une courbure continue du réseau cristallin, et donc de l'ensemble des dendrites. Le sens des rotations indique que la courbure équivaut à une divergence du réseau dendritique à partir du bas de la pièce, donc à partir des premières régions solidifiées.

La topographie des sous-grains montre que les dendrites d'orientation identique forment des groupes plutôt que des alignements, et ce, sur des sections où la périodicité métallographique de la structure a disparu. Une cartographie plus précise de l'orientation des dendrites dans l'un des sous-grains de la branche 2 (celui montré sur la figure V-8) a été réalisée en comparant les topographies faites avec les deux plans d'incidence perpendiculaires (110) et $(\bar{1}\bar{1}0)$, respectivement pour les plans diffractants $(\bar{1}13)$ et (113). Les grands groupes de dendrites d'orientation identique apparente sur chacune des séries de topographies, se divisent en groupes plus petits, d'une taille inférieure ou égale à 13 dendrites, ayant une orientation cristallographique identique vraie, à la valeur du pas de rotation près. Ces groupes semblent être distribués au hasard dans tout le sous-grain. Ce type de rassemblement, de la taille de quelques dendrites, ressemble à ce qui a déjà été décrit dans la littérature par Giamei et Agapova et al. (cf § II.2.3.).

⁷ Dans le cas de l'étude de Flack et al., le profil de diffraction a été réalisé avec une source de rayonnement X classique. Cette même source a servi à faire des topographies par la technique Berg-Barrett.

On a cherché à trouver une relation entre les caractéristiques géométriques du réseau dendritique et les désorientations cristallographiques. Pour cela, la mosaïcité entre deux dendrites a été évaluée par une approximation du premier ordre de la distance angulaire p entre l'orientation de leurs plans (001). Cette distance angulaire est égale à la désorientation des plans {113} autour des axes $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ mesurée à partir des topographies. En appelant $\Delta\alpha$ la distance angulaire entre deux dendrites pour la rotation autour de l'axe $[\bar{1}\bar{1}0]$ et $\Delta\beta$ celle pour la rotation autour de $[\bar{1}10]$, la mosaïcité entre deux dendrites est estimée par l'expression V-1 :

$$p = \sqrt{\Delta\alpha^2 + \Delta\beta^2} \quad (V-1)$$

Cette évaluation tient compte de l'observation expérimentale indiquant que la rotation autour de [001] est négligeable. L'approximation au premier ordre est significative dans la mesure où les désorientations rencontrées dans le sous-grain sont faibles, ce qui est vérifié puisqu'elles n'excèdent pas 1° .

En employant cette quantité p , évaluée pour chaque paire de premiers voisins, une corrélation entre la mosaïcité et la distance entre axes dendritiques a été recherchée. Un coefficient de corrélation faible, égal à 0,08, a été trouvé ; il indique un manque de corrélation entre distance et désorientation. Sur la figure V-11, on a porté la valeur moyenne de p en fonction de la direction des paires de premiers voisins dans le plan de la section. On observe alors des variations qui sont reliées à l'arrangement dendritique. Même si l'accord n'est pas parfait, la désorientation entre paires de premiers voisins est plus faible dans les directions cubiques et, dans une moindre mesure, dans les directions hexagonales déjà relevées comme étant les directions de plus grands nombres de paires de premiers voisins (figure IV-8).

V.1.5. Evolution des sous-grains

a. *Présence des sous-grains dès la zone de division*

L'étude en diffraction gamma de l'éprouvette à deux branches ainsi que de toutes les éprouvettes à quatre branches indique que, chaque fois que des sous-grains existent dans les branches, ces sous-grains sont également observés dans la zone de séparation, au début des pièces. Il n'a pas été observé de création de sous-joints durant la croissance dans les branches.

b. Augmentation de la désorientation avec la distance

L'évolution des sous-grains a été suivie sur l'éprouvette à deux branches en comparant les profils de diffraction γ à différentes hauteurs dans la zone de séparation et dans les branches à section constante. La figure V-12 présente les profils de diffraction obtenus pour la branche 2 de l'éprouvette étudiée jusqu'à présent, pour un axe de rotation parallèle à l'axe cristallographique [100]. Cet axe est l'axe de désorientation principale des deux sous-grains. La figure V-12 met clairement en évidence une augmentation de l'écart entre maxima lorsque la distance à la sortie du sélecteur augmente. L'écart angulaire passe de $0,65^\circ$ dans la zone de division à $2,85^\circ$ vers le haut de la branche. Une autre éprouvette, de forme semblable a également été analysée en diffraction γ . L'une de ses branches présente trois sous-grains, l'autre présente de façon similaire un sous-joint de grain et une désorientation entre sous-grains existant principalement autour d'un axe de rotation [100], comme le montre la figure V-13 ([100] et [010]). On constate que les sous-grains ont un comportement identique, l'écart entre maxima passant de $0,65^\circ$ à la sortie de sélecteur à $2,45^\circ$ vers le haut de la branche.

En résumé, les observations réalisées montrent qu'au fur et à mesure de l'avancée de la solidification, les écarts entre sous-grains augmentent. Partant d'une désorientation initiale inférieure au degré, on obtient, au bout de 11 cm, des désorientations de l'ordre de $2,5^\circ$ à 3° .

c. Augmentation de la mosaïcité avec la distance

Outre l'augmentation de l'écart entre maxima correspondant aux sous-grains, les figures V-12 et V-13 montrent la dégradation de la qualité cristalline avec la distance, qui se traduit par une augmentation de la mosaïcité à l'intérieur de chaque sous-grain. Cette augmentation de la mosaïcité correspond à l'augmentation de la largeur à mi-hauteur des pics, tant pour la rotation autour de [100] (figures V-12 et V-13a) que pour la rotation autour de [010] (figure V-13b). L'étude en topographie X de sections transversales dans la branche 2 avait montré que le réseau dendritique était un réseau divergent. On assiste donc à une augmentation de cette divergence avec l'accroissement de la distance à partir de la sortie du sélecteur.

V.1.6. Conclusion

L'étude cristallographique, réalisée principalement sur l'éprouvette à deux branches, a permis de mettre en évidence différents types de désorientations. On a vu que des sous-

joints de grains existent dans les branches, qui coupent la section parallèlement à sa largeur. A l'intérieur des sous-grains on a montré la présence d'une courbure du réseau cristallin, divergente par rapport au bas de la pièce. Dans ce réseau cristallin courbé, chaque dendrite apparaît comme une entité cristalline, plus ou moins désorientée par rapport à ses voisines. La composante de la mosaïcité autour de [001] est toujours faible par rapport aux autres composantes. Les dendrites se rassemblent en groupes d'une taille maximum d'une dizaine de dendrites. Une relation entre cristallographie et arrangement dendritique a alors pu être trouvée.

L'évolution des sous-grains avec la distance au début de la pièce a été suivie. On a pu constater que les sous-grains étaient présents dès la zone de séparation (ce qui est également vrai pour les éprouvettes à quatre branches). Quand la distance au sélecteur augmente la désorientation entre les sous-grains augmente en même temps que la mosaïcité interne à chaque sous-grain.

L'évolution de la qualité cristalline avec la distance, déjà remarquée dans le cas de barreaux cylindriques (cf § II.2.3.a.2.), et plus particulièrement l'augmentation de l'écart entre sous-grains, représente une limitation sévère à la fabrication de pièces de bonne qualité cristalline. A cause de cette dégradation, l'existence de sous-joints de grains au début de la pièce doit être évité, même s'ils sont de très faible désorientation. Comme la présence des sous-grains est attestée dans cette étude dès la zone de séparation, on a pu supposer que leur apparition est liée à la qualité cristalline des débuts de pièces, et en particulier à celle des sélecteurs. L'étude d'une zone de séparation d'une éprouvette à deux branches, confrontée aux observations sur barreaux cylindriques présentées dans la littérature, va nous permettre de comprendre le mécanisme de formation des sous-grains.

V.2. Qualité cristalline des débuts de pièces

V.2.1. Les sélecteurs

L'étude en diffraction gamma de la partie supérieure des quatre sélecteurs disponibles, notés 1 à 4, juste avant le début de la pièce proprement dite, montre des caractéristiques similaires pour tous les sélecteurs. Nous rappelons que ceux-ci sont destinés à favoriser la croissance d'une dendrite dont la direction secondaire [010] est proche de la direction d'un rayon du four. En pratique, l'orientation obtenue est à $\pm 10^\circ$ de celle du rayon. Pour tous les sélecteurs, le profil de diffraction obtenu autour de l'axe [010] témoigne d'une

meilleure qualité cristalline que celui enregistré autour de l'axe [100], comme le montre la figure V-14.

Autour de l'axe [010], les profils de diffraction présentent un seul pic, de largeur à mi-hauteur identique : $0,3^\circ$ ou $0,35^\circ$. L'étendue angulaire totale sur laquelle le sélecteur diffracte est comprise entre $1,1^\circ$ et $0,7^\circ$. Par contre, autour de l'axe [100], plusieurs pics peuvent être visibles, dont l'écart angulaire maximal varie suivant l'éprouvette entre $0,25^\circ$ et $0,85^\circ$; l'étendue angulaire totale varie, elle, $1,45^\circ$ et $1,05^\circ$.

L'un des sélecteurs, celui de l'éprouvette notée 5 dans la suite, destiné initialement à favoriser des dendrites avec des directions secondaires situées à 45° par rapport au rayon du four, a, en fait, sélectionné des dendrites dont la direction [010] est plus proche, à 15° près, de la direction du rayon du four. Les profils de diffraction obtenus pour ce sélecteur sont montrés sur la figure V-15. Ils sont semblables à ceux obtenus pour les fins de sélecteurs précédentes.

V.2.2. La zone de séparation

Une demi-section transversale prise dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches révèle en topographie X des phénomènes en relation directe avec la formation des structures de solidification. La figure V-16 présente deux topographies séparées de $+ 0,5^\circ$ ($30'$) prises pour deux axes de rotation perpendiculaires entre eux⁸. Autour de l'axe $[\bar{1}10]$, la première topographie montre la diffraction d'un secteur qui occupe environ un quart d'ellipse et dans laquelle pratiquement toutes les dendrites ont la même orientation. Après une rotation de $0,5^\circ$, seuls quelques alignements diffractent, qui vont du centre de la section complète vers le bord, suivant une direction [010]. Autour de l'autre axe, une zone englobant le même secteur, et dans laquelle la quasi-totalité des dendrites diffractent, est visible sur la première topographie. L'autre topographie, prise après une rotation de $0,5^\circ$, montre la diffraction d'un autre secteur de la demi-section. En outre, on peut voir la diffraction de quelques dendrites plus ou moins dispersées au centre de la section entière, dans une région qui se trouve au-dessus de la sortie du sélecteur. Cette région correspond à la région A qui avait déjà été repérée en métallographie optique (figure IV-2). Cette région apparaît comme étant une zone d'une moins bonne qualité cristalline que celle des secteurs.

⁸ Il faut se rappeler que choisir deux axes de rotation perpendiculaires entre eux permet d'accéder aux désorientations dans l'espace ; en effet la troisième composante de la mosaïcité serait une rotation autour de [001]. On l'a vu précédemment, cette composante est faible, voire négligeable.

L'étude en diffraction X montre que les alignements visibles par attaque métallographique (cf § IV.1.1.) constituent des entités cristallographiques. On voit en effet sur la figure V-16 que toutes les dendrites d'un même alignement diffractent pour le même angle de rotation. Ceci est valable pour les deux axes de rotation. De la même façon, les courts alignements visibles sur le bord d'une section d'une branche de l'éprouvette (cf § IV.1.1.c.) sont également visibles en topographie (figure V-8). Compte tenu du mode de formation de ces alignements, on peut en conclure que le mécanisme de multiplication des dendrites par branchements successifs n'est pas, en soi, source de création de défauts de qualité cristalline. Par ce mécanisme, les nouvelles dendrites créées par le développement des axes tertiaires ont exactement la même orientation cristalline que celle de la dendrite dont elles sont issues.

Les topographies montrent l'existence de sous-grains (ou secteurs) de part et d'autre de la région centrale. Dans chacun de ces secteurs, les dendrites diffractent toutes pour le même angle dans le cas des deux axes de rotation. Elles ont donc une orientation cristalline dans l'espace identique, et les secteurs sont des zones de bonne qualité cristalline intrinsèque. Entre ces sous-grains, on observe la présence d'une zone "perturbée" d'alignements d'orientations cristallographiques diverses. La disposition de ces secteurs rappelle fortement des observations réalisées précédemment sur barreaux cylindriques (cf § II.2.3.) [28,73,80].

V.2.3. Discussion : hypothèse de formation des secteurs

La comparaison des observations métallographiques et cristallographiques réalisées dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches permet d'imaginer le mode de formation des sous-joints de grains et des désorientations à l'échelle de la pièce. Les observations effectuées suggèrent que chaque secteur, ainsi que chaque alignement de la zone perturbée a été formé à partir d'une dendrite particulière située sur le pourtour du sélecteur. Cette dendrite s'est ensuite progressivement étendue par branchements successifs de telle sorte que des secteurs et des alignements apparaissent. Les études réalisées sur des barreaux cylindriques montrent également des secteurs, de bonne qualité cristalline intrinsèque [28,73,74]. Klam et Blank, Agapova et al. font également mention de la présence d'une région désorientée, de moins bonne qualité cristalline, au centre de la section des barreaux. Cette zone ressemble à la région notée A dans notre étude. Les secteurs observés durant la présente étude doivent avoir la même origine que ceux présentés par les différents auteurs. Enfin la zone perturbée d'alignements séparant les

secteurs doit pouvoir être rapprochée de ce qui a été observé à la limite des secteurs par Agapova et al.

Les conditions locales de croissance déterminent l'extension latérale de la dendrite initiatrice par branchements successifs (cf § VI.1.1.b.). L'étendue et la forme des secteurs sont déterminées par les gradients thermiques latéraux, c'est-à-dire par la forme et la position de la pièce dans le four, par les gradients thermiques radiaux dans le four, ainsi que par l'orientation des axes secondaires des dendrites par rapport aux limites de la pièce. Sur la figure V-17, on a représenté de façon schématique les quatre secteurs et les zones perturbées qui doivent se former dans la zone de séparation des éprouvettes à deux branches. La forme des éprouvettes fait que les secteurs a et b d'une part, c et d d'autre part, croissent parallèlement dans la zone de séparation. Chacun des sous-grains visibles dans les branches de la pièce correspond à l'un des secteurs qui ont pu se propager dans l'ensemble de la pièce.

Les désorientations entre secteurs sont déterminées tout d'abord par les désorientations entre les dendrites initiatrices, situées sur le pourtour du sélecteur, puisque l'extension des dendrites ne modifie pas l'orientation cristallographique. Les désorientations entre axes dendritiques en sortie de sélecteur sont donc à l'origine des défauts de qualité cristalline observés dans la zone de séparation. L'étendue angulaire totale des profils de diffraction dans le sélecteur indique alors les désorientations maximales possibles entre secteurs.

On montre ainsi que les études de topographie X réalisée dans la zone de séparation présentent des résultats qui concordent avec ceux de la littérature. Une hypothèse de formation des secteurs a été avancée : chacun des secteurs est issu d'une dendrite située sur le pourtour de la sortie de sélecteur. L'extension latérale de ces secteurs dépend des conditions thermiques. La désorientation initiale entre secteurs est déterminée par la qualité cristalline du sélecteur. Cette dernière est caractéristique : les désorientations sont plus faibles autour de l'axe [010] qu'autour de l'axe [100].

V.3. Effet de la forme des pièces

V.3.1. Eprouvettes à 4 branches

a. Désorientations à l'échelle macroscopique

Les éprouvettes à quatre branches, à zone de séparation abrupte, présentent de grandes différences d'orientation entre les branches, beaucoup plus importantes que dans le cas de l'éprouvette à deux branches. Il a été observé que l'axe de désorientation maximale entre deux branches est perpendiculaire à la zone de séparation dont sont issues les branches, et que l'écart angulaire qui correspond à la désorientation maximale est plus grand entre branches tangentielles qu'entre branches radiales. Sa valeur varie de $3,7^\circ$ à $10,7^\circ$ pour les branches tangentielles, et de $0,9^\circ$ à $1,6^\circ$ pour les branches radiales. Cet écart correspond à des branches dont l'orientation diverge dans la direction de croissance, ainsi que le montre la figure V-18. Dans le cas de l'éprouvette 5, qui a un sélecteur positionné de façon particulière dans le four, on obtient le même type de résultats, montrés figure V-19, avec des désorientations maximales entre branches beaucoup plus importantes : entre branches tangentielles on trouve un écart angulaire de 13° tandis que pour les branches radiales, cet écart vaut 6° . Les branches ont toujours des orientations divergentes par rapport au début de la pièce.

Ce résultat est différent de ceux obtenus sur les éprouvettes à deux branches : d'une part parce que, dans ces dernières les désorientations entre branches sont plus faibles, d'autre part celles-ci correspondent à des orientations de branches légèrement convergentes par rapport au début de la pièce. Cependant, même dans le cas des éprouvettes à deux branches, les différences d'orientation entre branches sont déterminées dans la zone de séparation. Aussi, la différence de forme des zones de séparation doit-elle expliquer cette différence de comportement entre éprouvettes à deux branches et éprouvettes à quatre branches. Une explication de cette différence de comportement sera proposée dans le chapitre VI.

b. Mosaïcité interne aux branches

Celle-ci est représentée approximativement sur les portions de projections stéréographiques des figures V-18 et V-19 par la surface du rectangle (ou des rectangles dans le cas de la présence de deux pics bien séparés) associé à chaque branche.

La plupart des profils de diffraction γ réalisés sur les branches présentent un pic très large, à plusieurs maxima, pouvant s'étaler sur plusieurs degrés. Le long des branches, il

n'a pas été observé d'augmentation de l'écart angulaire entre sous-grains avec la distance au sélecteur, mais on a constaté, comme pour les éprouvettes à deux branches, un accroissement de la mosaïcité de chacun des sous-grains. On a pu noter aussi que la mosaïcité des branches tangentielles est plus grande que celle des branches radiales, les quelques branches ne présentant qu'un seul sous-grain de relativement bonne qualité cristalline étant toutes des branches radiales.

La faible évolution de la qualité cristalline dans les branches en fonction de la distance peut être due au fait que les branches sont plus courtes que dans le cas des éprouvettes à deux branches et/ou à ce que leur surface transversale est plus petite. On peut envisager que dans les branches plus courtes, la dégradation de la qualité cristalline n'aurait pas eu le loisir d'apparaître de façon significative. L'hypothèse présentée dans le chapitre VI pour expliquer l'origine des désorientations dans les monograins, permet de prévoir, de façon qualitative, que la surface de la section soit un des paramètres déterminant l'amplitude des désorientations.

V.3.2. Eprouvettes à quatre branches - sélection à 45°

Quelques éprouvettes à quatre branches ont été réalisées à partir d'un sélecteur sélectionnant des orientations cristallographiques situées à 45° environ de la direction du rayon du four. Leur positionnement dans le four, ainsi que les conditions de fabrication (réalisation de grappes de quatre éprouvettes, conditions thermiques de tirage) est identique à ceux des premières éprouvettes à quatre branches. L'étude en diffraction gamma de l'une de ces éprouvettes a été réalisée pour compléter les résultats obtenus sur les éprouvettes précédentes.

Le sélecteur de cette éprouvette présente des caractéristiques similaires à celle des autres éprouvettes : en particulier, la qualité cristalline est meilleure pour l'une des rotations autour d'un axe $\langle 100 \rangle$, celui qui est noté [010], que pour l'autre, comme le montre la figure V-20. Les désorientations trouvées sont également du même ordre de grandeur que celles des sélecteurs sélectionnant des orientations proches du rayon du four.

Les désorientations entre les quatre branches sont présentées sur la portion de projection stéréographique de la figure V-21. On s'aperçoit que, même si la mosaïcité interne des branches est de l'ordre de grandeur des mosaïcités trouvées dans les branches des autres éprouvettes, les désorientations entre les branches sont, elles, beaucoup plus faibles. Ces désorientations sont déterminées à partir des zones de division mais augmentent au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la sortie de sélecteur. Dans ce cas, on ne peut cependant pas

parler d'orientations cristallines de branches qui divergent ou qui convergent, comme le montre la figure V-21.

On a pu constater que certaines de ces éprouvettes, plus précisément deux éprouvettes sur une grappe de quatre, présentent des grains parasites, repérables visuellement par une forte différence de réflectivité du métal après attaque métallographique macroscopique. Les éprouvettes présentant de tels grains parasites n'ont pas été étudiées en diffraction gamma. Les grains parasites sont initiés dans les zones de séparation, en début de pièce, ou à la sortie du sélecteur, juste avant la zone de séparation. Dans les conditions industrielles de coulée, les éprouvettes dont les dendrites ont une direction cubique proche de celle du rayon du four ne présentent pas de tels grains parasites, alors que la forme de la pièce, sa position dans le four et donc la thermique, sont identiques à l'échelle macroscopique.

Compte tenu de ce fait, on peut penser que l'existence des grains parasites provient d'une solidification qui se passe de manière légèrement différente. Lorsque le sélecteur sélectionne à 45° , les axes dendritiques sont a priori plus mal orientés par rapport au gradient thermique latéral induit par la forme de la section transversale de la zone de séparation et par le four. Ils sont donc plus mal orientés par rapport à la direction macroscopique de solidification. A vitesse d'avancée des isothermes imposée par les échanges thermiques macroscopiques, la vitesse de croissance des dendrites doit alors être plus grande ; la surfusion à la pointe des dendrites doit être par conséquent plus importante (cf § II.1.1.) que pour les axes sélectionnés parallèlement au rayon du four. L'existence de grains parasites laisse ainsi supposer que la plus grande surfusion à la pointe des dendrites doit être du même ordre de grandeur, voire légèrement supérieure, à la surfusion de germination hétérogène des grains parasites.

V.3.3. Conclusion

Pour toutes les éprouvettes, on a pu montrer que la composante de la mosaïcité autour de [001] est faible. On a remarqué également que la mosaïcité des sorties de sélecteur est faible autour de l'axe [010] et plus importante autour de l'axe [100].

Le tableau V-2 résume les observations réalisées, c'est-à-dire les différences et les points communs observés en ce qui concerne la qualité cristalline pour les différentes formes de pièces.

L'existence de grains parasites dans les éprouvettes à sélection à 45° est clairement attribuée au fait que les axes dendritiques sont fortement désorientés par rapport aux bords transversaux de la pièce. Apparemment, l'augmentation observée de l'écart angulaire

des orientations cristallographiques des branches paraît aussi être une conséquence de la sélection à 45°.

L'importance des écarts angulaires des orientations cristallographiques des branches et leur sens seront discutés dans le chapitre suivant, à l'aide d'une hypothèse avancée dans le paragraphe VI.4. Dans tous les cas, on a constaté une augmentation de la mosaïcité interne des sous-grains et, quand les branches sont plus longues et/ou leur section plus grande, on a pu noter une augmentation de l'écart entre sous-grains avec la distance au sélecteur. On tentera aussi d'expliquer ce phénomène dans le chapitre suivant.

Eprouvette à 2 branches	Eprouvette à 4 branches - sélection radiale	Eprouvette à 4 branches - sélection à 45°
écart entre branches faible, orientations convergentes	écart entre branches important, orientations des branches divergentes	écart entre branches faible
pas d'augmentation de l'écart entre branches	pas d'augmentation de l'écart entre branches	augmentation de l'écart entre branches
augmentation de l'écart entre sous-grains dans les branches	pas d'augmentation de l'écart entre sous-grains dans les branches	*
augmentation de la mosaïcité interne des sous-grains	augmentation de la mosaïcité interne des sous-grains	*
pas de grains parasites	pas de grains parasites	existence de grains parasites (2 éprouvettes sur 4)

* L'analyse n'a pas été possible.

Tableau V-2 : comparaison de la qualité cristalline et de son évolution avec la distance au sélecteur dans les différentes éprouvettes.

Chapitre VI

DISCUSSION DES RESULTATS

VI.1. Préambule

On a supposé pour cette étude pouvoir décrire l'origine des défauts sur des pièces brutes de solidification. Les diverses observations et modélisations reportées dans ce chapitre montrent que les défauts peuvent apparaître à haute température, dans le domaine de la solidification et celui de la précipitation. A plus basse température, les défauts de qualité cristalline sont figés. En effet, on montrera dans le paragraphe VI.4. que les désorientations sont créées autour du domaine de précipitation. D'autre part, l'arrangement dendritique, qui détermine entre autres les limites de secteurs, se forme à la solidification. Le fait que les défauts apparaissent à haute température et sont figés à plus basse température permet alors d'assimiler les observations sur sections transversales, perpendiculaires à la direction de croissance, à des instantanés pris au cours de la croissance du solide dans la pièce.

VI.2. Evolution des structures

Nous discutons ici de l'évolution des structures au cours de leur croissance depuis la sortie de sélecteur jusqu'en haut des pièces, tant du point de vue métallurgique que du point de vue cristallographique. Pour cela, un grand nombre de dendrites ont été analysées à l'aide de techniques variées dans le cas de l'éprouvette à deux branches. Une analyse métallurgique sera d'abord réalisée. A une échelle fine, de l'ordre de quelques dendrites, un couplage entre la métallographie et la cristallographie permet de suivre l'évolution cristalline des dendrites.

Au chapitre IV, on a pu constater une diminution importante de la densité d'axes moyenne dans la zone de séparation. Cette diminution, qui s'effectue sur une distance inférieure à l'épaisseur de la zone pâteuse, montre qu'il se produit une adaptation rapide du réseau dendritique aux conditions thermiques de croissance (cf § IV.1.2.a.). Dans cette zone, la vitesse d'avancée du front de solidification V et le gradient thermique longitudinal G peuvent varier. Compte tenu de la relation liant la densité d'axes primaires à G et V , la variation de la densité d'axes est moins sensible à une variation du paramètre V qu'elle ne l'est à une variation de G .

Par ailleurs, on a constaté que dans les branches, la composition chimique des centres de dendrites est remarquablement homogène. Cependant, les modèles reliant la sursaturation aux conditions de croissance montrent que, dans le domaine de conditions de croissance considéré, l'effet du gradient thermique est négligeable. En outre, l'effet de la vitesse n'est pas observable car la précision de la mesure des sursaturations est faible. Les observations

effectuées ne peuvent donc pas révéler les variations éventuelles de la vitesse d'avancée du front de solidification. L'effet du gradient n'est visible que dans les variations de densité d'axes, il est éventuellement couplé à celui de la vitesse.

A l'échelle de quelques dendrites on note l'existence d'une distribution des distances entre axes primaires autour d'un espacement primaire moyen. Quested et McLean [48] ont montré que cette valeur moyenne correspondait à celle donnée par la théorie (cf § IV.1.3.b.1. et § II.2.1.b.).

Alors que l'on constate le long des branches une dégradation de la qualité cristalline, les études par superposition de calques (cf § IV.1.3.a.) montrent que le réseau d'axes dendritiques évolue peu : les apparitions et les disparitions d'axes sont rares. De plus les dendrites provenant des branchements successifs conservent l'orientation cristallographique des dendrites initiales : elles ne peuvent donc pas être responsables de la dégradation de la qualité cristalline. Ainsi, la comparaison de l'évolution de la mosaïcité et de la microstructure dendritique indique que chaque dendrite, durant sa croissance, modifie sa direction de croissance par rapport à la pièce. Dans le même temps, puisque la croissance de la dendrite est étroitement liée à la cristallographie, le réseau cristallin sous-jacent à la dendrite voit son orientation par rapport à la pièce changer : en d'autres mots, il est soumis à des efforts de torsion. La composante de la mosaïcité autour de [001] étant faible, on peut dire que ces torsions ne correspondent pas à des rotations des troncs primaires autour d'eux-mêmes, mais plutôt à des flexions de ceux-ci.

Ni Quested et McLean [48], ni Lacaze [61] n'ont expliqué la distribution des distances autour d'un espacement primaire moyen. On pourrait penser à l'effet de variations locales du gradient thermique, ou de la composition chimique, mais la cause dominante doit être ce phénomène de flexion des dendrites. Les modifications du réseau induites par ces flexions seraient responsables des apparitions et des disparitions observées quand la distance entre axes sort de la plage d'espacements permise.

Du point de vue métallographique, la zone de séparation présente des alignements, à l'exception de la région située au-dessus de la sortie de sélecteur. Du point de vue cristallographique, on retrouve dans cette zone de séparation les alignements ainsi que des secteurs de bonne qualité cristalline intrinsèque.

Dans les branches, les alignements métallographiques ont disparus et on observe cristallographiquement des groupements d'une dizaine de dendrites au maximum (cf § V.1.4.). On a pu cependant mettre en évidence une relation entre la direction des bras secondaires et la désorientation entre premiers voisins.

Les groupements de dendrites n'existent apparemment pas dans la zone de séparation et l'on pense qu'ils sont apparus dans les branches au détriment des alignements. La plus faible désorientation entre premiers voisins et le plus grand nombre de ceux-ci dans la direction des bras secondaires pourraient être dus aux alignements préexistants, plus bas dans la pièce, et répartis initialement en moyenne dans l'une ou l'autre des directions cubiques. On peut noter qu'une part de cette faible désorientation dans les directions secondaires provient également des alignements créés dans les branches du fait de la différence d'orientation entre bord de la pièce et direction [001] de croissance des dendrites. Cependant ces alignements n'existent que dans la direction [010] et n'expliquent donc pas entièrement la faible désorientation dans les deux directions cubiques. Ce passage des alignements aux groupements de dendrites correspond aux flexions des dendrites.

Dans l'étude de Bastie et al. [80] sur la croissance de barreaux cylindriques, les résultats de topographie aux neutrons montrent que l'échelle des désorientations peut varier avec les conditions de croissance. De plus, les résultats de Bastie et al. portant sur l'effet des conditions de croissance devraient être confirmés sur des échantillons réalisés à partir de sélecteurs et non pas de germes dont la qualité initiale n'est pas contrôlée. La taille des groupes et les désorientations entre groupes dépendent fortement du gradient thermique longitudinal. Dans notre cas, la désorientations entre groupes adjacents est d'environ 15° pour une courbure totale des sous-grains d'environ 1°. Le regroupement des dendrites, à partir d'alignements initiaux, doit répondre à une adaptation des structures de solidification à des contraintes mécaniques qui dépendent apparemment du gradient thermique longitudinal.

VI.3. Formation des secteurs

L'étude des éprouvettes à deux branches a montré la présence de sous-grains dans les branches des pièces. La direction et la position dans les branches des sous-joints suggèrent que ces sous-grains proviennent de secteurs existant dans la zone de séparation (cf § V.2.3.). A partir des observations réalisées on estime que les secteurs présents dans la zone de séparation sont initiés par des dendrites situées sur le pourtour de la sortie de sélecteur. Ces dendrites ont donné naissance chacune à l'un des secteurs par multiplication par branchements successifs. On a pu montrer que les secteurs sont des entités cristallines, ce qui indique que la qualité cristalline de la dendrite initiale est conservée quand celle-ci se multiplie.

La forme des secteurs dépend de la compétition de croissance entre axes dendritiques. Dans le cas de la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches, cette compétition de croissance se réduit à une compétition latérale, perpendiculaire à la direction [001]. D'après le paragraphe II.2.1.c., les directions cubiques de croissance favorisées sont celles qui sont les mieux alignées avec la direction du gradient thermique local. A l'échelle de courtes distances, le gradient latéral donné par la thermique de la pièce est l'effet le plus important, selon l'hypothèse de "distance minimale" (cf § IV.1.1.b.3.). La forme des secteurs dépend donc de l'orientation des directions cubiques par rapport aux bords de la pièce. A cet effet thermique dû à la pièce peut s'ajouter un effet du gradient thermique radial existant entre le centre du four et l'extérieur. On suppose que l'effet de ce gradient radial est secondaire quand les distances sur lesquelles a lieu la compétition de croissance sont courtes.

Dans le cas de l'éprouvette à deux branches, la section transversale est elliptique et les secteurs ont la forme de quart d'ellipse, les limites étant les directions cubiques voisines des grands axes (figure V-17). Un certain nombre d'entités cristallographiques apparaissent le long de la direction [010] : ces entités sont chacune réduites à un alignement et forment la "zone perturbée". Agapova et al. [73] montrent des secteurs similaires sur un barreau cylindrique, limités également par les directions [010] et [100]. A l'opposé, Bellet [74] présentent des secteurs limités par des rayons de direction $\langle 110 \rangle$. Il serait particulièrement intéressant, pour les conséquences pratiques que cela a, de réaliser des essais mieux contrôlés pour comprendre cette différence.

L'évolution des secteurs en sous-grains va dépendre de l'orientation de la pièce par rapport aux limites de secteurs. Dans le cas de l'éprouvette à deux branches de cette étude, chacun des secteurs donne un sous-grain dans les branches puisque la limite entre secteurs peut se propager dans les branches. On peut imaginer un cas de figure, présenté par le schéma VI-1 dans lequel il n'existe pas de sous-grain interne aux branches, car les limites de secteurs sont géométriquement bloquées dans la zone de séparation. Dans ce cas, les branches sont potentiellement désorientées les unes par rapport aux autres, mais il n'existe pas de sous-joint interne. L'idéal serait cependant de pouvoir sélectionner l'un des secteurs à partir duquel croîtraient les deux branches.

Le cas des éprouvettes à quatre branches est différent : la forme des pics dans les branches est souvent étalée alors que la désorientation entre branches est grande. Nous pensons, d'après l'hypothèse qui va être développée dans le paragraphe VI.4, que cette situation provient d'un phénomène thermomécanique, qui a lieu dans la zone de séparation et qui masque la formation des secteurs. La différence principale de comportement entre les

éprouvettes à deux branches et les éprouvettes à quatre branches serait dû à la forme ménagée ou abrupte de la zone de division. Dans le cas des changements de section abruptes (zones de séparation et couronne des éprouvettes à quatre branches) il semble que le gradient radial joue un rôle dans la compétition de croissance. On peut noter que dans la zone de séparation de l'éprouvettes à quatre branches, la compétition existe pour les trois directions cubiques : les secteurs doivent donc être limités non seulement dans le plan de la section transversale mais aussi en hauteur.

VI.4. Origine des désorientations

Une fois que les secteurs se sont propagés dans les branches, il reste à expliquer pourquoi la qualité cristalline, initialement très bonne, se dégrade. De la même façon, on peut se demander pourquoi, alors que la sélection a eu lieu dans le sélecteur à partir d'une seule dendrite, la sortie de sélecteur est perturbée. Pour cela l'hypothèse d'un effet thermomécanique a été avancée.

VI.4.1. Hypothèse thermomécanique

Cette hypothèse a été émise pour expliquer l'existence d'une courbure divergente du réseau dendritique et cristallin dans les branches de l'éprouvette à deux branches, ainsi que les désorientations entre branches issues des zones de séparation des éprouvettes à quatre branches. La solidification et le refroidissement ont lieu dans un gradient de température longitudinal : les différentes parties de la pièce sont, à un instant donné, à des températures diverses et subissent donc une contraction thermique différente. On imagine que cette contraction différentielle peut être responsable de la courbure du réseau et des désorientations entre branches.

Pour situer le niveau de contraintes d'origine thermique liées à ce gradient longitudinal, des calculs thermoélastiques ont été effectués dans un barreau cylindrique et pour un matériau isotrope. Cependant les données recueillies dans la littérature et présentées dans l'annexe D montre que l'AM1 est un matériau fortement anisotrope. L'effet de l'anisotropie n'a pas été pris en compte ici ; cependant ses conséquences sur les désorientations obtenues dans les pièces seront discutées.

Les calculs ont été réalisés par Mbarek Boufoussi au LSG2M à l'aide du code SYSWELD, en supposant un champ de température stationnaire, sans perte radiale et avec un gradient de température constant sur toute la hauteur du barreau. La température de 1100°C est prise

comme température de référence pour laquelle les contraintes thermiques sont nulles. Le calcul des contraintes élastiques permet de ne pas prendre en compte l'histoire thermomécanique de celui-ci (c'est-à-dire les déformations plastiques ou le fluage qui peuvent se produire aux températures considérées). Les résultats ne seront alors que qualitatifs. Cependant, en comparant, à température donnée, la valeur des contraintes obtenues avec la limite élastique, nous pourrions dire si des déformations plastiques ont été induites dans le matériau. Seules celles-ci seront visibles sur la pièce brute de solidification.

Diverses données thermomécaniques portant sur l'AM1 ou des alliages proches comme le CMSX2 ont été recueillies ou extrapolées à partir de données de la littérature. Elles sont reportées en annexe D. Il se produit durant la précipitation de la phase γ' une variation importante du coefficient de dilatation linéaire qui augmente très rapidement entre 1250°C et 1275°C pour décroître brutalement au-delà de 1275°C [110]. Les résultats obtenus montre que cette variation brutale du coefficient est à l'origine de contraintes mécaniques importantes dans la zone de précipitation. Les graphiques de la figure VI-2 présentent les isovaleurs des contraintes radiales σ_{rr} , tangentielles $\sigma_{\theta\theta}$, et axiale σ_{zz} sur une portion d'un barreau de 15 cm de long, pour un gradient de 20 K/cm, et de rayon 15 mm. Les températures le long du barreau sont indiquées. Sur la carte de σ_{rr} , on note que, sur la majeure partie du rayon, la zone de précipitation est en traction, tandis qu'en-dessous de 1275°C, on observe une zone en compression. Le passage de la zone en traction à la zone en compression a lieu sur environ 2°C. Le centre du barreau est en compression axiale entre 1250°C et 1290°C, mais en surface existe pour σ_{zz} une zone de compression au-delà de 1275°C et une zone en traction en-deçà.

Un calcul réalisé avec un barreau de 15 cm de long et de rayon 30 mm montre peu de différences dans les résultats. Sans pertes radiales, le rayon ne semble pas avoir d'influence. Cependant, on peut imaginer qu'il existe un déplacement radial plus important sur le pourtour du barreau dans le cas d'un rayon plus grand.

La figure VI-3 présente la contrainte équivalente σ_e en fonction de la température et pour divers rayons et hauteurs de barreaux : on a calculé la contrainte équivalente pour deux barreaux de 15 cm de long, ce qui correspond à un gradient thermique de 20 K/cm et de rayons respectifs 1,5 cm et 3 cm, ainsi que pour un barreau de 7 cm de haut, soumis à un gradient longitudinal de 43 K/cm, et de 1,5 cm de rayon. En supposant les contraintes octaédriques négligeables, σ_e est donnée par la relation :

$$\sigma_e = \frac{1}{\sqrt{2}} \cdot \sqrt{(\sigma_{rr} - \sigma_{zz})^2 + (\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta})^2 + (\sigma_{zz} - \sigma_{\theta\theta})^2} \quad (VI-1)$$

Sur cette figure est aussi portée la limite d'élasticité (annexe D). On peut voir que, à partir de 1235°C, la limite d'élasticité est dépassée, surtout dans le domaine 1267°C-1290°C. Dans ce domaine auront lieu les plus grandes déformations plastiques. On y trouve deux pics, l'un correspondant à la traction radiale (au-dessus de 1275°C) et l'autre à la compression radiale. Le barreau de hauteur 7 cm et de rayon 1,5 cm donne une contrainte équivalente similaire à celle du barreau de 15 cm de haut sur un rayon de 3 cm. Par rapport au barreau de 15 cm de haut sur 1,5 cm de rayon, leurs pics sont d'amplitude égale mais plus étalés. Cette alternance de traction et de compression suivant le rayon induit des désorientations des dendrites divergentes, du bas de la pièce vers le haut.

VI.4.2. Evolution de la qualité cristalline avec la distance au début de la pièce

Le solide qui se crée garde les directions cristallines de croissance du solide déjà existant. Quand se produit la précipitation, il se déforme et ajoute cette déformation à celle du solide existant, qui a déjà précipité. Ce mécanisme explique la dégradation de la qualité cristalline avec la distance.

La dégradation de la qualité cristalline avec la distance explique la plus grande mosaïcité de la zone située au-dessus du sélecteur, par rapport aux secteurs de la zone de séparation des éprouvettes à deux branches. En effet, une fois la sélection de la dendrite adéquate effectuée dans le sélecteur, la qualité cristalline se dégrade le long de la hauteur de celui-ci. Cela aboutit à la sortie, dans la pièce, à une zone de relativement grande mosaïcité par rapport aux secteurs de la zone de séparation, où les dendrites existantes ont crû sur une hauteur plus faible, puisqu'elles ont été créées sur les bords obliques de la pièce.

Les expériences ont montré qu'il existe une mosaïcité interne dans les branches des éprouvettes. Cette mosaïcité augmente avec la distance et correspond à une divergence du réseau cristallin et du réseau dendritique ; dans le cas de branches plus longues et/ou de sections plus grandes, elle correspond également à une divergence entre sous-grains. Ce type de mosaïcité est bien expliqué par le modèle de contrainte thermomécanique, faisant intervenir uniquement le gradient longitudinal. Les dimensions latérales des branches doivent jouer dans la mesure où, sur le pourtour des sections, les déformations induites seront d'autant plus grandes que les dimensions le sont.

VI.4.3. Effet de forme

Les désorientations qui existent dans les zones de séparation des éprouvettes à quatre branches doivent pouvoir être expliquées par l'hypothèse d'effets thermomécaniques appliqués à des conditions de solidification différentes de celles qui conditionnent la croissance du solide dans les branches. Les zones de séparation sont assimilables à des plaques parallèles à la direction de tirage. Du point de vue thermique, il existe au centre de la zone de séparation un point froid, qui correspond à la sortie de sélecteur et des points chauds, qui sont les extrémités de la zone de séparation.

Deux scénarios sont envisageables pour expliquer que les branches sont très fortement désorientées et divergentes les unes par rapport aux autres, surtout autour d'un axe de rotation perpendiculaire à la zone de séparation.

1- On peut considérer que le solide refroidi situé près du bord inférieur de la pièce s'est contracté en entraînant ainsi une divergence des dendrites, par un phénomène similaire à ce qui a lieu dans les branches. La grande désorientation entre branches serait due à ce que les branches sont très éloignées l'une de l'autre. Les désorientations doivent être réparties sur toute la zone de séparation, et être de plus en plus importantes au fur et à mesure de l'éloignement du centre de la zone.

2- On peut imaginer que, au moment où les dendrites commencent à croître dans les branches, le solide s'est contracté à cause du refroidissement dans la zone de séparation. L'angle droit entre les branches et la zone de séparation a contrarié le retrait et les dendrites ont ainsi basculé, selon un principe schématisé sur la figure VI-4. Dans ce cas, les désorientations devraient être localisées essentiellement aux extrémités de la zone de séparation.

Une topographie X des désorientations pourrait permettre de différencier les deux possibilités. Dans le cas de la première hypothèse, la forte mosaïcité présente dans les branches est supposée provenir d'une partie des désorientations existant dans la zone de séparation. Ceci est d'autant plus plausible que la mosaïcité est plus grande dans les branches tangentielles, fortement désorientées, que dans les branches radiales, plus faiblement désorientées entre elles. Cette différence d'amplitude des désorientations suivant la zone de séparation pourrait être due à l'existence de gradients thermiques radiaux dans le four.

Du fait de la forme différente de la zone de séparation des éprouvettes à deux branches, la thermique à l'intérieur de cette zone est différente. Une modélisation thermomécanique serait alors nécessaire pour comprendre pourquoi les branches sont peu désorientées.

Les conditions macroscopiques de croissance sont semblables dans toutes les éprouvettes à quatre branches, y compris celles pour lesquelles la sélection des dendrites s'est effectuée à 45° du rayon du four. Les faibles désorientations dans ces dernières éprouvettes ne peuvent alors être attribuées qu'à un effet de la direction de croissance du solide. Au niveau thermomécanique, nous pensons que seule la prise en compte de l'anisotropie du matériau peut expliquer ce résultat. De la même façon, l'anisotropie du matériau doit expliquer pourquoi les barreaux cylindrique tirés suivant [111] ont une plus grande qualité cristalline que les barreaux tirés suivant [001] [28,75]. Des modélisations numériques prenant en compte cette anisotropie seront alors nécessaires pour vérifier cette hypothèse.

Chapitre VII

CONCLUSION

Au cours de ce travail, nous avons cherché à caractériser et à comprendre l'origine des défauts de qualité cristalline, à l'exclusion des grains parasites qui n'entraient pas dans le cadre de cette étude, dans des pièces monogranulaires réalisées en fonderie à cire perdue avec un superalliage base nickel. On a cherché en particulier à décrire les relations pouvant exister entre l'étape de formation des structures de solidification et la qualité cristalline des pièces à l'état brut de coulée. Les observations expérimentales ont été réalisées par métallographie et micro-analyse X pour ce qui concerne les aspects métallurgiques, par topographie X et par gammagraphie pour ce qui est de l'étude de la qualité cristalline. Comme il existe une relation directe entre les structures de solidification, dans le cas d'une croissance dendritique, et le réseau cristallin du matériau solide, les observations métallographiques et de topographie X se sont avérées être des outils complémentaires efficaces dont l'exploitation a permis de proposer un schéma de formation des défauts de qualité cristalline observés.

Les pièces étudiées peuvent être divisées en différentes parties, qui correspondent soit à des zones d'extension du grain (zone de division ou zone de raccordement), soit à des zones de croissance à section constante. L'extension du grain se fait par un mécanisme de multiplication des axes dendritiques qui aboutit à la formation d'alignements d'axes primaires très nettement visibles par observation métallographique. Par ailleurs, il a été observé que dans ce mécanisme d'extension du grain, l'orientation cristallographique des dendrites initiales est conservée. Par contre, dans les branches à section constante, le réseau dendritique perd progressivement de sa régularité en même temps que l'on observe une dégradation de la qualité cristalline du matériau. On a pu noter que les désorientations des axes dendritiques correspondent à des rotations dont la composante autour de [001] est négligeable par rapport aux autres composantes. Enfin, lors de la disparition des alignements, les dendrites se regroupent en paquets de mêmes orientations cristallines.

Dans toutes les pièces étudiées durant ce travail, il a été noté que les sorties de sélecteur présentent une mosaïcité non nulle. Les désorientations des dendrites situées en périphérie du grain initial, et qui participent au mécanisme d'extension du grain, sont à l'origine de l'apparition de secteurs d'orientations cristallines différentes. La forme de ces secteurs est donnée par les conditions macroscopiques d'échanges thermiques dans la zone d'extension dans la mesure où ces conditions déterminent laquelle des trois directions [001] est localement privilégiée. Enfin, la géométrie de la pièce détermine la possibilité éventuelle de développement des secteurs formés, qui apparaissent alors comme des sous-grains.

La dégradation de la qualité cristalline avec la distance au sélecteur, qui a pu être notée pour l'ensemble des éprouvettes étudiées, correspond à une augmentation de la

désorientation entre sous-grains et à un accroissement de la courbure divergente du réseau cristallin dans les sous-grains. On a proposé d'expliquer cette dégradation par l'existence de déformations ayant une origine thermomécanique. A l'aide de calculs réalisés en considérant un matériau parfaitement élastique, et dont les propriétés (variables avec la température) ont été estimées au mieux, il a été montré que la très forte variation du coefficient de dilatation linéaire associée à la précipitation conduit au développement de contraintes non négligeables. Des calculs thermomécaniques élastoplastiques pourraient permettre de conforter cette hypothèse et, le cas échéant, d'en tirer toutes les conséquences pratiques. De tels calculs pourraient aussi permettre de préciser si l'anisotropie des propriétés mécaniques des superalliages base nickel permet d'expliquer les conséquences qui lui ont été imputées dans cette étude. Enfin, il serait intéressant, pour comprendre le processus de dégradation de la qualité cristalline, de coupler la modélisation thermomécanique à une modélisation de la solidification tenant compte des directions privilégiées de croissance et de la relation liant la croissance de la dendrite au réseau cristallin sous-jacent.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] **Honorat**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, Fév. 1986, p. 5
- [2] **Tiller, Jackson, Rutter, Chalmers** - Acta Metall. (1953) 1, 428
- [3] **Morris, Winegard** - J. Cryst. Growth (1969) 6, 61
- [4] **Flack, Lacaze, Michel, Siredey, George** - Rev. Métall. M.E.S. (1990) 5, 289
- [5] **Rutter, Chalmers** - Can. J. Phys. (1953) 31, 15
- [6] **Kurz, Fisher** - "Fundamentals of solidification"
Ed. Trans Tech Publications, 1984, Suisse
- [7] **Ivantsov** - Dokl. Akad. Nauk. SSSR (1947) 58, 567
- [8] **Bobadilla, Lacaze, Lesoult** - J. Cryst. Growth (1988) 89, 531
- [9] **Coates, Subramanian, Purdy** - Trans. AIME (1968) 242, 800
- [10] **Zener** - Trans. TIM-AIME (1946) 167, 550
- [11] **Bolling, Tiller** - J. Appl. Phys. (1961) 32, 2587
- [12] **Glicksman, Schaefer, Ayers** - Metall. Trans. A (1976) 7A, 1747
- [13] **Langer, Müller-Krumbhaar** - Acta Metall. (1978) 26, 1681
- [14] **Langer, Müller-Krumbhaar** - Acta Metall. (1978) 26, 1689
- [15] **Langer, Müller-Krumbhaar** - Acta Metall. (1978) 26, 1697
- [16] **Mullins, Sekerka** - J. Appl. Phys. (1964) 35, 444
- [17] **Kurz, Fisher** - Acta Metall. (1981) 29, 11
- [18] **Trivedi** - J. Cryst. Growth (1980) 49, 219
- [19] **Kurz, Giovanola, Trivedi** - Acta Metall. (1986) 34, 823
- [20] **Kurz, Trivedi** - Acta Metall. (1990) 38, 1
- [21] **Trivedi, Mason** - Metall. Trans. A (1991) 22A, 235
- [22] **Chopra, Glicksman, Singh** - Metall. Trans. A (1988) 19A, 3087
- [23] **Burden, Hunt** - J. Cryst. Growth (1974) 22, 109
- [24] **Saito, Goldbeck-Wood, Müller-Krumbhaar** - Phys. Rev. A (1988) 38, 2148
- [25] **Benamar, Bouissou, Pelce** - J. Cryst. Growth (1988) 92, 97
- [26] **Brush, Sekerka** - J. Cryst. Growth (1989) 96, 419
- [27] **Weinberg, Chalmers** - Can. J. Phys. (1952) 30, 488
- [28] **Klam, Blank**
in "EUROMAT'89", Aachen, Nov. 1989, p. 407
Ed. DGM Informationsgesellschaft mbH, 1990, Oberursel, FRG
- [29] **Murakami, Fujiyama, Koike, Okamoto** - Acta Metall. (1983) 31, 1425
- [30] **Huang, Glicksman** - Acta Metall. (1981) 29, 717

- [31] **Morris, Winegard** - J. Cryst. Growth (1969) 5, 361
- [32] **Audero, Biloni** - J. Cryst. Growth (1973) 18, 257
- [33] **Ma, Axmann, Sahn**
in "Solidification Processing", Sheffield , Sept.1987, p. 160
Ed. The Institute of Metals, 1988, Londres
- [34] **Misbath, Müller-Krumbhaar, Saito** - J. Cryst. Growth (1990) 99,
156
- [35] **Moukassi** - "Influence du brassage du métal liquide sur le déroulement de
la solidification des alliages métalliques. Application à la formation de la zone
équiaxe dans la coulée continue"
Thèse de doctorat en Sciences Physiques, INPL, Nov. 1988
- [36] **Chalmers** - J. of Metals, Trans. AIME (1954), 519
- [37] **Pettersen, Ryum** - Metall. Trans. A (1989) 20A, 847
- [38] **Chalmers** - "Principles of solidification"
Ed. R. E. Krieger Publishing. Company, 1982, Malabar, USA
- [39] **Cahn** - Acta Metall. (1960) 8, 554
- [40] **Blodgett, Schaefer, Glicksman** - Metallography (1974) Z, 453
- [41] **Glicksman, Singh** - J. Cryst. Growth (1989) 98, 277
- [42] **Horway, Cahn** - Acta Metall. (1961) 9, 695
- [43] **Rappaz, Blank**
in "3rd Risø Int. Symposium on Metallurgy and Materials Science", Roskilde
(Denmark), Sept. 1982, p. 285
- [44] **Bolling, Fainstein-Pedraza** - Acta Metall. (1974) 22, 1033
- [45] **Flemings** - "Solidification processing"
Ed. Mc Graw-Hill Inc., 1974, USA
- [46] **Hunt**
in "Solidification and casting of metals", p. 3
Ed. The Metals Society, 1979, Londres
- [47] **Trivedi** - Metall. Trans. A (1984) 15A, 977
- [48] **Quested, Mac Lean** - Mater. Sci. Eng. (1984) 65, 171
- [49] **Mac Cartney, Hunt** - Acta Metall. (1981) 29, 1851
- [50] **Trivedi, Somboonsuk** - Mater. Sci. Eng. (1984) 65, 65
- [51] **Liu, An**
in "Solidification Processing", Sheffield , Sept.1987, p. 179
Ed. The Institute of Metals, 1988, Londres
- [52] **Lacaze, Chehaïbou, Lesoult**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, Fév.
1986, p. 42

- [53] **Chehaïbou** - "Formation et évolution des structures et des microségrégations lors de la solidification dirigée d'alliages à base de nickel"
Diplôme de thèse, INPL, Nov. 1988
- [54] **Esaka, Kurz, Trivedi**
in "Solidification Processing", Sheffield, Sept. 1987, p. 198
Ed. The Institute of Metals, 1988, Londres
- [55] **Somboonsuk, Trivedi** - Acta Metall. (1985) 33, 1051
- [56] **Jackson, Hunt, Uhlmann, Seward III** - Trans. AIME (1966) 236, 149
- [57] **Rappaz, Blank** - J. Cryst. Growth (1986) 74, 67
- [58] **Kurz, Rappaz**
in "Solidification des alliages", Carry-le-rouët, Sept. 1985, p. 191
Ed. Les Editions de Physique, 1988, Les Ulis, France
- [59] **Grugel, Zhou** - Metall. Trans. A (1989) 20A, 969
- [60] **Jacobi, Schwerdtfegger** - Metall. Trans. A (1976) 7A, 811
- [61] **Lacaze** - J. Spect. Elec. (1987) 12, 63
- [62] **Nakagawa, Kato, Matsuda, Senda** - Trans. Jap. Weld. Soc. (1970) 1, 94
- [63] **Rappaz, David, Vitek, Boatner** - Metall. Trans. (1989) 20A, 1125
- [64] **David, Vitek, Rappaz, Boatner** - Metall. Trans. (1990) 21A, 1753
- [65] **Rappaz, David, Vitek, Boatner** - Metall. Trans. (1990) 21A, 1767
- [66] **David, Vitek** - Int. Mater. Rev. (1989) 34, 213
- [67] **Bower, Brody, Flemings** - Trans. AIME (1966) 236, 624
- [68] **Brody, Flemings** - Trans. AIME (1966) 236, 615
- [69] **Yeum, Laxmanan, Poirier** - Metall. Trans. A (1989) 20A, 2847
- [70] **Kobayashi** - J. Cryst. Growth (1988) 88, 87
- [71] **Solari, Biloni** - J. Cryst. Growth (1980) 49, 451
- [72] **Sarreal, Abbaschian** - Met. Trans. A (1986) 17A, 2063
- [73] **Agapova, Pankin, Ponomarev, Larionov, Denisov** - Izv. Akad. Nauk SSSR, Met. (1989) 2, 104
- [74] **Bellet** - "Etude des textures des superalliages monocristallins par diffraction et diffusion des rayonnements : X, γ et neutrons"
Thèse de doctorat de l'université Joseph Fourier-Grenoble I, Fév. 1990
- [75] **Giamel** - Technical Report AFOSR TR-80-0033, 10/1/78 - 9/30/79
- [76] **Rappaz, Blank** - Wear (1983) 84, 387
- [77] **Newkirk** - Trans. AIME (1959) 215, 483
- [78] **Rappaz, Blank** - J. of Mater. Sci. (1987) 22, 896

- [79] **Rappaz, Kaspar, Blank**
in "5th Risø Int. Symposium on Metallurgy and Materials Science", p. 443
Ed. N.H. Andersen et al. (Risø Nat. Lab. Pub.), 1984, Roskilde, Danemark
- [80] **Bastie, Bellet, Lacaze, Siredey**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Nancy, Nov. 1990, p.
27
- [81] **Fredholm** - "Monocristaux d'alliages base nickel. Relation entre
composition, microstructure, et comportement en fluage à haute
température"
Thèse de doctorat en Science et Génie des Matériaux, Ecole des Mines de
Paris, Janv. 1987
- [82] **Théret**
in "Solidification des alliages", Carry-le-rouët, Sept. 1985, p.303
Ed. Les Editions de Physique, 1988, Les Ulis, France
- [83] **Bois, Rémy**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, Fév.
1986, p. 54
- [84] **Bachelet, Lamanthe**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, Fév.
1986, p. 180
- [85] **Kattamis, Flemings** - Trans. AIME (1965) 233, 992
- [86] **McLean** - "Directionally Solidified Materials for High Temperature
Service"
Ed. The Metals Society, 1983, Londres
- [87] **Herteman** - Matériaux et Techniques (1985) Oct-Nov, 559
- [88] **Reske, Bader** - COST 504-II, projet D12 Annual Report Jan. 1990 - Dec.
1990
- [89] **Despujols**
in "Techniques de l'ingénieur" 4-1980, Mesures et Analyses, P2695
- [90] **Maurice**
in "Techniques de l'ingénieur" 1-1988, Mesures et Analyses, P885
- [91] **Ruste** - Fascicule interne au LSG2M, Déc. 1977
- [92] **Pouchou, Pilchoir** - La Recherche Aérospatiale (1984) 3, 167
- [93] **Charlot**
in "Statistiques appliquées à l'exploitation des mesures", tome 1, p. 100
Ed. Masson, 1978
- [94] Plaquette de présentation LURE, (1989)
- [95] **Berar, Bessière, Lefebvre** - J. de Chimie Physique (1989) 86, 1474

- [96] **Flack** - rapport de stage, Nancy, Sept. 1988 - Fév. 1989
- [97] **Robert, Lefauchaux** - J. Cryst. Growth (1983) 65, 637
- [98] **Freund** - "X-ray optics for synchrotron radiation"
Ecole d'été sur le rayonnement synchrotron, INSTN, Grenoble, Avr. 1990
- [99] **Schneider** - J. of Appl. Cryst. (1974) Z, 541
- [100] **Müller-Krumbhaar, Kurz**
in "Phase Transformations in Materials", p. 601
Ed. P. Haasen, VCH-Verlag, 1991
- [101] **Rohatgi, Adams** - Trans. AIME (1967) 239, 1737
- [102] **Merz, Kattamis, Giamei** - J. of Mat. Science (1979) 14, 663
- [103] **Smithells** - "Metals Reference Book"
Ed. Butterworths, 3^{ème} édition, 1962, Londres
- [104] Diffusion and Defect Data (1981) 25
- [105] Diffusion and Defect Data (1982) 28
- [106] Diffusion and Defect Data (1981) 22
- [107] **Grosdidier, Hazotte, Simon**
in "High Temperature for Power Engineering 1990", Liège, Sept. 1990, p.
1271
Ed. Kluwer Academic Publishers
- [108] **Lacaze, Chehaïbou, Lesoult** - Z. Metallkunde (1989) 80,15
- [109] **Siredey, Lesoult, Lacaze**
in "High Temperature for Power Engineering 1990", Liège, Sept. 1990, p.
1309
Ed. Kluwer Academic Publishers
- [110] **Hazotte, Simon**
in "Colloque National Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, Fév.
1986, p. 210
- [111] **Flemings, Nereo** - Trans. AIME (1967) 239, 1449
- [112] **Flemings, Mehrabian, Nereo** - Trans. AIME (1968) 242, 41
- [113] **Sellamuthu, Brody, Giamei** - Metall. Trans. B (1986) 17B, 347
- [114] **Dandekar, Martin** - J. of Mater. Science (1990) 25, 3321
- [115] **Harris, Erickson, Schwer** -
in "TMS-AIME Fall Meeting", St Louis, Oct. 1982

ANNEXES

Annexe A : Application aux alliages multiconstitués du modèle d'Ivantsov de redistribution de soluté autour d'une pointe de dendrite

Un programme a été réalisé permettant le calcul du rayon de courbure à la pointe des dendrites en fonction des conditions de croissance, ainsi que de la sursaturation et de la surfusion associées. Nous nous sommes inspirés des travaux de Bobadilla et al. [8] concernant les alliages à plusieurs éléments.

La redistribution d'un soluté i entre liquide et solide à la pointe d'une dendrite est décrite par la sursaturation Ω_i associée :

$$\Omega_i = \frac{w_i^{s*} - k_i \cdot w_i}{w_i^{s*} \cdot (1 - k_i)} \quad (\text{A-1})$$

avec w_i^{s*} , la composition du solide à l'interface liquide/solide.

La surfusion de la pointe de la dendrite ΔT_c est donnée pour les alliages multiconstitués et en supposant que dans l'intervalle de composition d'intérêt, le liquidus peut être décrit par un hyperplan, par l'équation :

$$\Delta T_c = \sum_i m_i \cdot w_i \cdot \left(1 - \frac{1}{1 - \Omega_i \cdot (1 - k_i)} \right) \quad (\text{A-2})$$

Ivantsov a proposé un modèle permettant le calcul de la sursaturation à la pointe d'une dendrite supposée isolée durant sa croissance dans un liquide de composition égale à w_i loin de l'interface. Avec cette hypothèse, et en supposant que la diffusion à l'état solide est négligeable, la sursaturation associée à un soluté i n'est fonction que du nombre de Péclet solutal p_i , elle est donnée par :

$$\Omega_i = I(p_i) \quad (\text{A-3})$$

$$p_i = \frac{V \cdot R}{2 \cdot D_i^l} \quad (\text{A-4})$$

avec D_i^l , le coefficient de diffusion dans le liquide du soluté i , et $I(p_i)$, la fonction d'Ivantsov (cf équation II-4) appliquée au Péclet solutal de l'élément i .

Le modèle est étendu à un alliage multiconstitué en supposant qu'il n'y a pas interaction entre les solutés ; cela veut dire par exemple qu'il n'y a pas de coefficients de diffusion croisés. Dans un premier temps, on supposera que les coefficients de diffusion des différentes espèces chimiques dans le liquide ont la même valeur.

Langer et Müller-Krumbhaar [14] ont montré que la forme de la pointe d'une dendrite n'est stable que si le rayon de courbure est proportionnel à la plus petite longueur d'onde perturbatrice qui se développerait de façon catastrophique sur une interface initialement plane placée dans les mêmes conditions de croissance. Celle-ci est alors solution de l'équation :

$$f(\omega) = \frac{\dot{\varepsilon}}{\varepsilon} = 0 \quad (\text{A-5})$$

avec : $\omega = 2.\pi/R$, et :

$$f(\omega) = \frac{V.\omega.\left(-\Gamma.\omega^2 + \sum_i \frac{m_i.G_{ci}.\left(\omega_i^* - \frac{V}{D_i^l}\right)}{\tilde{\omega}_i} - \frac{1}{2}.(g^s + g^l)\right)}{\frac{1}{2}.(g^s - g^l) + \sum_i \frac{m_i.G_{ci}.\omega}{\tilde{\omega}_i}} \quad (\text{A-6})$$

G_{ci} est le gradient de concentration dans le liquide devant l'interface pour l'élément i ; il est donné par l'équation :

$$G_{ci} = -\frac{V.\omega_i.(1 - k_i)}{D_i^l.[1 - (1 - k_i).\Omega_i]} \quad (\text{A-7})$$

ω_i^* et $\tilde{\omega}_i$ sont tels que :

$$\omega_i^* = \frac{V}{2.D_i^l} + \sqrt{\left(\frac{V}{2.D_i^l}\right)^2 + \omega^2} \quad (\text{A-8})$$

$$\tilde{\omega}_i = \omega_i^* - (1 - k_i).\frac{V}{D_i^l} \quad (\text{A-9})$$

g^ϕ est le gradient thermique dans la zone pâteuse, donné plus précisément par l'équation :

$$g^\phi = \frac{2.G^\phi.k^\phi}{(k^s + k^l)} \quad (\phi = s, l) \quad (A-10)$$

G^ϕ est le gradient de température à l'interface dans la phase ϕ ; k^ϕ est la conductivité thermique de la phase ϕ .

L'équation A-5 a été résolue numériquement avec les valeurs de données physiques présentées dans le tableau A-1 :

$\Gamma = 2.10^{-5} \text{ K.cm}$	paramètre de GIBBS-THOMPSON [53]
$k^s = 0,727 \text{ W/cm/K}$	conductivité thermique de Ni solide à T_{fusion}
$k^l = 0,167 \text{ W/cm/K}$	conductivité thermique de Ni liquide à T_{fusion}
$\rho = 8,91 \text{ g/cm}^3$	masse volumique du Nickel solide
$L = 299,49 \text{ J/g}$	chaleur latente de fusion du Nickel
$D^l = 5.10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$	coefficient de diffusion dans le liquide [53]

Tableau A-1 : valeurs des données utilisées dans la résolution numérique de l'équation donnant la sursaturation et de la surfusion à la pointe des dendrites en fonction des conditions de croissance.

Les valeurs des coefficients de partage à l'équilibre k_i et celles des pentes de liquidus m_i sont tirées de la thèse de A. CHEHAIBOU et données dans le tableau III-2. La composition de l'alliage utilisée est la composition nominale, donnée dans le tableau III-1.

Annexe B : Simulation des moirés

A l'aide d'un programme de simulation graphique (cf § III.3.2.c.1.), il est possible de déterminer l'orientation des alignements de dendrites par rapport au plan de coupe, ainsi que la distance entre deux alignements, à partir de grandeurs mesurables sur les coupes. Pour cela, il est nécessaire de connaître l'une des dimensions du réseau dendritique, obtenue à partir des coupes transversales, par exemple la largeur e_2 des bras secondaires (figure B-1). En théorie ces relations entre grandeurs mesurées sur les coupes et dimensions du réseau dendritique peuvent être appliquées non seulement aux alignements mais aussi aux dendrites particulières, en définissant alors l'orientation de chaque dendrite par rapport au plan de coupe. Les grandeurs auxquelles le programme permet d'accéder sont présentées sur les figures B-1 et B-2. La figure B-3 montre la modélisation d'une coupe et les grandeurs mesurées qui permettent d'accéder à l'orientation des alignements par rapport au plan de coupe. Les angles étudiés pour déterminer cette orientation varient entre 0° et 45° .

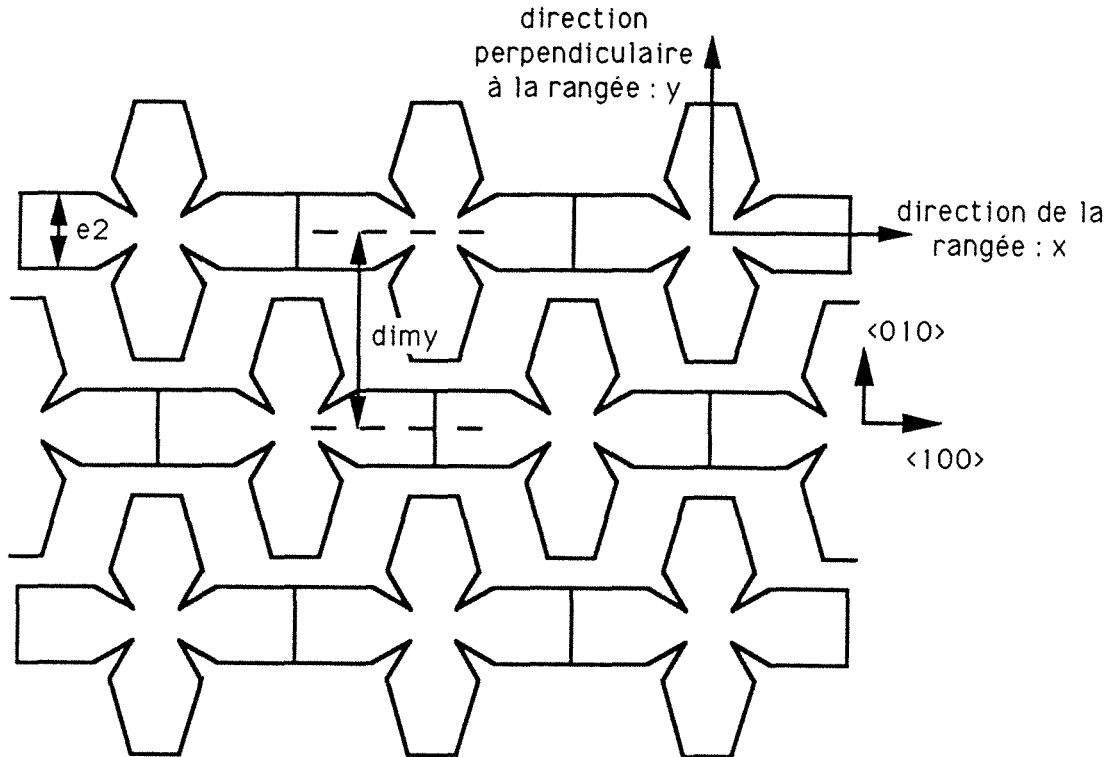


Figure B-1 : Coupe transversale du réseau simulé. e_2 est la largeur des bras secondaires, dim_y est la distance entre deux rangées de dendrites.

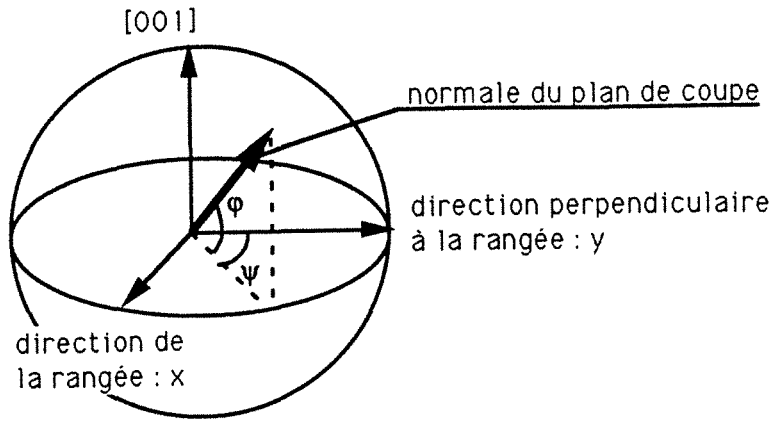


Figure B-2 : Définition des angles servant à orienter le plan de coupe par rapport au réseau dendritique.

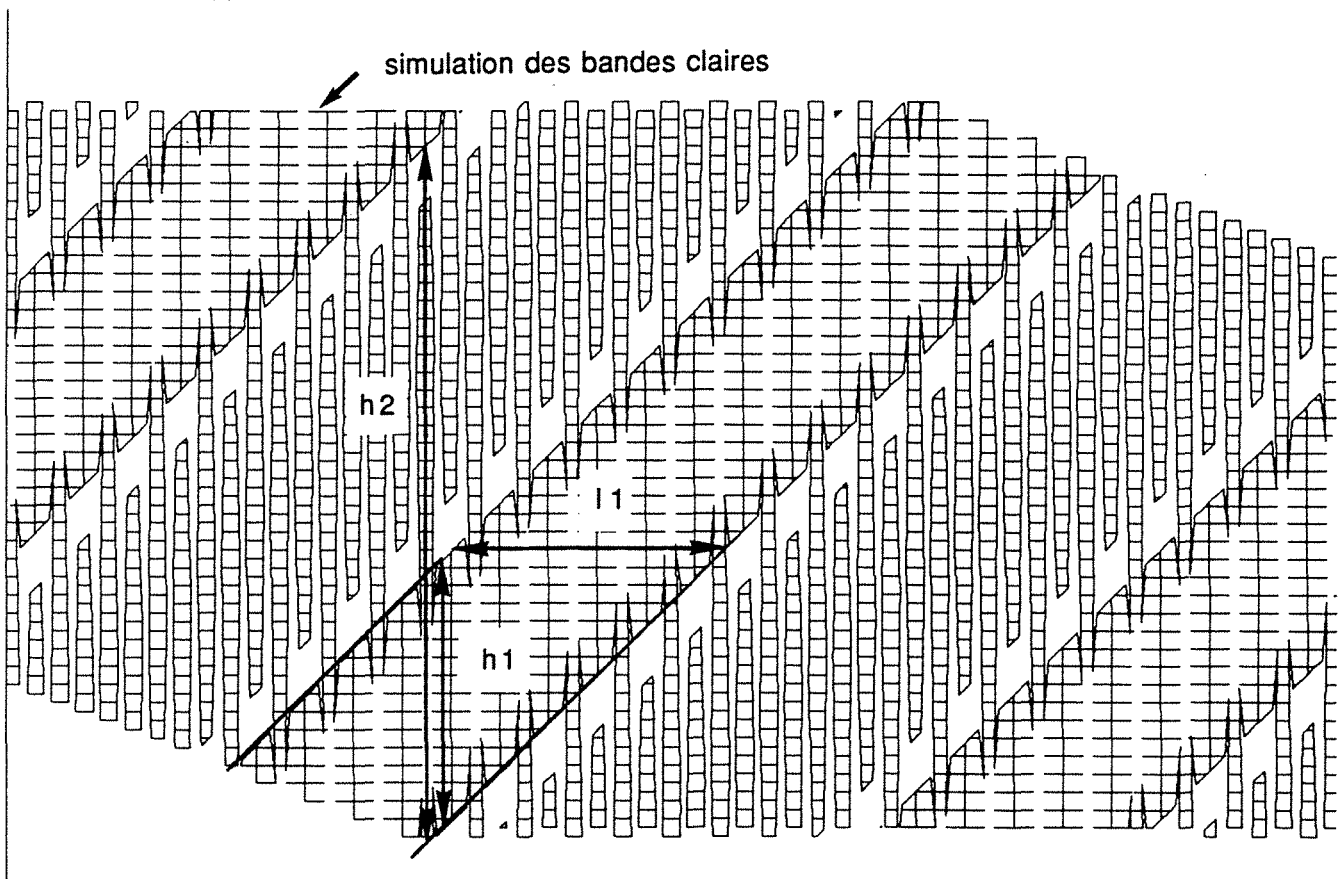


Figure B-3 : Grandeurs mesurées sur la coupe : l_2 , h_1 , h_2 .

Les abaques reliant les deux séries de paramètres : paramètres mesurés sur la coupe et paramètres à déterminer (angles ϕ et ψ , distance dim_y entre alignements de dendrites) sont indiqués sur la figure B-4. Outre ces abaques, la simulation établit une relation directe entre la hauteur relative de la bande claire h_1/h_2 et la distance entre alignements :

$$\frac{e_2}{dim_y} = \frac{h_1}{h_2} \quad (B-1)$$

On peut noter qu'un autre angle est directement accessible sur la coupe : il s'agit de la rotation du réseau dendritique autour de la normale au plan de coupe. Cette rotation est directement mesurée sur la coupe par la rotation des traits marquant la séparation en hauteur des différentes portions de la dendrite (traits horizontaux sur la figure B-3).

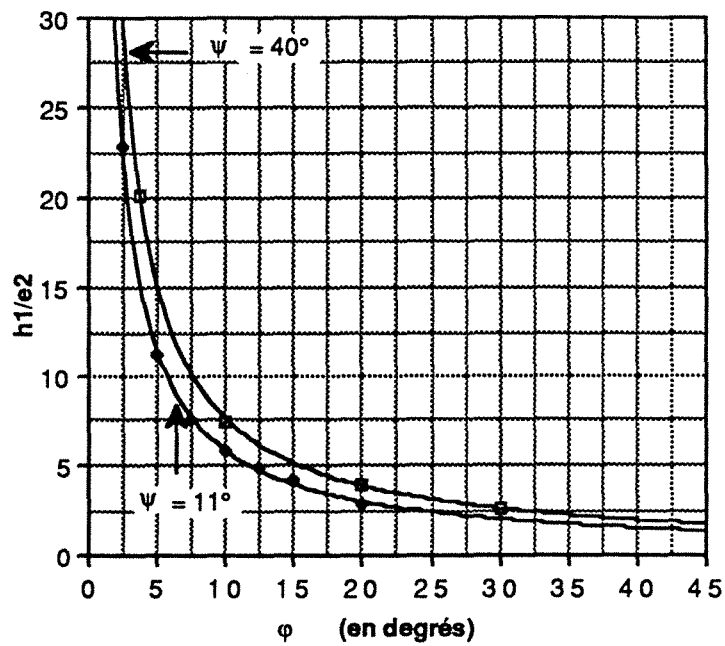
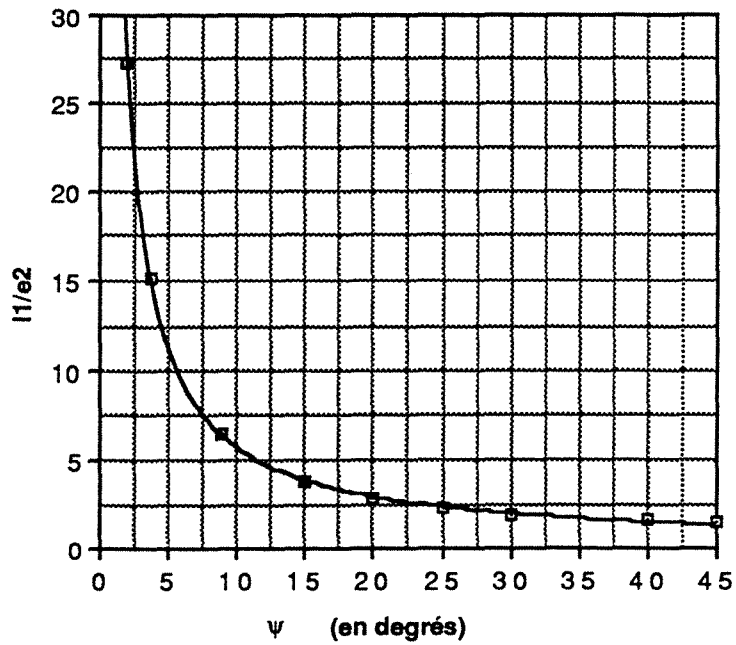


Figure B-4 : Abaques reliant les grandeurs mesurées sur les coupes à l'orientation du réseau par rapport au plan de coupe.

Annexe C : Macroségrégations

L'un des défauts pouvant être préjudiciable aux pièces coulées est l'existence éventuelle de macroségrégations. Celles-ci correspondent à des variations de compositions à l'échelle de quelques centaines de dendrites, voire à l'échelle de la pièce, créées lors de la solidification, et qui peuvent entraîner des variations dans les propriétés mécaniques finales et des précipitations de phases indésirables. En effet les macroségrégations ne sont pas éliminées par les traitements thermiques ultérieurs réalisés, puisque les distances sur lesquelles elles ont lieu sont a priori très supérieures aux distances de diffusion chimique : une fois créées, les macroségrégations resteront donc présentes dans la pièce. Différents mécanismes peuvent être à l'origine de ces macroségrégations.

Flemings et al. [111,112] ainsi que Sellamuthu et al. [113] ont montré que des variations de composition locale pouvaient survenir dans des pièces présentant des réductions abruptes de sections transversales. Ces macroségrégations surviennent du fait de l'accroissement de la vitesse du flux de liquide dans la section de petites dimensions lorsque le front de solidification atteint la fin de la zone à grande section. Le liquide est alors entraîné par le retrait de solidification.

Les éprouvettes à deux branches utilisées ici ne présentent pas de changement de section abrupte ; on pense que le phénomène étudié par Sellamuthu et al. n'entraîne pas de macroségrégations dans nos pièces. Par contre dans les éprouvettes à quatre branches, le début des branches peut présenter des variations de compositions, qui n'ont pas été étudiées ici.

A l'échelle de la pièce, une macroségrégation due par exemple à la gravité, ou à l'existence éventuelle de convection, a été recherchée. L'étude a porté principalement sur une éprouvette à deux branches ainsi que sur une des éprouvette à quatre branches. Dans l'éprouvette à deux branches, la composition chimique moyenne a été mesurée sur différentes sections transversales, et son évolution en fonction de la distance à la sortie du sélecteur a été étudiée. Sur l'éprouvette à quatre branches, on a simplement comparé une section transversale située sur une branche tangentielle, une autre prise sur la radiale centrale et une section longitudinale dans la zone de division tangentielle.

Sur une même section, l'écart entre les compositions analysées en divers endroits provient d'une part de l'erreur statistique associée au rayonnement X et d'autre part aux microségrégations pouvant exister à l'échelle de la section. Dans les deux éprouvettes analysées, les variations de compositions locales ne sont pas reliées de façon significative à

la position des zones de mesure dans le plan de la section. On a donc supposé que la composition des sections est homogène, de valeur estimée par la moyenne des mesures réalisées.

Dans l'éprouvette à deux branches, la teneur de chacun des éléments d'alliage a été mesurée sur les différentes sections transversales d'une des branches : les résultats sont reportés dans le tableau C-1. Les coefficients de variation V (rapport de l'écart-type à la moyenne) des éléments sont approximativement les mêmes pour toutes les sections ; ils sont donnés eux aussi dans le tableau C-1. Pour le titane, le tantale et le tungstène, on note un coefficient de variation important, très supérieur à l'incertitude relative prédite par la statistique du rayonnement X. Ce résultat est associé à la variabilité des mesures liée à la structure dendritique : en effet, ces éléments sont ceux qui ségrègent le plus durant la solidification, comme l'indique la valeur de leur coefficient de partage à l'équilibre.

élément	composition massique (%)				coefficient de variation par section
	distance du début de la pièce (en cm)				
	3,2	5,9	12,1	15 *	
Ti	1,22	1,28	1,30	1,27	5,7 %
Cr	8,41	8,44	8,33	8,24	1 %
Ni	64,03	63,72	64,25	63,43	0,4 %
Co	6,84	6,83	6,81	6,73	0,9 %
Al	5,05	4,99	5,45	5,42	1,4 %
Mo	2,21	2,23	2,13	2,15	4,8 %
W	5,55	5,46	5,54	5,44	5 %
Ta	7,95	7,98	8,16	8,10	3,2 %

* La section à 15 cm du début de la pièce se trouve au-dessus de la zone de raccordement

Tableau C-1 : composition massique et coefficient de variation de sections transversales à différentes hauteurs dans l'une des branches de l'éprouvette à deux branches.

La comparaison des compositions des différentes sections, à l'aide du test de Student-Fisher, permet de dire que l'écart entre les compositions moyennes est significatif à 95 % pour le nickel, le chrome et l'aluminium. Par contre, la distance à la sortie du sélecteur n'a aucune influence sur la composition des autres éléments, notamment sur celle du titane, du tantale et du tungstène. D'éventuelles différences de compositions chimiques entre branches ont été recherchées. Pour cela, les compositions en tantale, tungstène, nickel et chrome ont été analysées sur des sections situées sur l'autre branche de la pièce

et aux mêmes hauteurs que les sections de la première branche. Le long de cette deuxième branche, aucune différence significative entre les moyennes des sections n'est apparue. Pour une même hauteur, les écarts de teneurs entre les deux branches de la pièce ne sont pas non plus significatifs, excepté pour le tantale dans le cas des sections situées le plus près du début de la pièce.

La comparaison des sections de l'éprouvette à quatre branches n'a pas non plus montré de différences de composition significatives hormis pour le chrome et le nickel, notamment entre la section longitudinale de la zone de division et les sections transversales des branches, comme le montre le tableau C-2. Au contraire de l'éprouvette à deux branches, les coefficients de variation de chacun des éléments varient fortement suivant la section considérée. On retrouve pour le titane, le tungstène et le tantale un coefficient de variation important dû à la structure dendritique. Sur la section de la branche radiale centrale, cet effet n'apparaît pas.

élément	composition massique (en %)			coefficient de variation		
	zone de division	branche tangentielle	branche radiale	zone de division	branche tangentielle	branche radiale
Ti	1,28	1,4	1,3	13,8 %	8,5 %	3,2 %
Cr	7,8	7,9	8	1,3 %	0,9 %	1,3 %
Ni	63,58	63,32	63,17	0,5 %	0,4 %	0,4 %
Co	6,8	6,7	6,8	2,4 %	1,3 %	0,8 %
Al	5,6	5,7	5,6	2,4 %	1,2 %	0,9 %
Mo	1,9	2	2	6,3 %	4 %	6,1 %
W	5,4	5	5,2	12,3 %	6,6 %	3,3 %
Ta	7,7	7,9	7,8	9,3 %	5,5 %	2,1 %

Tableau C-2 : composition massique et coefficient de variation de sections dans une éprouvette à quatre branches.

D'après les résultats obtenus, on peut supposer que les éprouvettes étudiées sont exemptes de macroségrégations à l'échelle de la pièce, les variations observées n'étant pas reproductibles : en particulier bien que l'une des branches de l'éprouvette à deux branches présentent des variations significative en nickel, chrome et aluminium, l'autre n'en présente pas.

Annexe D : Données pour l'étude du comportement mécanique du superalliage AM1 à haute température

Les données qui sont proposées ici pour déduire le comportement à haute température de l'AM1 ont été obtenues par extrapolation de valeurs expérimentales mesurées sur cet alliage ou d'autres alliages à plus basses températures. Elles ont été utilisées pour effectuer des calculs de contraintes élastiques lors du refroidissement d'un barreau cylindrique entre 1400°C et 1100°C. Les calculs ont été réalisés avec le code de calcul SYSWELD, avec l'hypothèse que, en-dessous de 1100°C, n'existent plus de contraintes thermomécaniques : dans le calcul, 1100°C est pris comme température de référence.

Le calcul ne tient pas compte de l'effet de l'anisotropie, bien que cet aspect soit discuté dans cette annexe. Les paramètres qui vont jouer un rôle important dans l'amplitude des contraintes sont le module d'Young E et le coefficient de dilatation linéaire α . En effet, la contrainte thermique est induite par la déformation résultant de la dilatation linéaire ; cette déformation ε s'écrit :

$$\varepsilon = \alpha \cdot \Delta T \quad (D-1)$$

ΔT est une variation de température.

Avant de s'intéresser à ces paramètres, quelques grandeurs sont nécessaires pour réaliser le calcul. La masse volumique employée est celle de l'AM1; la chaleur spécifique est celle du nickel ; elle vaut 0,61 J/g/°C. La température de précipitation de la phase γ dépend des conditions de refroidissement, du couplage entre germination et croissance, et des microségrégations. La valeur adoptée diffère de la valeur de solvus reportée dans la littérature (soit 1293°C), elle correspond aux observations réalisées en dilatométrie par Hazotte et al. [110].

D.1. Coefficient de dilatation linéaire α

Les études menées par Hazotte et al. [110] en dilatométrie sur le CMSX2 et l'AM1 montrent un comportement semblable de ces deux matériaux. Les courbes obtenues (figure D-1) présentent un changement brutal du coefficient de dilatation au début de la précipitation et se situant à la température de 1275°C environ.

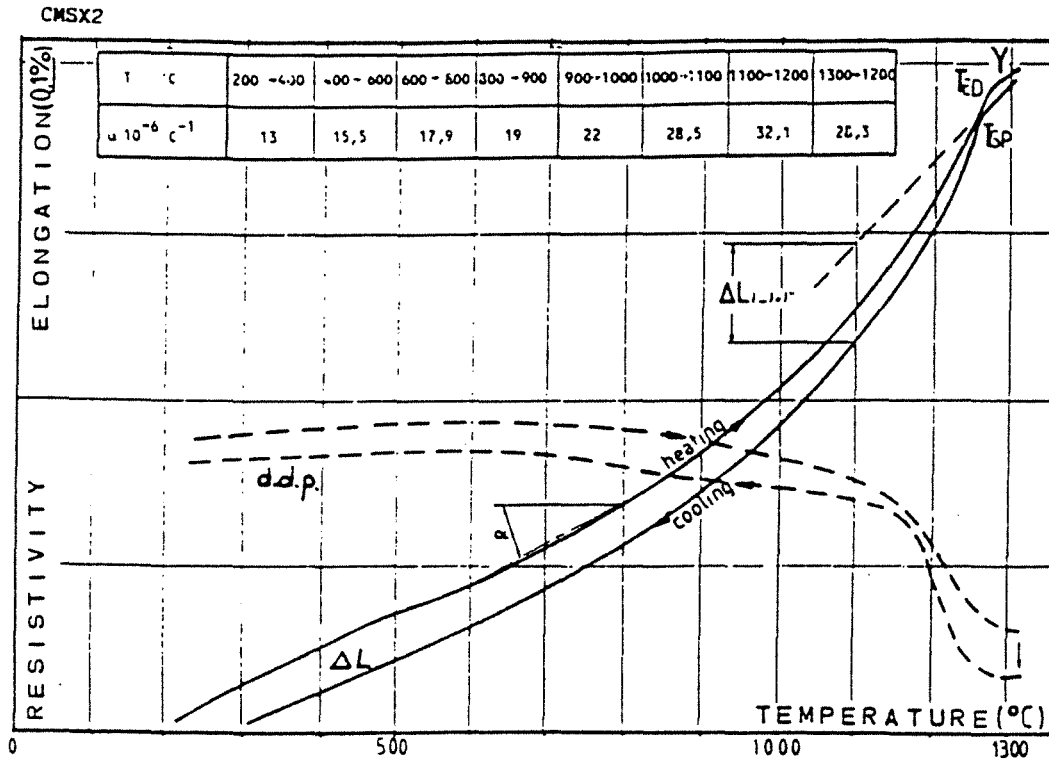


Figure D-1 : Evolution de la longueur et de la résistivité d'un échantillon de CMSX2 lors du cyclage thermique $T_{amb.} - 1300^\circ\text{C} - T_{amb.}$ [110].

Cette valeur est inférieure à la valeur du solvus, ce qui est attribué à la cinétique de précipitation ; elle est donc dépendante de la vitesse à laquelle les mesures sont effectuées. Néanmoins, dans la suite de l'étude, cette température de 1275°C sera retenue comme température de changement d'état du matériau et donc de changement brusque en ce qui concerne les propriétés mécaniques. A partir des mesures de Hazotte, il est possible d'approcher la variation de α , entre 1100°C et 1275°C , par un polynôme d'ordre 2, et ensuite, entre 1275°C et 1310°C par une valeur constante. On obtient alors :

- entre 1100°C et 1275°C :

$$\alpha = 2,6588789 \cdot 10^{-3} - 4,6542858 \cdot 10^{-6} \cdot T + 20,666666 \cdot 10^{-10} \cdot T^2$$

avec α exprimé en $^\circ\text{C}^{-1}$ et T en $^\circ\text{C}$. Typiquement, cela donne :

Température ($^\circ\text{C}$)	coefficient de dilatation ($^\circ\text{C}^{-1}$)
1100	$39,8 \cdot 10^{-6}$
1200	$49,7 \cdot 10^{-6}$
1250	$70 \cdot 10^{-6}$
1275	$84,3 \cdot 10^{-6}$

Tableau D-1 : valeurs de α en fonction de la température.

- entre 1275°C et 1310°C

$$\alpha = 28.10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$$

D.2. Comportement élastique

a. *Etude des modules d'Young ou des complaisances*

L'AM1 ayant une structure cubique, 3 constantes élastiques suffisent pour déterminer son comportement suivant toutes les orientations : S_{11} , S_{12} et S_{44} . Si l'on réalise des essais de traction simple avec l'axe de tirage orienté parallèlement à $\langle 001 \rangle$ ou $\langle 111 \rangle$, on a alors accès au modules d'Young $E_{\langle 001 \rangle}$ et $E_{\langle 111 \rangle}$. Il vient :

$$S_{11} = \frac{1}{E_{\langle 001 \rangle}} \quad S_{12} = -\frac{\nu}{E_{\langle 001 \rangle}} \quad S_{44} = \frac{3}{E_{\langle 111 \rangle}} - \frac{(1-2\nu)}{E_{\langle 001 \rangle}}$$

Pour le superalliage AM1, la valeur du module d'Young dans la direction $\langle 001 \rangle$ présente à température ambiante une très grande différence par rapport aux modules d'Young dans les directions $\langle 011 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ [84] :

$$E_{\langle 001 \rangle} = 130 \text{ GPa}, \quad E_{\langle 011 \rangle} = 220 \text{ GPa}, \quad E_{\langle 111 \rangle} = 290 \text{ GPa}$$

Il est aussi nécessaire de connaître le coefficient de Poisson ν . Celui d'un autre alliage monocristallin, le René N4, présentant une fraction volumique de γ' de 56%, a été retenu [114]. A température ambiante, il a pour valeur 0,385 et sera pris ensuite égal à 0,395 pour des températures comprises entre 1100°C et 1310°C, Dandekar et al. [114] montrant qu'il variait légèrement avec la température.

L'étude menée entre 25°C et 1000°C sur le René N4 [114] montre une évolution quadratique avec la température du rapport entre la constante S_{ij} et sa valeur à température ambiante. Pour estimer l'évolution des constantes d'élasticité de l'AM1, celle du rapport des constantes du René N4 a été prise en extrapolant jusqu'à 1275°C. Seule la constante S_{11} présentait un écart entre les valeurs à plus hautes températures données par les auteurs et leur modèle de variation. Pour celle-là, une interpolation quadratique a été recalculée en ne prenant en compte que les valeurs au dessus de 700°C. Dans ces conditions, en notant les températures en Kelvin, les constantes d'élasticité de l'AM1 sont données par :

$$(S_{11})^{-1} = (S_{11})_{T_{amb.}}^{-1} \cdot (0,5025397 + 9,6756932 \cdot 10^{-4}T - 6,5255155 \cdot 10^{-7}T^2)$$

L'évolution de S_{12} suit exactement l'évolution de S_{11} avec

$$S_{12} = -0,395 \cdot S_{11}$$

et

$$(S_{44})^{-1} = (S_{44})_{T_{amb.}}^{-1} \cdot (1,05048 - 1,6284 \cdot 10^{-4}T - 7,5792 \cdot 10^{-7}T^2)$$

Si l'on s'intéresse à la variation des modules d'Young en $\langle 001 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ avec la température, on obtient alors en exprimant E en GPa et T en K :

$$E_{\langle 001 \rangle} = 65,330161 + 0,125784 \cdot T - 8,48317 \cdot 10^{-5} \cdot T^2$$

$$E_{\langle 111 \rangle} = 3 \cdot \left(\frac{0,527908 + 9,345787 \cdot 10^{-4} \cdot T - 8,811398 \cdot 10^{-7} \cdot T^2 + 3,292748 \cdot 10^{-11} \cdot T^3}{6,029168 \cdot 10^{-3} + 8,078066 \cdot 10^{-6} \cdot T - 5,747878 \cdot 10^{-9} \cdot T^2} + \frac{4,945819 \cdot 10^{-14} \cdot T^4}{6,029168 \cdot 10^{-3} + 8,078066 \cdot 10^{-6} \cdot T - 5,747878 \cdot 10^{-9} \cdot T^2} \right)$$

Par exemple, on a alors :

Température (°C)	$E_{\langle 001 \rangle}$ (GPa)	$E_{\langle 111 \rangle}$ (GPa)
1100	78,12	196,19
1150	72,54	189,24
1200	66,55	181,85
1250	60,13	173,93
1275	56,76	169,72

Tableau D-2 : valeurs des modules d'Young en fonction de la température.

Les figures D-2 et D-3 montrent cette évolution des modules d'Young ainsi que l'évolution de leur rapport. Si l'on suit les hypothèses admises ici, on constate que le matériau voit augmenter légèrement son anisotropie quand la température augmente.

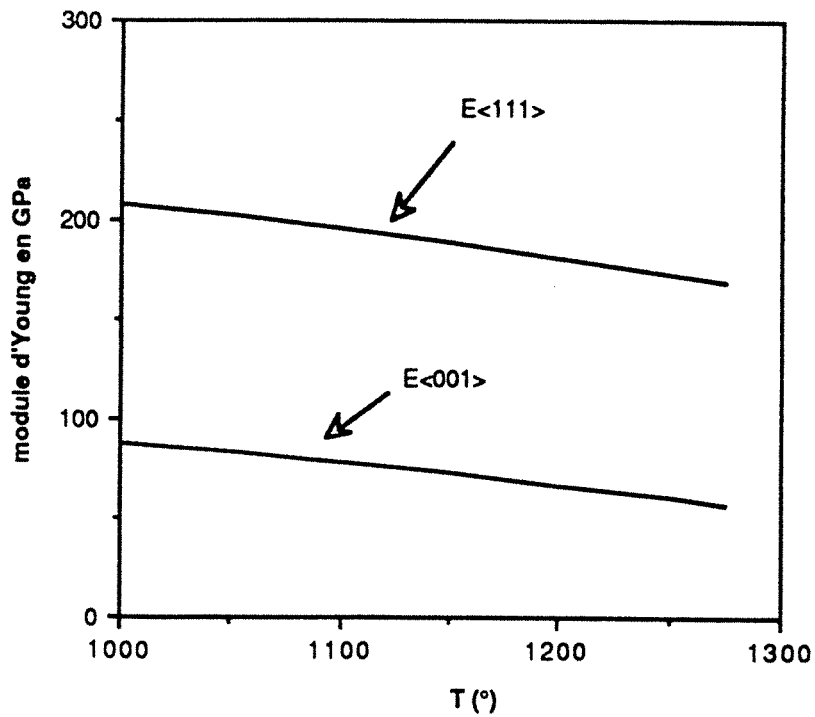


Figure D-2 : Variation du module d'Young de l'AM1 avec la température, en utilisant les formules déduites des mesures sur René N4, d'après [114].

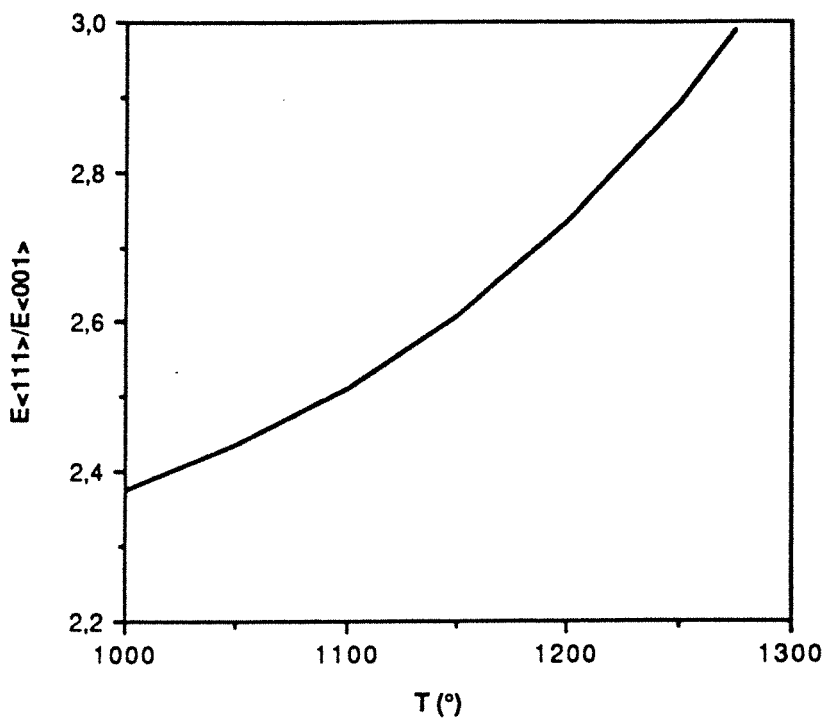


Figure D-3 : Evolution de l'anisotropie avec la température.

La question de savoir quelles valeurs prendre pour des températures situées au dessus de

1275°C n'a pas été résolue. Dans les calculs réalisés, on a choisi, pour une croissance du barreau suivant $\langle 001 \rangle$, de prendre à 1300°C un module d'Young $E_{\langle 001 \rangle}$ égal à 55 GPa. Au delà, on suppose que le module chute brutalement, pour devenir virtuellement nul.

b. Etude de la limite élastique à 0,2% de déformation σ_E

De nombreuses études ont été réalisées sur le CMSX2 par Hazotte et al. [107] et Harris et al. [115] permettant de connaître l'évolution de la limite d'élasticité suivant la direction $\langle 001 \rangle$. Entre 1100°C et 1275°C, cette limite varie linéairement avec la température. Au delà, il est peut-être possible de la considérer comme constante jusqu'à 1310°C.

- entre 1100°C et 1275°C, avec σ_E en MPa et T en °C :

$$\sigma_E = 2408,1 - 1,888.T$$

- entre 1275°C et 1310°C

$$\sigma_E = 0,9 \text{ MPa}$$

Les études réalisées sur l'AM1 semblent indiquer que le rapport entre les limites d'élasticité suivant l'orientation ne varie pas quand on augmente la température [G1&] : une moyenne des mesures effectuées par différents auteurs indique que les limites d'élasticité suivant $\langle 011 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ ont une valeur environ égale à 0,9 fois celle de la limite d'élasticité suivant $\langle 001 \rangle$. Ce résultat, mesuré jusqu'à 1100°C, sera extrapolé jusqu'à 1275°C. Le tableau D-3 donne quelques valeurs des limites d'élasticité dans la direction $\langle 001 \rangle$.

Température (°C)	σ_E (MPa)
1100	331
1150	237
1200	142,5
1225	95
1250	48
1270	10
1275	0,9
1300	0,9

Tableau D-3 : valeurs de $\sigma_{E\langle 001 \rangle}$ pour quelques températures.

D.3. Utilisation du code de calcul

La revue bibliographique réalisée et dont les résultats les plus marquants ont été présentés dans cette annexe montre que le comportement mécanique à la solidification ne peut pas être pris en compte, faute de données. Seuls la précipitation et le refroidissement ultérieur pourront être modélisés. En particulier, la transformation liquide->solide et le dégagement de chaleur associé ne seront pas intégrés au calcul.

Le code de calcul utilisé effectue la résolution des équations de mécanique de base en tenant compte des conditions aux limites éventuelles. Cette résolution se fait numériquement par éléments finis. Le barreau cylindrique est maillé et le programme calcule les valeurs des différents paramètres en divers points de chaque maille. Il s'assure de la continuité des déplacements entre les différentes mailles. Le calcul des contraintes thermomécaniques se résout en deux temps. Tout d'abord, le calcul de la carte thermique du barreau est réalisé. Nous avons supposé l'existence d'un régime établi dans le barreau. La résolution du problème thermique est donc faite en régime stationnaire. Pour obtenir un gradient longitudinal constant sur toute la hauteur dans le cas où il n'y a pas de pertes radiales, des conditions aux limites ont été imposées : une température de 1100°C sur la face inférieure du barreau et une température de 1400°C sur la face supérieure. La hauteur de la pièce détermine alors la valeur du gradient. Les distributions de température étant calculées, les calculs de contraintes sont effectués. Le programme doit résoudre un certain nombre d'équations : les équations de définitions des déformations reliant celles-ci aux déplacements, les équations d'équilibre des contraintes, les équations reliant les contraintes aux déformations. En outre, le système doit satisfaire à des conditions aux limites : la contrainte radiale est nulle sur le pourtour du barreau ; la contrainte axiale est nulle aux extrémités puisque le barreau est libre de se déformer. D'autre part, pour des raisons de symétrie, les déplacements sur l'axe du cylindre sont nuls suivant le rayon.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

[M] 1991 SIREDEY, N. 2

**SOLIDIFICATION DE MONOGRAINS BASE NICKEL :
MICROSTRUCTURE ET QUALITE CRISTALLINE****THESE**

Présentée devant

L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
pour obtenir le titre de
DOCTEUR DE L'I.N.P.L
(Science et Génie des Matériaux)

par

Nathalie Siredey
(Ingénieur INSA-Lyon)

soutenue le **13 décembre 1991** devant la Commission d'Examen**JURY**

MM	G. BECK	Président
	M. RAPPAZ	Rapporteur
Mme	H. BURLET	Rapporteur
MM.	J. PHILIBERT	Examinateur
	G. LESOULT	Examinateur
	R. TINTILLIER	Examinateur
	J. LACAZE	Directeur de thèse

FIGURES

TABLE DES FIGURES

II-1 : Photographie en microscopie à balayage d'un ensemble de dendrites colonnaires [4].

II-2 : Micrographie optique d'une section transversale, sur laquelle les axes primaires de dendrites apparaissent comme des croix blanches définies par les axes secondaires.

II-3 : Illustration de la définition de sursaturation Ω à la pointe de la dendrite. A l'interface, la composition du liquide est en équilibre avec celle du solide [6].

II-4 : Rayon à la pointe de la dendrite en fonction des paramètres de croissance G et V obtenu dans le cas du critère de stabilité marginale et pour une pointe de dendrite hémisphérique [6]. Les courbes en pointillés sont prédites par une analyse plus détaillée de Trivedi [18].

II-5 : Pour une sursaturation donnée d'une pointe de dendrite hémisphérique, valeurs possibles de R et V d'après la relation d'Ivantsov limitée par la capillarité [6].

II-6 : Changement de forme des structures de solidification quand la vitesse de croissance V augmente (du stade 1 à 4) [3].

II-7 : Croissance dendritique expliquée par la disparition progressive des plans de croissance plus rapide [36].

II-8 : Formes de gouttelettes en équilibre montrant de faibles anisotropies de la tension de surface solide/liquide. [41].

II-9 : Variation de R , donnée par le critère de stabilité marginale, et de l'espacement primaire avec la vitesse d'avancée du front de solidification [6].

II-10 : Dendrites dans un mélange tétrabromure de carbone et salol. La vitesse de croissance est augmentée entre A' et B' [56].

II-11 : Schéma montrant le mécanisme de multiplication par lequel les dendrites remplissent l'espace lorsque leur direction de croissance n'est pas parallèle aux bords de la pièce [57].

II-12 : Succinonitrile-1,4wt% eau. $V = 8,9 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $G = 68,9 \text{ K}\cdot\text{cm}^{-1}$. La direction de croissance des dendrites est différente de la direction du gradient thermique maximal qui dicte la forme macroscopique du front de solidification [59].

II-13 : Arrangement régulier de dendrites cellulaires dans un acier, sur section transversale [60].

II-14 : Dans un acier, alignements de dendrites décalés d'un demi-espacement primaire, vus sur section transversale [60].

II-15 : Schéma de la forme de la zone fondue du cordon de soudure montrant les directions de croissance privilégiées suivant l'orientation locale de la normale au front de solidification locale [63].

II-16 : Schéma du modèle de dendrites en plateaux (le plateau est perpendiculaire à la feuille) utilisé pour le calcul des microségrégations [68].

II-17 : Topographie X en balayage angulaire d'une section transversale d'un barreau cylindrique tiré suivant [001] [73].

II-18 : Arrangement dendritique sur une section transversale dans le barreau, près du germe [28].

II-19 : Section transversale d'un barreau cylindrique solidifié sous faible gradient thermique et forte vitesse de tirage [74].

II-20 : Topographie X d'une section [023] d'un monocristal dendritique Ni-Cr-C. Radiation Cu-K α , réflexion [1 $\bar{1}$ 3] [57].

II-21 : Micrographie d'une section transversale d'un bicristal dendritique d'alliage Ni-Cr-C réalisé par solidification dirigée et distribution des orientations (001) des dendrites correspondantes [79].

II-22 : Profil de diffraction X de sections transversales de trois barreaux avec des axes de croissance différents [75].

II-23 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous faible gradient et faible vitesse [74].

II-24 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous faible gradient et forte vitesse [74].

II-25 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous fort gradient et faible vitesse [74].

III-1 : Variation de composition dans le solide entre le centre de l'axe primaire et le bord de la dendrite, pour un alliage base nickel [53]. Analyses réalisées par balayage le long de bras secondaires.

III-2 : Chapelets de précipités (en noir) le long de la surface séparant deux axes dendritiques.

III-3 : Morphologie des précipités (en noir) dans les zones de fin de solidification.

III-4 : Morphologie des précipités (en noir) au coeur de la dendrite.

III-5 : Diagramme représentatif de la solidification dirigée de l'AM1, en fonction de la vitesse de solidification V et du gradient thermique G entre liquidus et solidus [1].

III-6 : Schéma des éprouvettes à deux branches, à gauche, et position dans le four en vue de dessus, à droite.

III-7 : Schéma des éprouvettes à quatre branches et position dans le four.

III-8 : Cercle de focalisation de la microsonde [90].

III-9 : Empreintes de microdureté et vérification a posteriori du point d'impact du faisceau de la microsonde.

III-10 : Attaque macrographique d'une couronne (éprouvette à quatre branches) sur laquelle on voit un joint de grain par différence de réflectivité.

III-11 : Micrographie d'une section longitudinale de la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches montrant un effet de moiré.

III-12 : Modèle de réseau dendritique utilisé par Rappaz et Blank [57,58]. Le réseau est vu en perspective à gauche; sa trace sur une section transversale apparaît à droite.

III-13 : Schéma montrant la trace sur une section transversale du réseau utilisé.

III-14 : Simulation des figures de moirés visibles sur les micrographies de coupes longitudinales.

III-15 : Loi de Bragg.

III-16 : Spectre du rayonnement synchrotron : flux de photons produits en fonction de leur énergie [94].

III-17 : Tache de diffraction (113) en topographie polychromatique d'une section $(11\bar{6})$ [4].

III-18 : Schéma du montage réalisé en topographie monochromatique.

III-19 : Projection stéréographique sur le plan [001] dans un cristal cfc des directions les plus importantes en topographie X monochromatique.

III-20 : Profil de diffraction X d'une partie de section transversale [4].

III-21 : Représentation schématique du diffractomètre γ [74].

III-22 : Désorientation mesurée en diffraction γ .

III-23 : Paramètres mesurés sur les profils de diffraction γ .

IV-1 : Micrographie longitudinale du bord d'une zone d'augmentation de section dans l'éprouvette à deux branches.

IV-2 : Micrographie d'une demi-section transversale dans la zone de séparation ménagée de l'éprouvette à deux branches.

IV-3 : Section longitudinale dans une zone de séparation de l'éprouvette à quatre branches.

IV-4 : Section transversale dans une zone de séparation de l'éprouvette à quatre branches.

IV-5 : Schéma d'une portion de couronne d'une éprouvette à quatre branches.

IV-6 : Micrographies de sections transversales prises à différentes hauteurs dans l'une des branches (branche 2) de l'éprouvette à deux branches.

IV-7 : Distribution du nombre de premiers voisins sur une portion de section transversale d'une branche de l'éprouvette à deux branches.

IV-8 : Sur la même section que celle de la figure IV-7, répartition du nombre de paires de premiers voisins en fonction de l'angle dans le plan de la section de la direction de ces paires.

IV-9 : Evolution de la densité d'axes en fonction de la distance à la sortie de sélecteur, dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches, pour la zone centrale (région A) et la zone médiane (région B).

IV-10 : Evolution avec la distance à la sortie de sélecteur de la densité d'axes primaires moyenne, dans l'éprouvette à deux branches.

IV-11 : Micrographie d'une section transversale d'une branche tangentielle d'une éprouvette à quatre branches.

IV-12 : Evolution avec la distance à la sortie de sélecteur, dans les branches de l'éprouvette à deux branches, à section transversale constante, de la densité d'axes primaire locale.

IV-13 : Teneurs massiques en tantale et en tungstène au centre d'axes primaires, sur différentes sections transversales de l'éprouvette à deux branches dont la distance à la sortie de sélecteur est indiquée.

IV-14 : Teneurs massiques en tantale et en tungstène de centres d'axes primaires sur différentes sections transversales de l'éprouvette à quatre branches.

IV-15 : Sursaturation Ω_i mesurée sur différentes éprouvettes et différentes sections.

IV-16 : Courbes théoriques d'évolution de la sursaturation et de la surfusion à la pointe de la dendrite dans l'AM1 en fonction de la vitesse pour divers gradients thermiques longitudinaux, d'après les modèles d'Ivantsov et Trivedi associés au critère de stabilité marginale.

IV-17 : Valeur des sursaturations mesurées Ω_i en fonction du paramètre de diffusion ($\alpha.k$).

IV-18 : Relation entre les coefficients de variation des mesures et les coefficients de partage à l'équilibre, pour deux plages de section transversales, situées dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches.

IV-19 : Teneur pondérale de divers éléments d'alliage en fonction de la teneur correspondante en tantale, lors d'un quadrillage effectué sur trois plages de densités d'axes différentes.

IV-20 : Courbes expérimentales et théoriques de l'évolution de la fraction de solide en fonction de la température dans le cas d'un alliage ternaire base nickel [53].

IV-21 : Comparaison de différents modèles de l'évolution de la fraction de solide en fonction de la température, dans le cas de l'AM1.

V-1 : Topographie X en faisceau polychromatique d'une section longitudinale. L'axe [001] est horizontal.

V-2 : Topographies monochromatiques réalisées sur une section (001) et pour des réflexions 113 [4].

V-3 : Série de topographies monochromatiques d'une section transversale de la branche 1 de l'éprouvette à deux branches.

V-4 : Topographie monochromatique réalisée par réflexion (113) sur une section (100) d'un échantillon ayant subi un traitement thermique d'homogénéisation des microségrégations [4].

V-5 : Profils de diffraction gamma obtenus sur une portion de branche de l'éprouvette à deux branches pour les trois axes de rotation.

V-6 : Profils de diffraction gamma obtenus sur deux branches d'une éprouvette à quatre branches pour les trois axes de rotation.

V-7 : Profils de diffraction gamma sur une portion de la branche 1 de l'éprouvette à deux branches.

V-8 : Séries de topographies monochromatiques d'une section transversale dans la branche 2 de l'éprouvette à deux branches.

V-9 : Série de topographies monochromatiques d'une section transversale dans la branche 1 de l'éprouvette à deux branches.

V-10 : Profil de diffraction X réalisé sur une portion de section transversale dans une branche de l'éprouvette à deux branches, et topographies pour l'angle correspondant [4].

V-11 : Distribution de la distance angulaire moyenne p en fonction de la direction de la paire de dendrites sur le plan de la section.

V-12 : Evolution de la qualité cristalline dans la branche 2 de l'éprouvette à deux branches en fonction de la distance à la sortie de sélecteur.

V-13 : Evolution de la qualité cristalline avec la distance à la sortie de sélecteur dans une branche de l'autre éprouvette à deux branches.

V-14 : Profils de diffraction γ de la fin des sélecteurs pour les axes de rotation [010] et [100].

V-15 : Profils de diffraction γ de la fin du sélecteur de l'éprouvette 5 pour les axes de rotation [010] et [100].

V-16 : Séries de topographies X d'une demi-section transversale d'une zone à séparation ménagée, réalisées autour d'axes de rotation à 90° l'un de l'autre.

V-17 : Schéma de formation des sous-grains dans une éprouvette à zone de séparation ménagée.

V-18 : Projections stéréographiques de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches des éprouvettes à quatre branches.

V-19 : Projection stéréographique de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches de l'éprouvette 5.

V-20 : Profils de diffraction γ de la fin du sélecteur sélectionnant à 45° .

V-21 : Projection stéréographique de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches en haut des branches de l'éprouvette à sélection à 45° .

VI-1 : Schéma de formation possible d'un seul sous-grain par branche d'éprouvette, dans le cas de l'éprouvette à deux branches.

VI-2 : Cartes d'isocontraintes dans une portion de barreau cylindrique, de hauteur 15 cm et de rayon 1,5 cm, soumis à un gradient de température de 20 K/cm.

VI-3 : Evolution de la contrainte équivalente pour différents barreaux en fonction de la température.

VI-4 : Schéma de formation des désorientations entre branches dans le cas de l'éprouvette à quatre branches, suivant l'hypothèse d'un retrait contrarié aux extrémités de la zone de séparation.

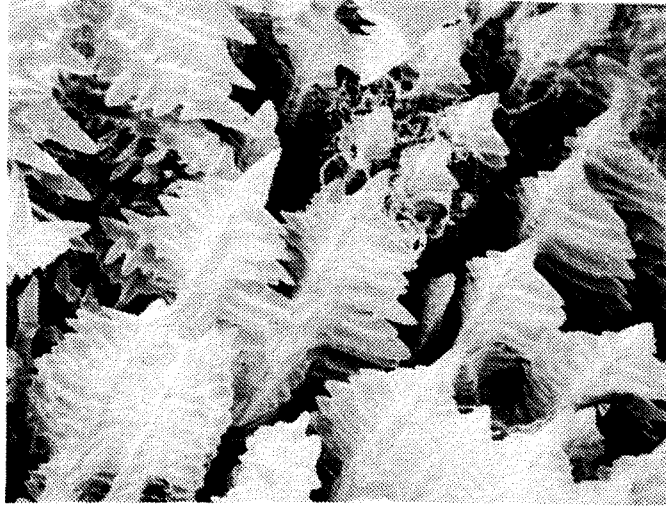


Figure II-1 : Photographie en microscopie à balayage d'un ensemble de dendrites colonnaires, de distance moyenne entre troncs primaires de l'ordre de $350\ \mu\text{m}$ (par courtoisie de E. Gardaix). La pointe de la dendrite croît vers le liquide parallèlement à la direction $[001]$ tandis que les bras secondaires se développent selon les directions perpendiculaires [4].

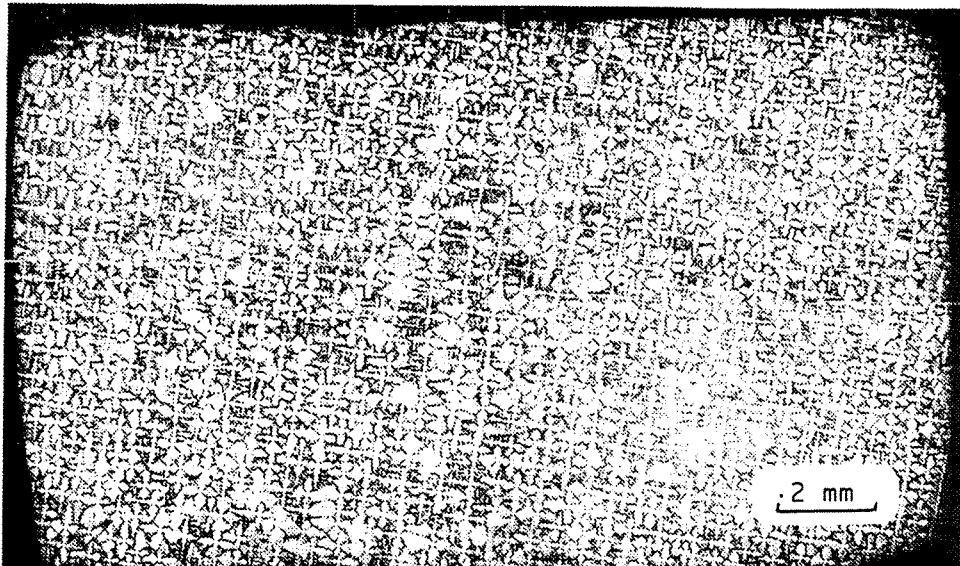


Figure II-2 : Micrographie optique d'une section transversale, sur laquelle les axes primaires de dendrites apparaissent comme des croix blanches définies par les axes secondaires.

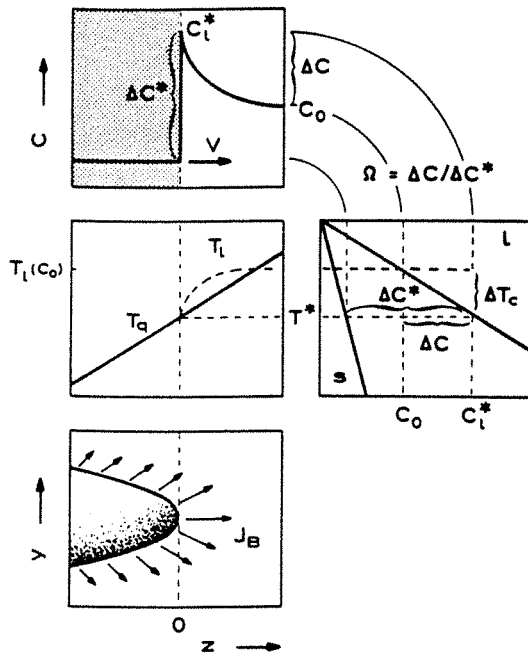


Figure II-3 : Illustration de la définition de sursaturation Ω à la pointe de la dendrite. Un flux de soluté J_B existe autour de la pointe de la dendrite qui conduit à la présence d'une couche limite de diffusion solutale. A l'interface, la composition du liquide est en équilibre avec celle du solide [6].

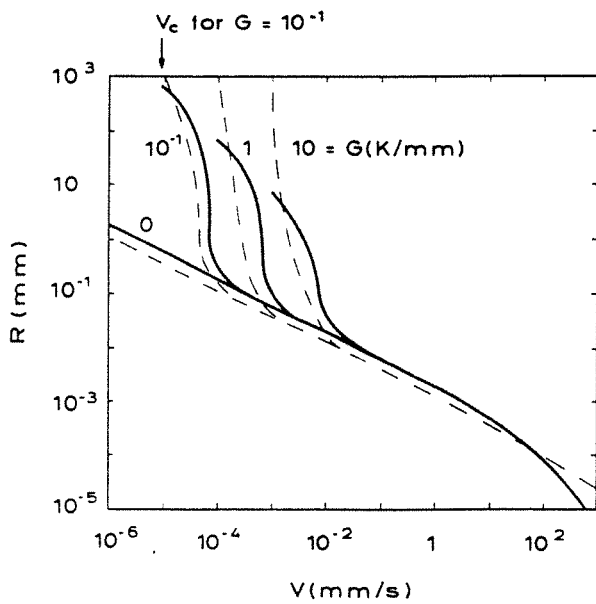


Figure II-4 : Rayon à la pointe de la dendrite en fonction des paramètres de croissance G et V obtenu dans le cas du critère de stabilité marginale et pour une pointe de dendrite hémisphérique [6]. Les courbes en pointillés sont prédites par une analyse plus détaillée de Trivedi [18].

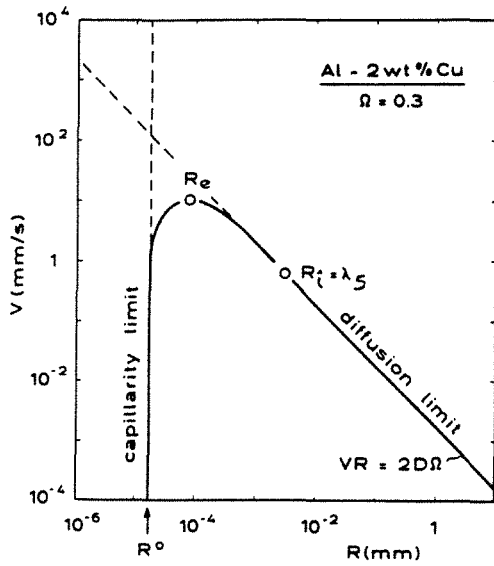


Figure II-5 : Pour une sursaturation donnée d'une pointe de dendrite hémisphérique, valeurs possibles de R et V d'après la relation d'Ivantsov limitée par la capillarité. R_i est le rayon donné par le critère de stabilité marginale et R_e , par le critère de surfusion minimum [6].

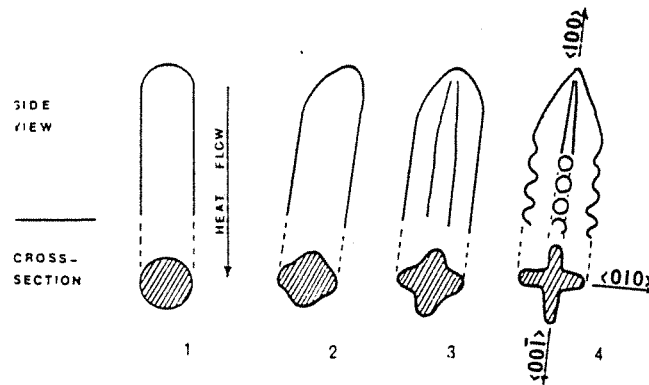


Figure II-6 : Changement de forme des structures de solidification quand la vitesse de croissance V augmente (du stade 1 à 4) [3].

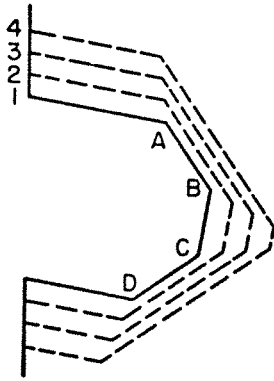


Figure II-7 : Croissance dendritique expliquée par la disparition progressive des plans de croissance plus rapide [36].

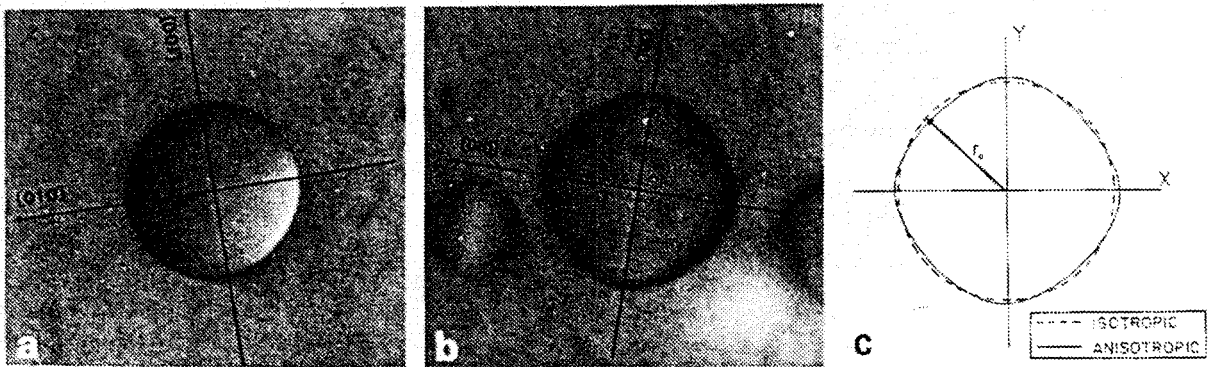


Figure II-8 : Formes de gouttelettes en équilibre montrant de faibles anisotropies de la tension de surface solide/liquide. (a) SCN avec une anisotropie de 0,5% ; (b) PVA avec une anisotropie de 5% ; (c) schéma du profil des gouttelettes montrant des distorsions dans les directions $\langle 001 \rangle$ [41].

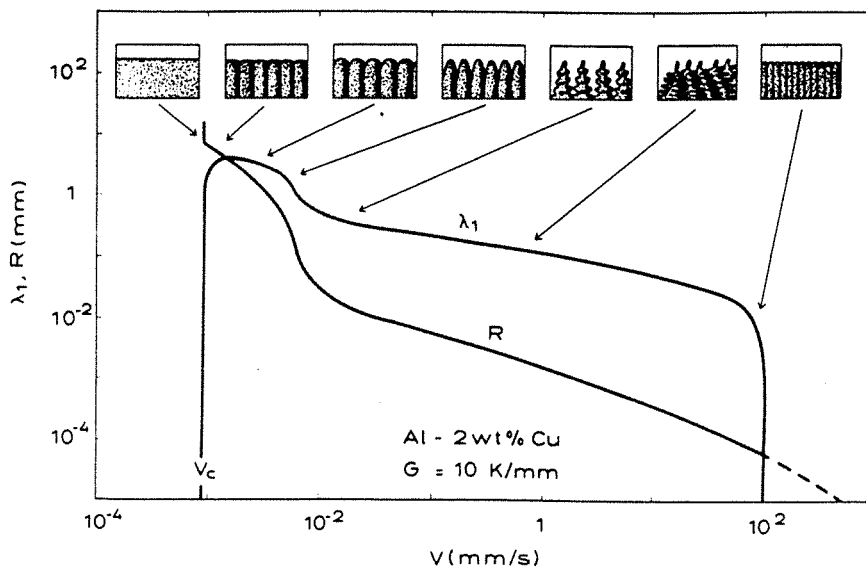


Figure II-9 : Variation de R , donnée par le critère de stabilité marginale, et de l'espacement primaire avec la vitesse d'avancée du front de solidification [6].

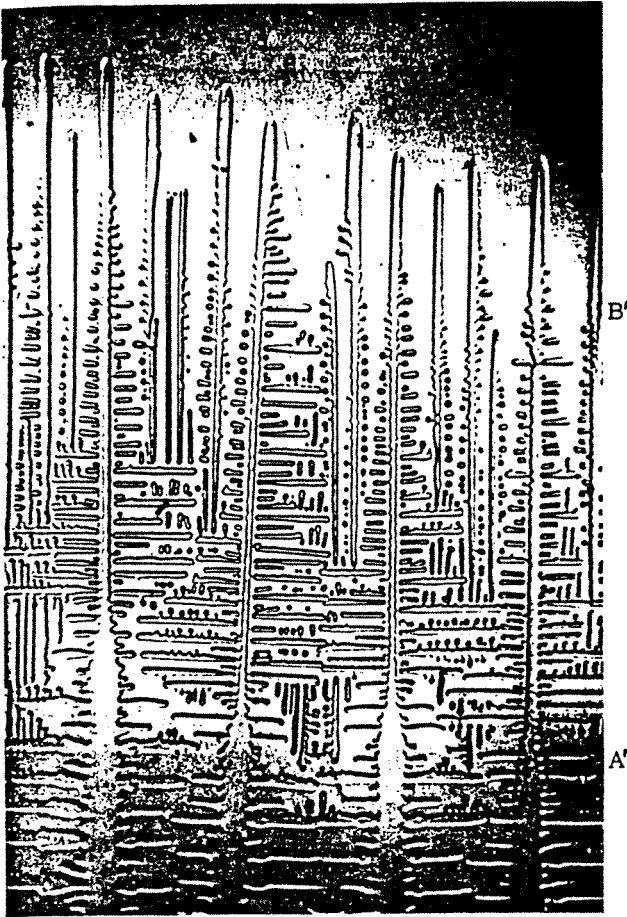
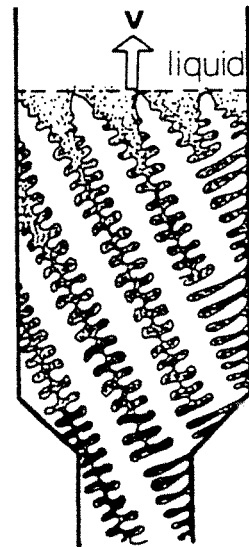


Figure II-10 : Dendrites dans un mélange tetrabromure de carbone et salol. La vitesse de croissance est augmentée entre A' et B' [56].

Figure II-11 : Schéma montrant le mécanisme de multiplication par lequel les dendrites remplissent l'espace lorsque leur direction de croissance n'est pas parallèle aux bords de la pièce [57].



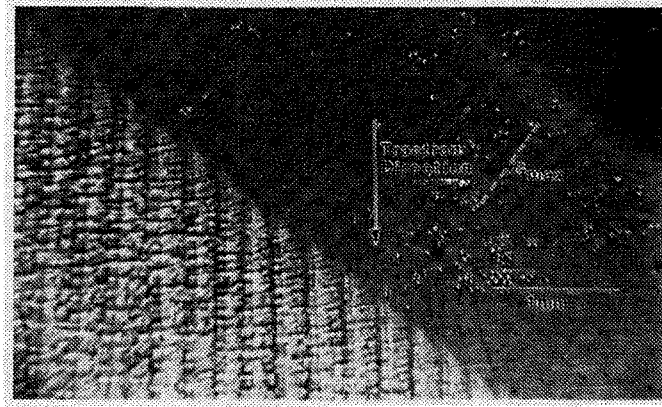


Figure II-12 : Succinonitrile-1,4wt% eau. $V = 8,9 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $G = 68,9 \text{ K}\cdot\text{cm}^{-1}$. La direction de croissance des dendrites est différente de la direction du gradient thermique maximal qui dicte la forme macroscopique du front de solidification [59].

Figure II-13 : Arrangement régulier de dendrites cellulaires dans un acier, sur section transversale [60].

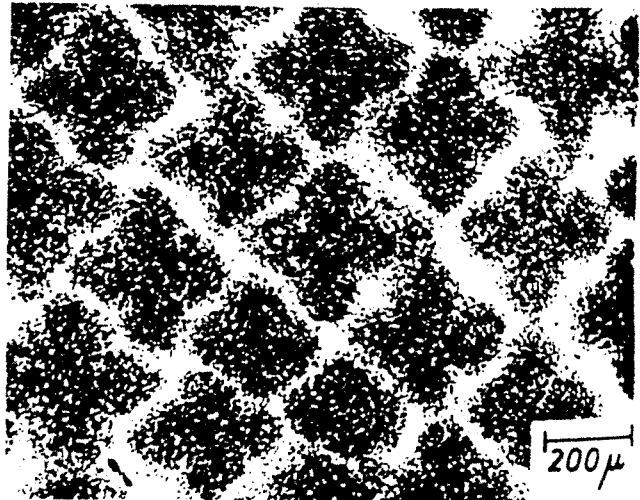
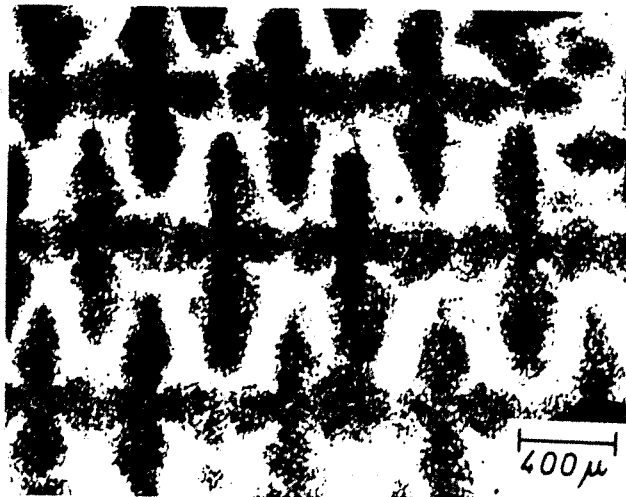


Figure II-14 : Dans un acier, alignements de dendrites décalés d'un demi-espacement primaire, vus sur section transversale [60].



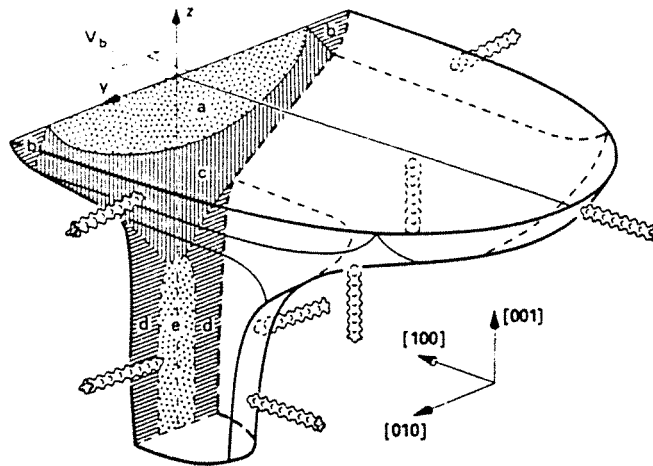


Figure II-15 : Schéma de la forme de la zone fondue du cordon de soudure montrant les directions de croissance privilégiées suivant l'orientation locale de la normale au front de solidification locale. Cette orientation est parallèle à la direction locale du gradient thermique [63].

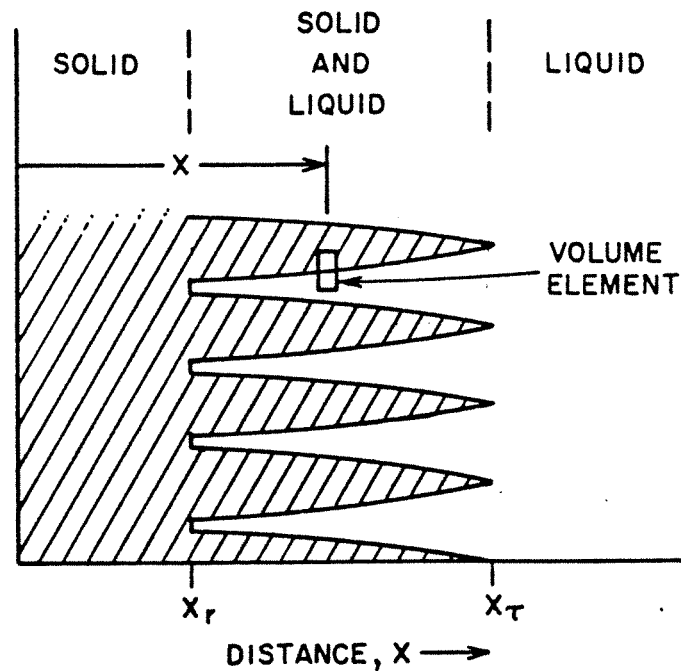


Figure II-16 : Schéma du modèle de dendrites en plateaux (le plateau est perpendiculaire à la feuille) utilisé pour le calcul des microségrégations [68]. L'élément de volume dans lequel se fait le calcul est représenté.

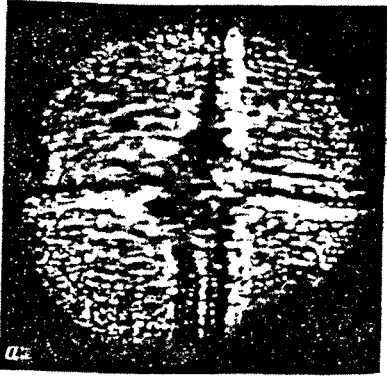


Figure II-17 : Topographie X en balayage angulaire d'une section transversale d'un barreau cylindrique tiré suivant [001] [73].

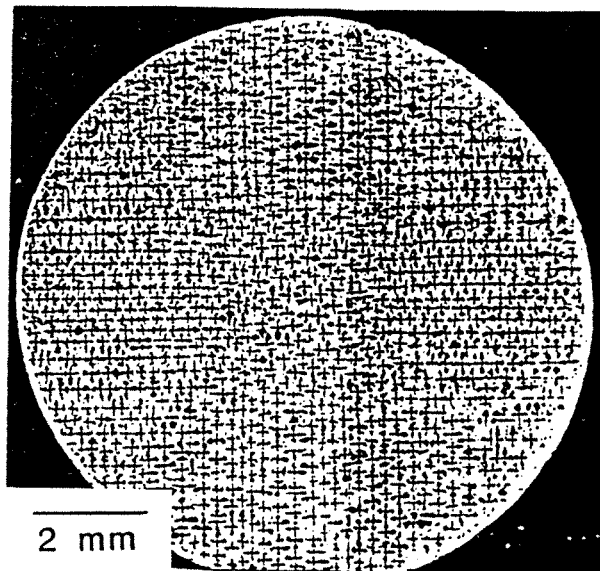


Figure II-18 : Arrangement dendritique sur une section transversale dans le barreau, près du germe [28].

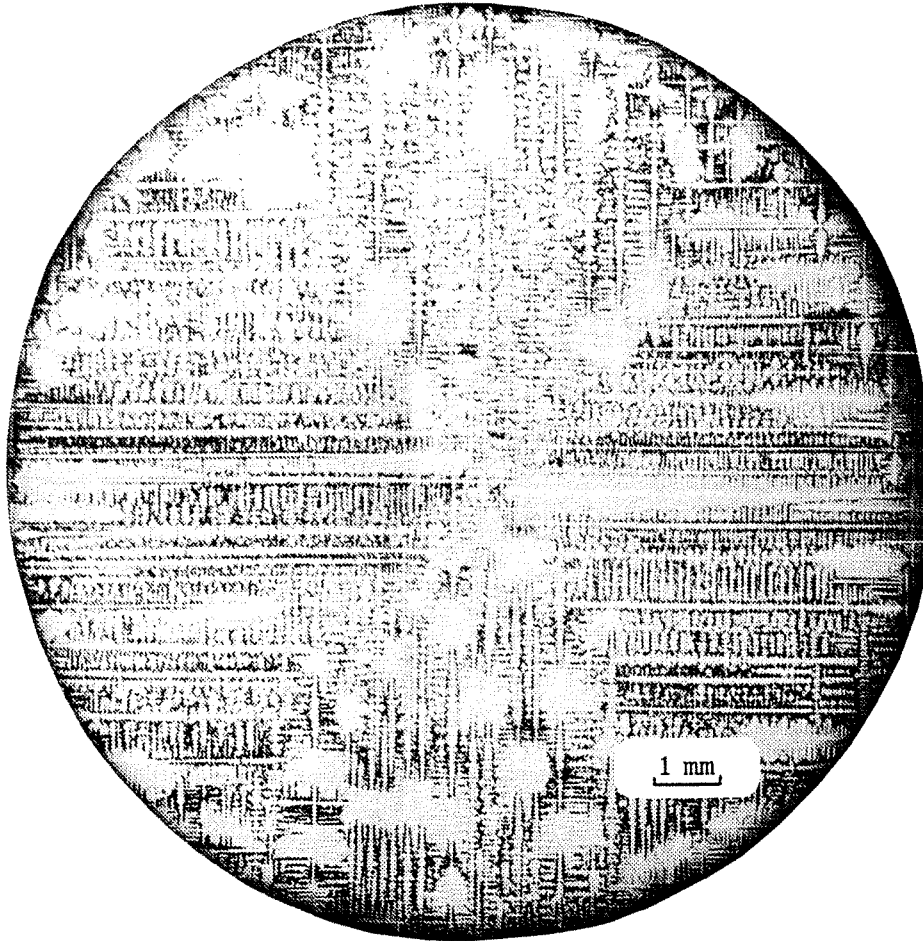


Figure II-19 : Section transversale d'un barreau cylindrique solidifié sous faible gradient thermique et forte vitesse de tirage [74].

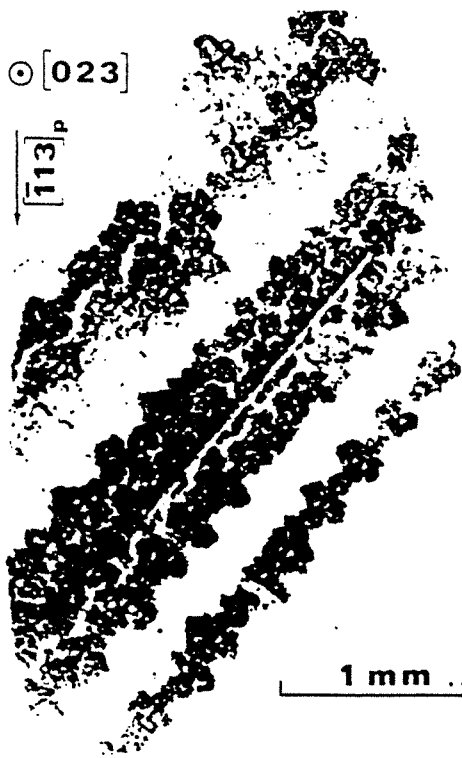


Figure II-20 : Topographie X d'une section $[023]$ d'un monocristal dendritique Ni-Cr-C. Radiation Cu- $K\alpha$, réflexion $[\bar{1}\bar{1}3]$. Des rangées noires de dendrites diffractantes sont séparées par des rangées hors position de diffraction [57].

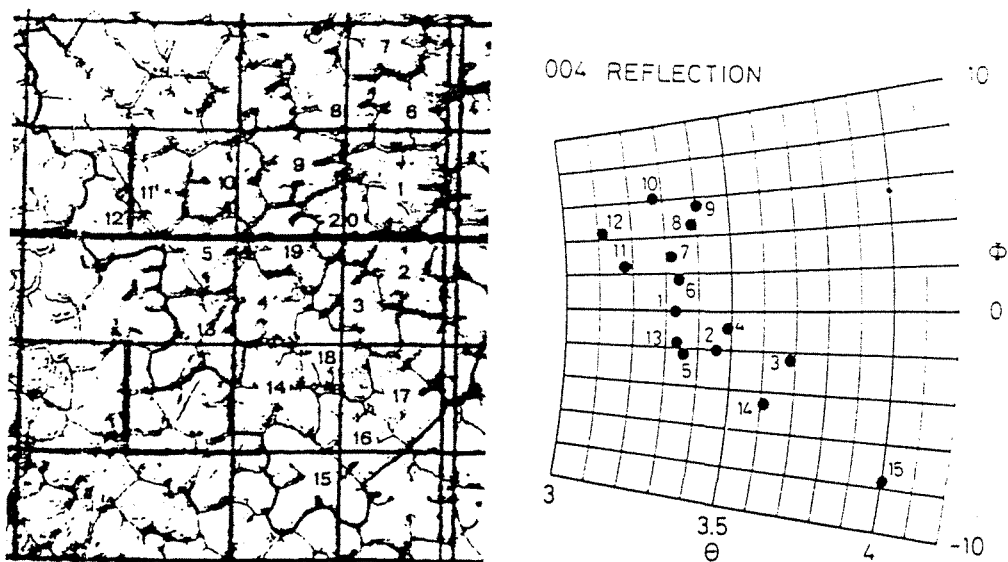


Figure II-21 : Micrographie d'une section transversale d'un bicristal dendritique d'alliage Ni-Cr-C réalisé par solidification dirigée et distribution des orientations (001) des dendrites correspondantes. La largeur de la grille sur la micrographie est de $500 \mu\text{m}$ [79].

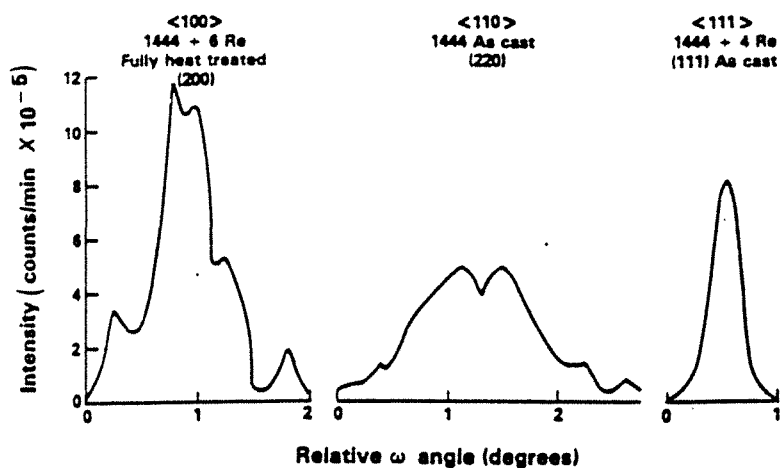


Figure II-22 : Profil de diffraction X de sections transversales de trois barreaux avec des axes de croissance différents [75].

Figure II-23 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous faible gradient et faible vitesse [74].

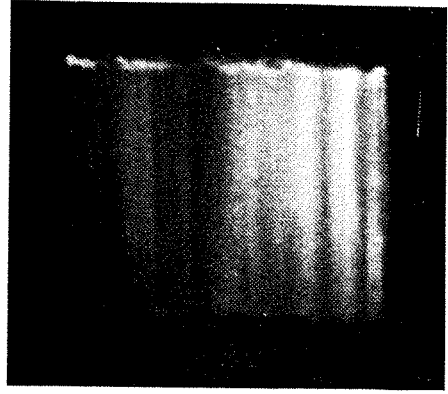


Figure II-24 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous faible gradient et forte vitesse [74].

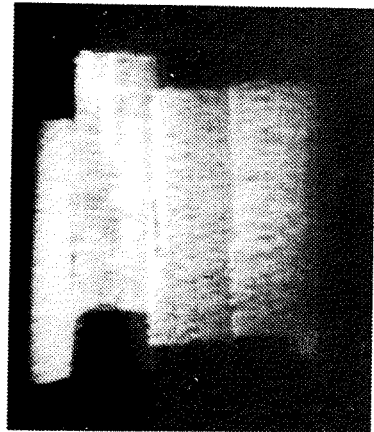
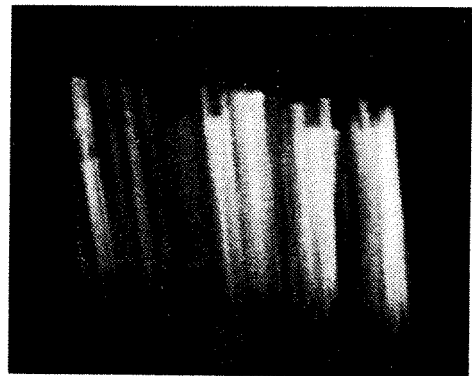


Figure II-25 : Topographie neutron d'une section parallèle à [001] de l'échantillon solidifié sous fort gradient et faible vitesse [74].



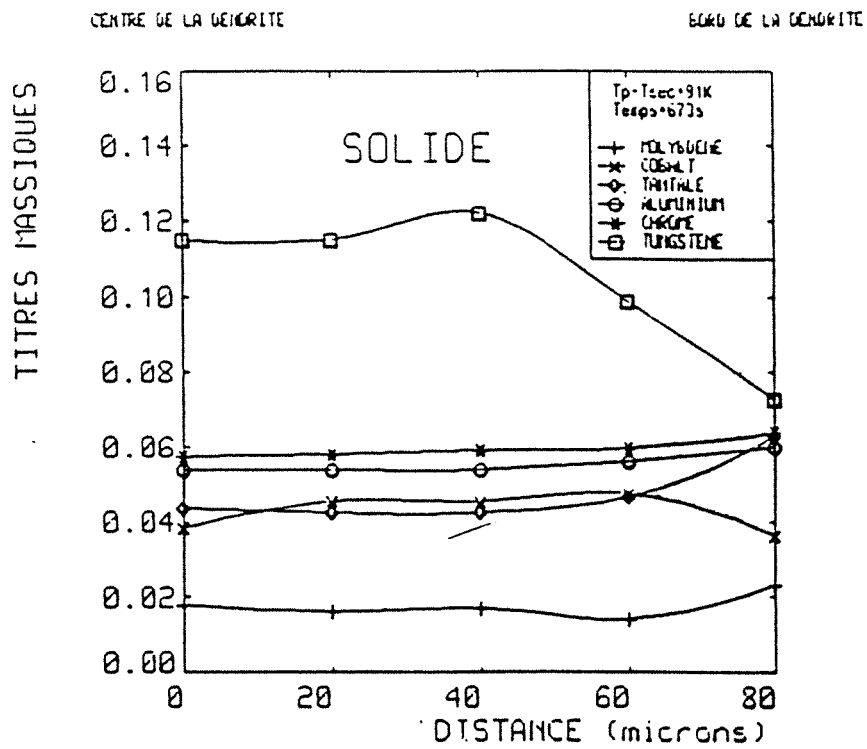


Figure III-1: Variation de composition dans le solide entre le centre de l'axe primaire et le bord de la dendrite, pour un alliage base nickel de composition pondérale nominale : 5,95% Ta, 6,08% Al, 8,73% W, 5,03% Co 5,64% Cr et 1,98% Mo [53]. Analyses réalisées par balayage le long de bras secondaires.

Figure III-2 : Chapelets de précipités (en noir) le long de la surface séparant deux axes dendritiques.

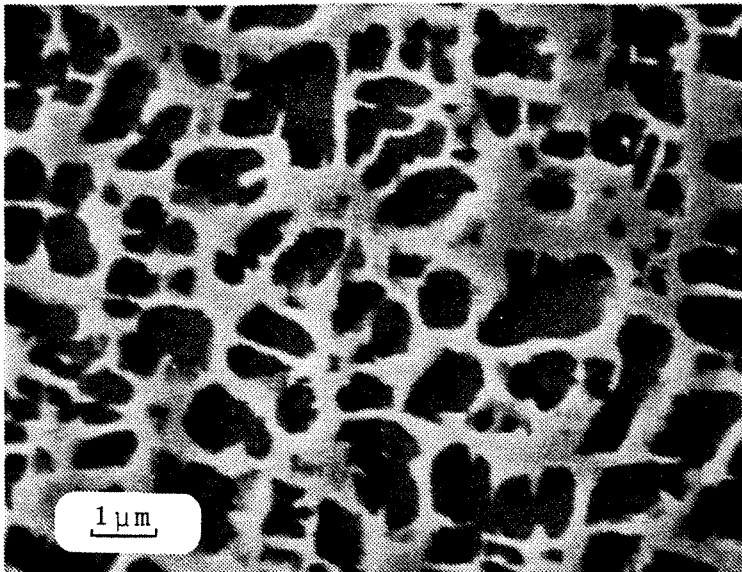
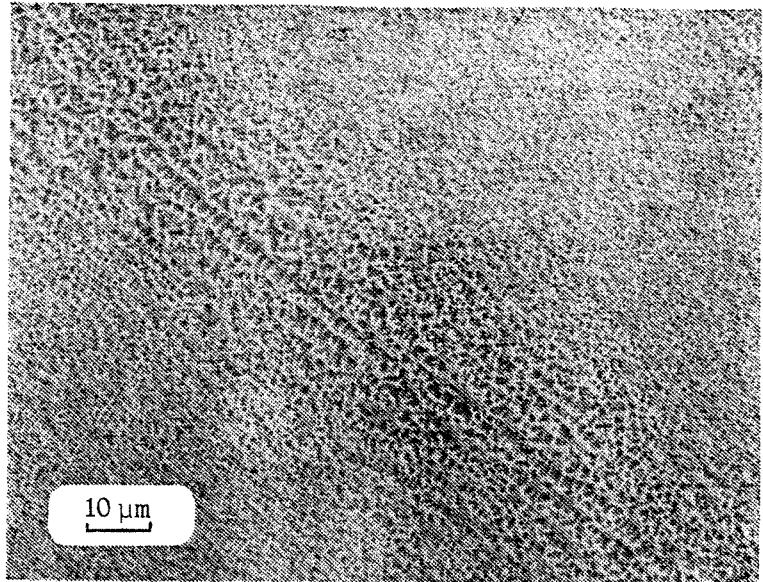
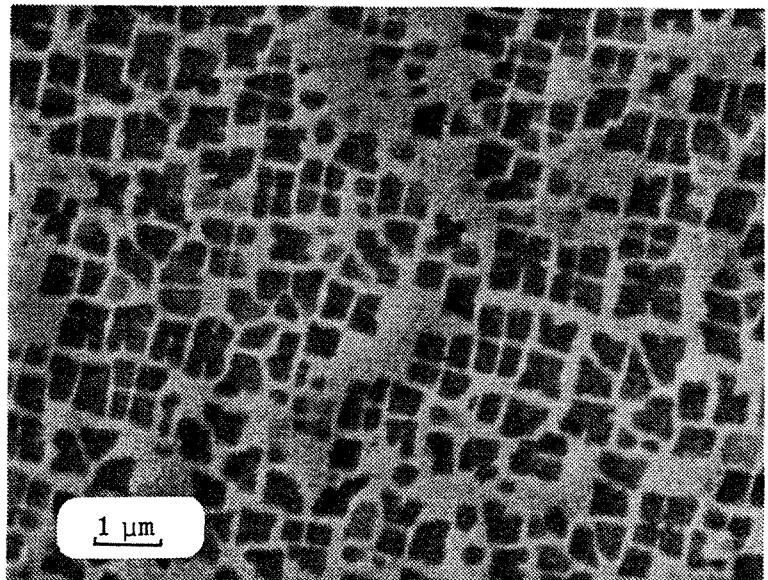


Figure III-3 : Morphologie des précipités (en noir) dans les zones de fin de solidification.

Figure III-4 : Morphologie des précipités (en noir) au coeur de la dendrite.



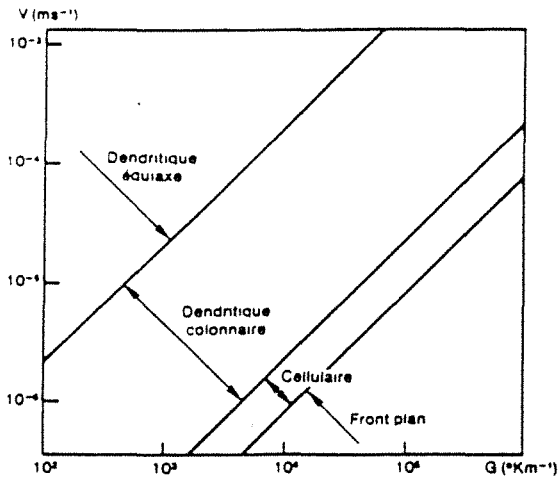


Figure III-5 : Diagramme représentatif de la solidification dirigée de l'AM1, en fonction de la vitesse de solidification V et du gradient thermique G entre liquidus et solidus [1].

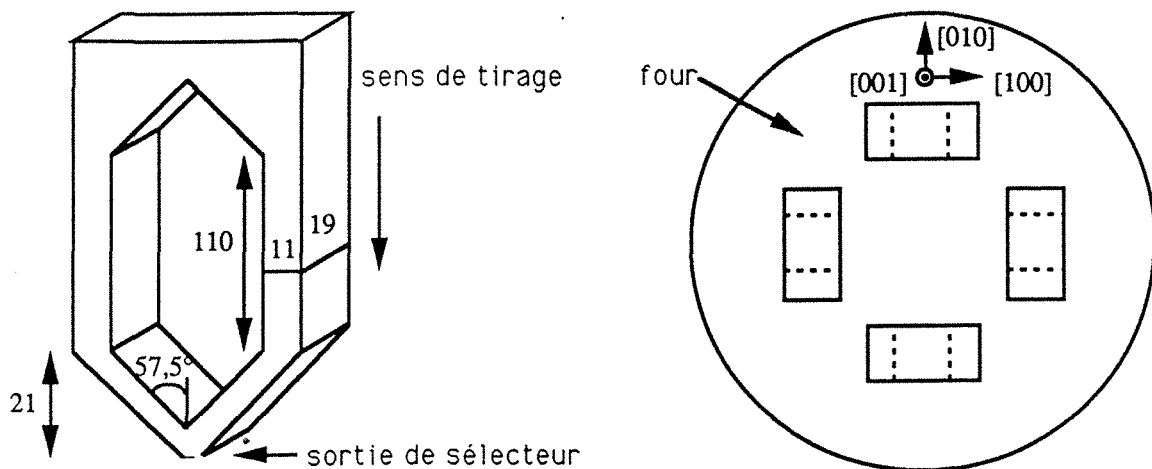


Figure III-6 : Schéma des éprouvettes à deux branches, à gauche, et position dans le four en vue de dessus, à droite. Les dimensions sont en millimètres. A chaque éprouvette est associé un repère cristalllographique tel que la direction $[010]$ soit la plus proche de celle du rayon du four.

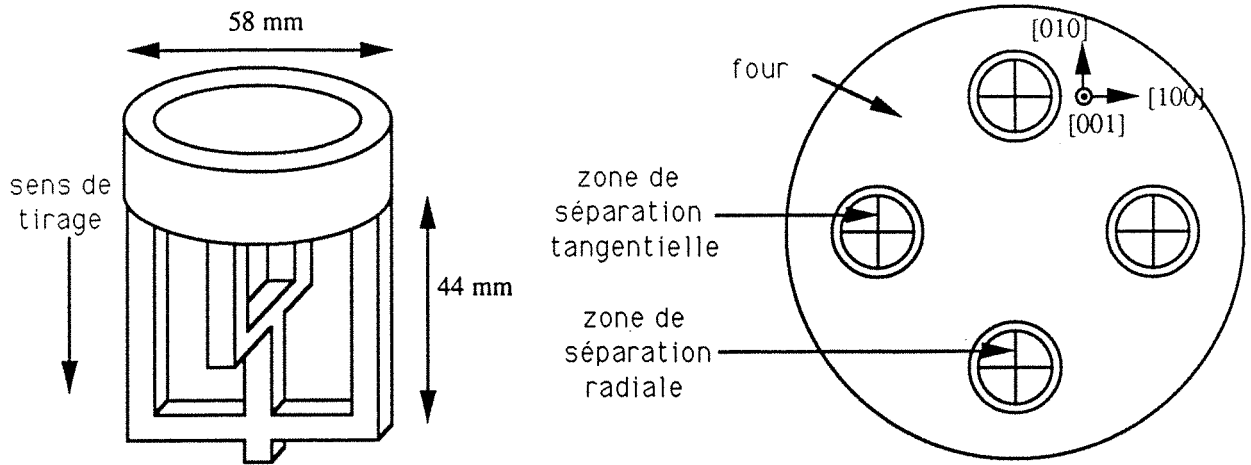


Figure III-7 : Schéma des éprouvettes à quatre branches et position dans le four.

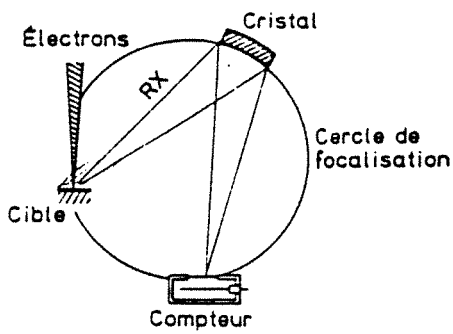


Figure III-8 : Cercle de focalisation de la microsonde [90].

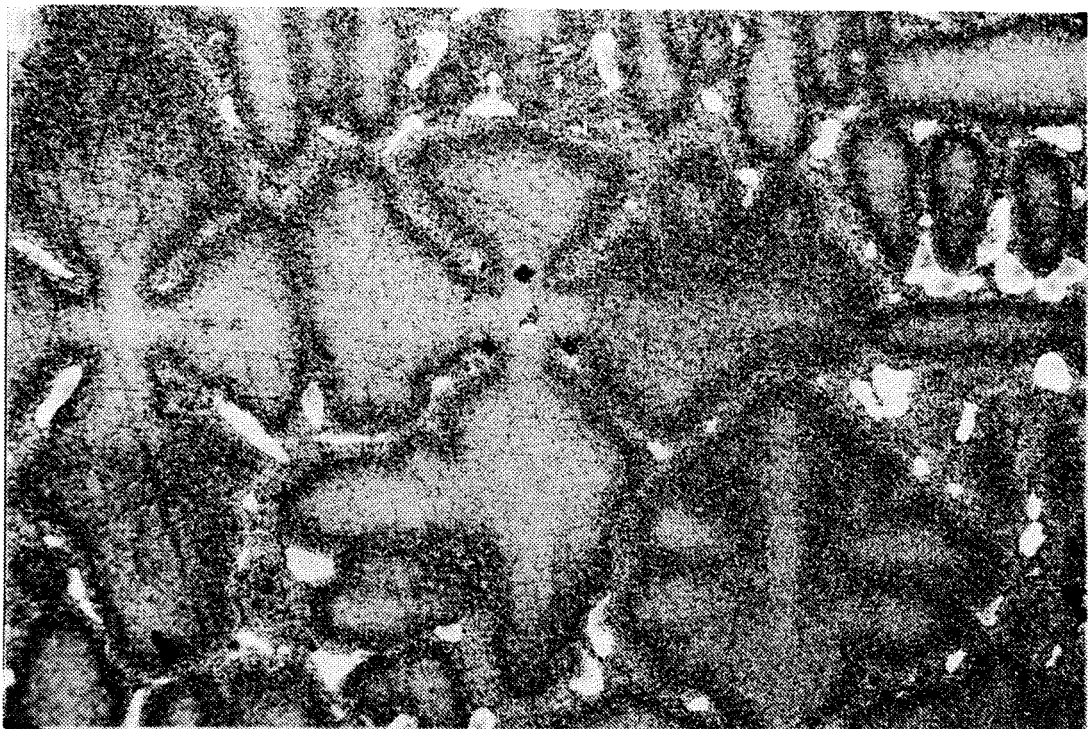


Figure III-9 : Empreintes de microdureté et vérification a posteriori du point d'impact du faisceau de la microsonde.

Figure III-10 : Attaque macrographique d'une couronne (éprouvette à quatre branches) sur laquelle on voit un joint de grain par différence de réflectivité.

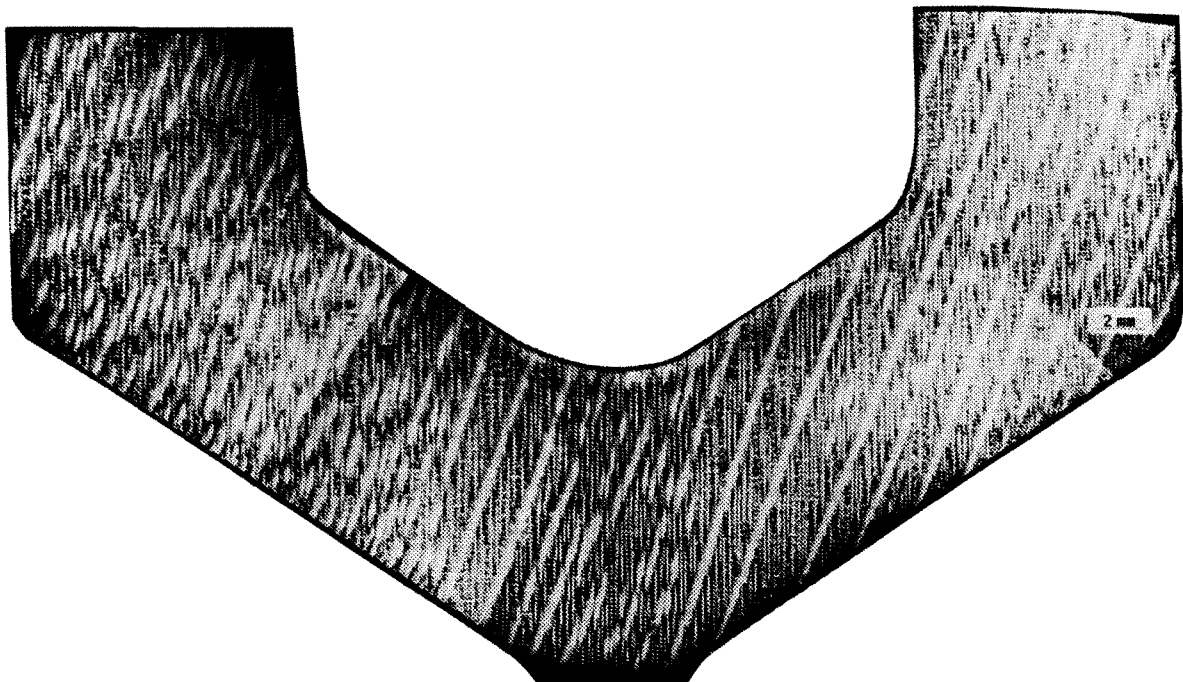
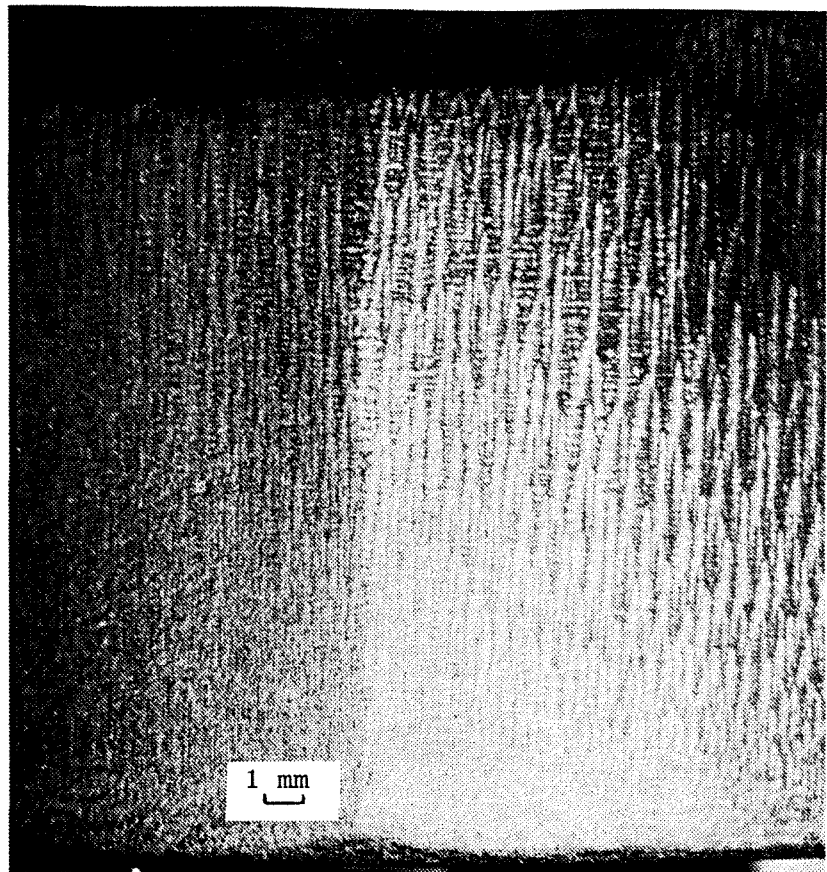


Figure III-11 : Micrographie d'une section longitudinale de la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches montrant un effet de moiré.

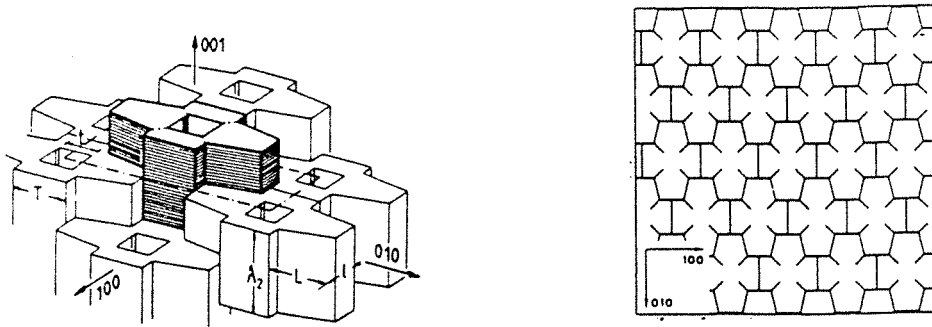


Figure III-12 : Modèle de réseau dendritique utilisé par Rappaz et Blank [57,58]. Le motif du réseau est une portion de dendrite dont la hauteur correspond à l'épaisseur des bras secondaires. Le réseau est vu en perspective à gauche; sa trace sur une section transversale apparaît à droite.

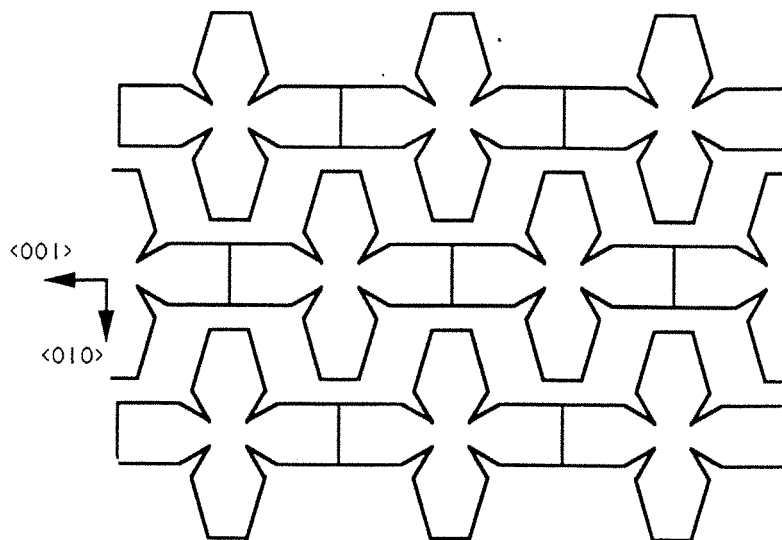


Figure III-13 : Schéma montrant la trace sur une section transversale du réseau utilisé.

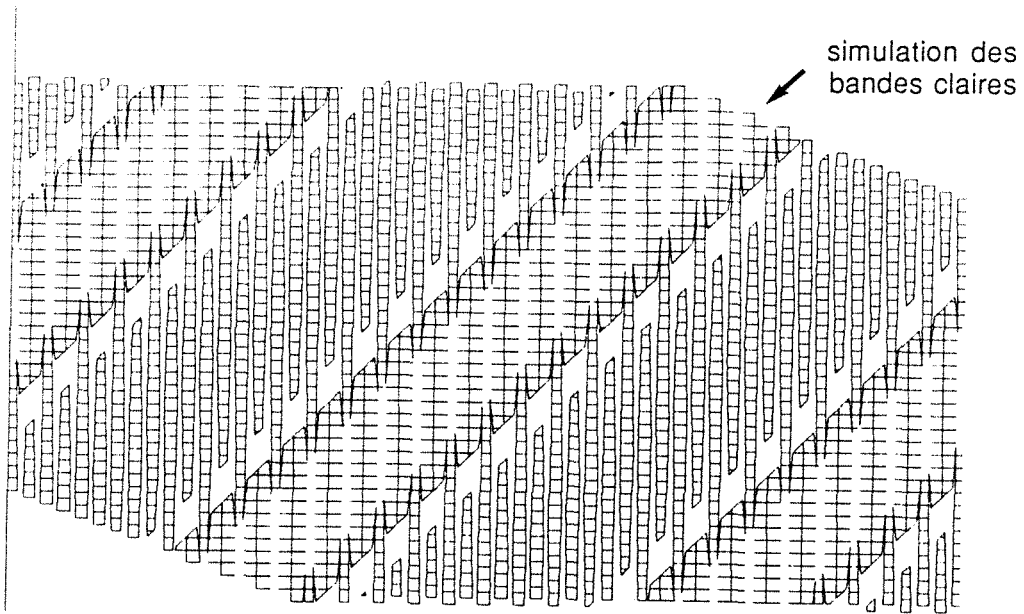


Figure III-14 : Simulation des figures de moirés visibles sur les micrographies de coupes longitudinales.

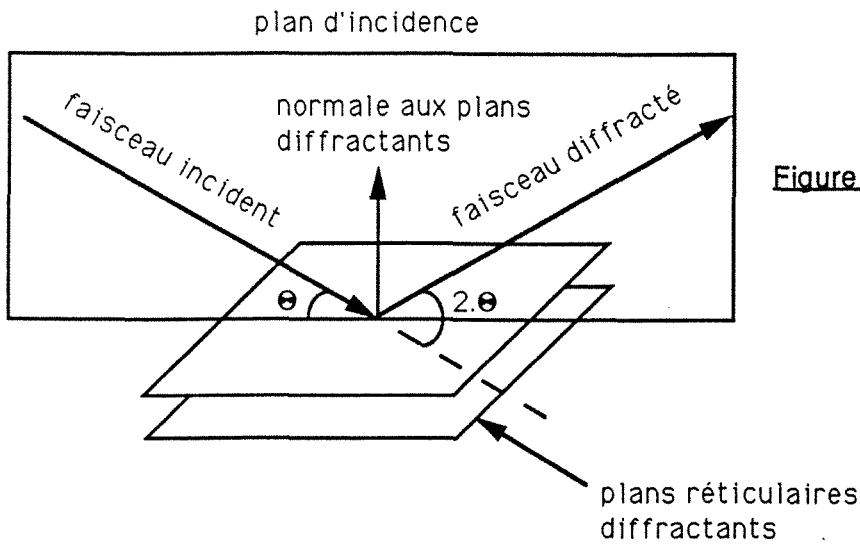


Figure III-15 : Loi de Bragg.

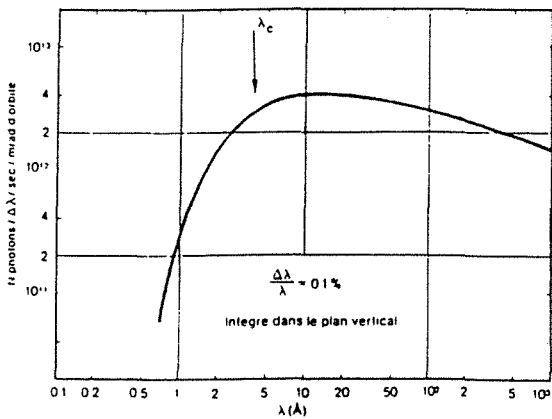


Figure III-16 : Spectre du rayonnement synchrotron : flux de photons produits en fonction de leur énergie [94].

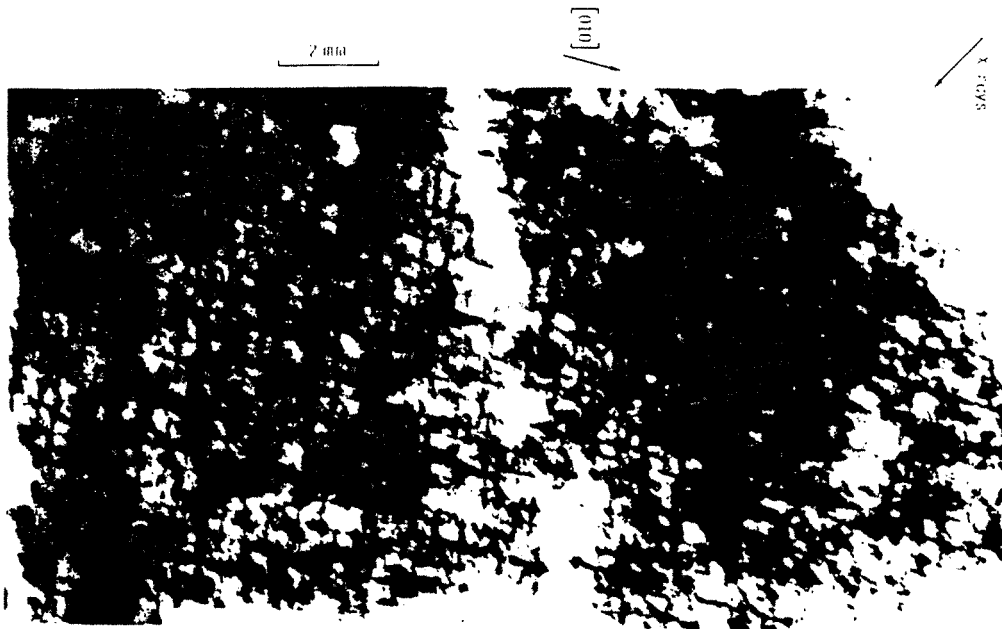


Figure III-17 : Tache de diffraction (113) en topographie polychromatique d'une section $(11\bar{6})$ [4].

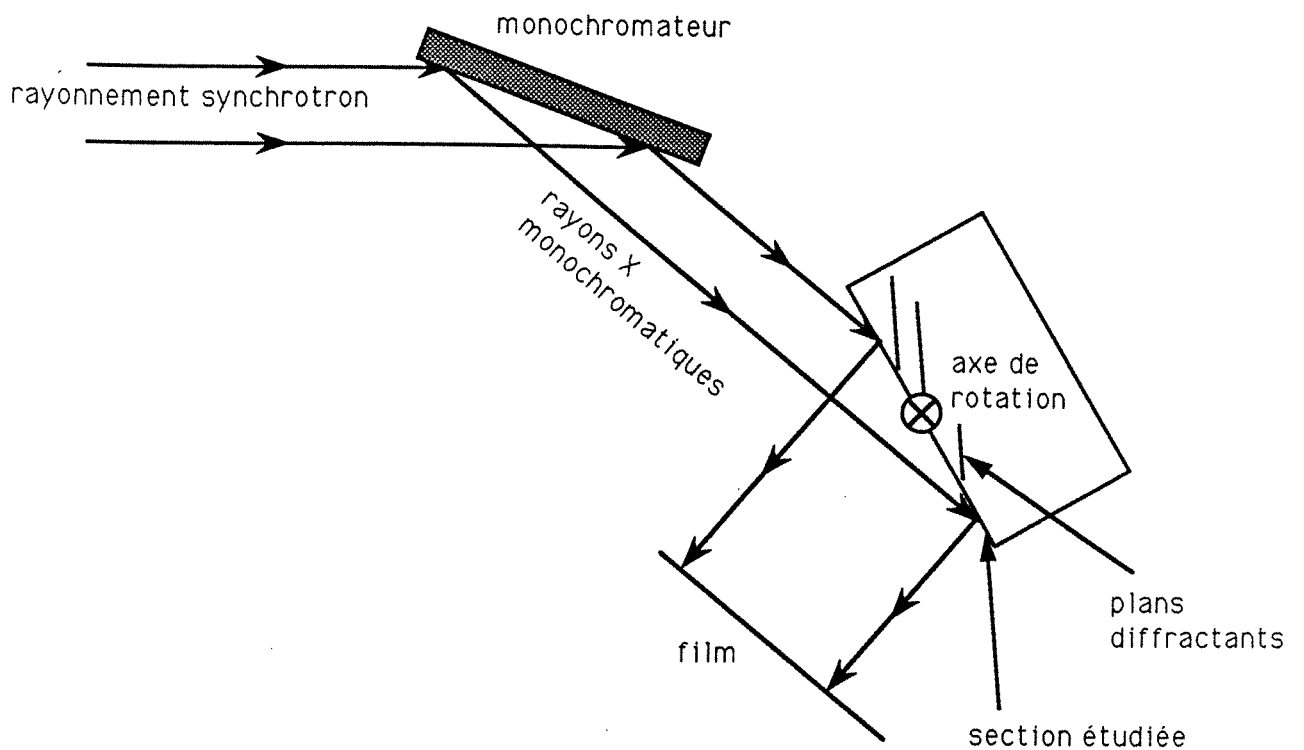


Figure III-18 : Schéma du montage réalisé en topographie monochromatique. Le plan d'incidence est le plan de la feuille.

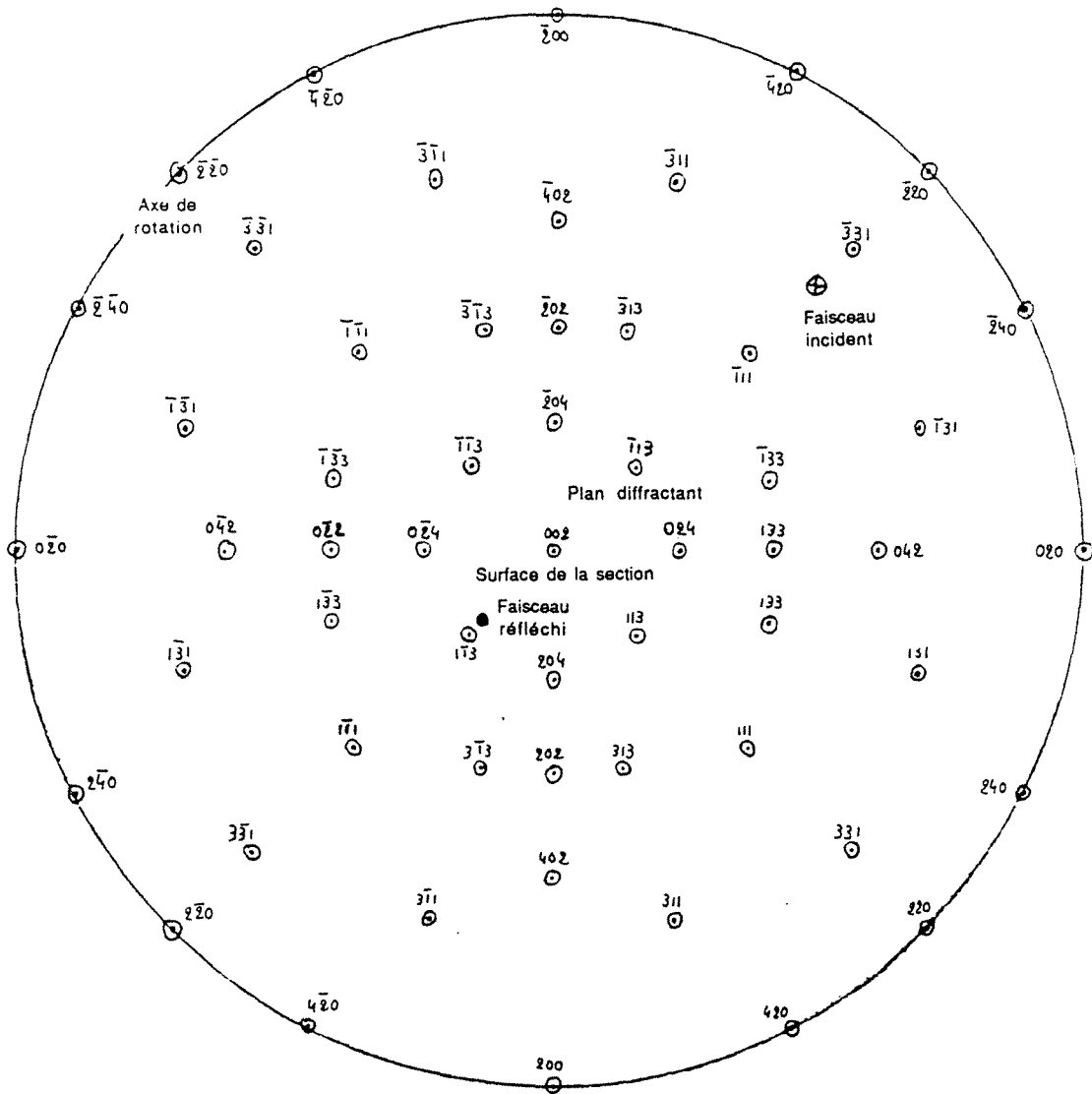


Figure III-19 : Projection stéréographique sur le plan [001] dans un cristal cfc des directions les plus importantes en topographie X monochromatique.

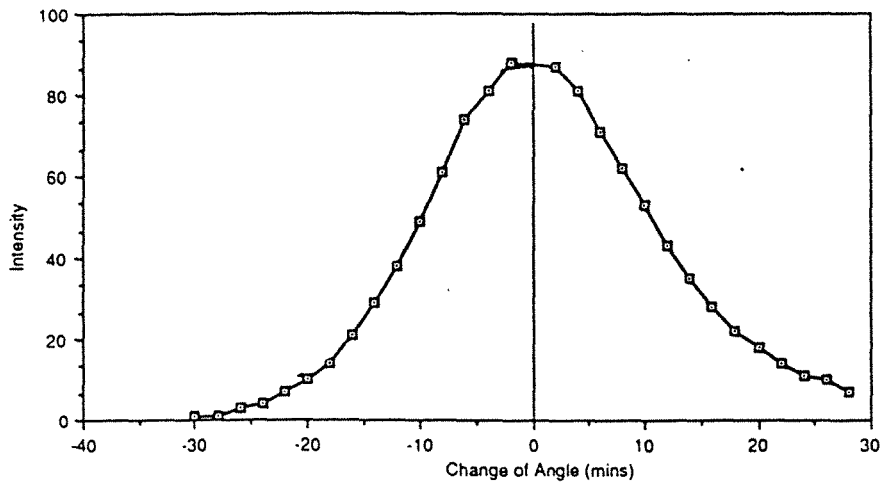


Figure III-20 : Profil de diffraction X d'une partie de section transversale [4].

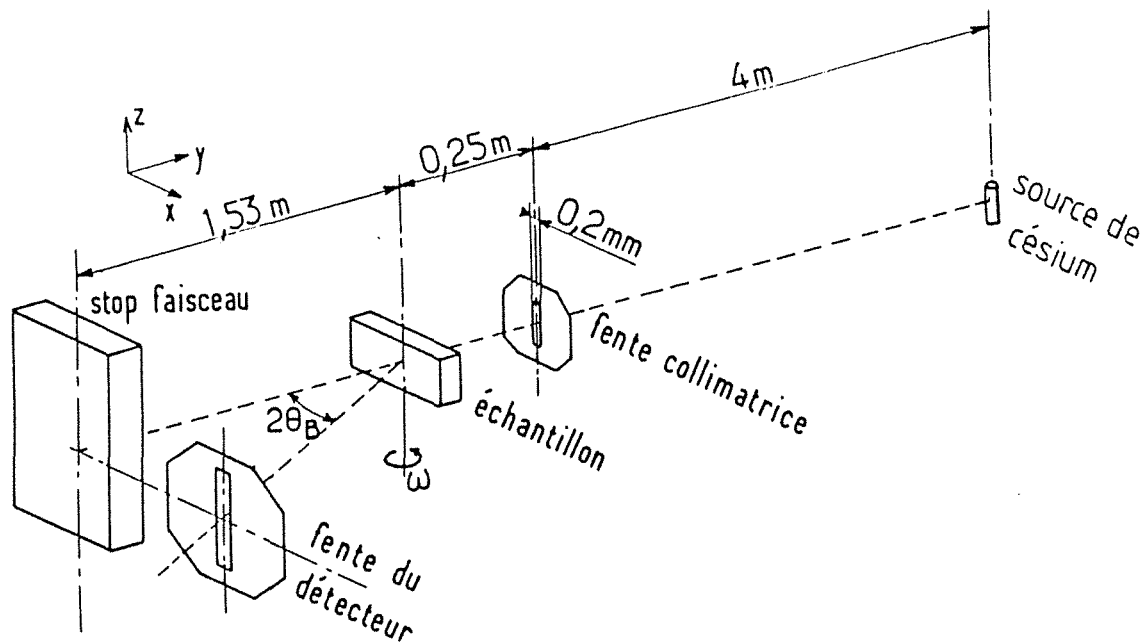


Figure III-21 : Représentation schématique du diffractomètre γ [74]. L'angle ω correspond à l'axe de rotation autour duquel le profil de diffraction est réalisé.

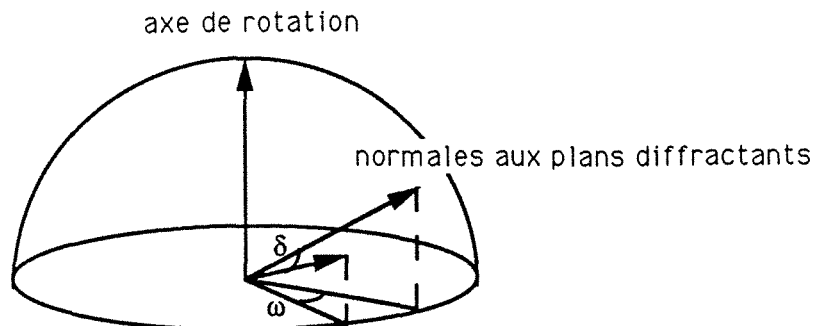
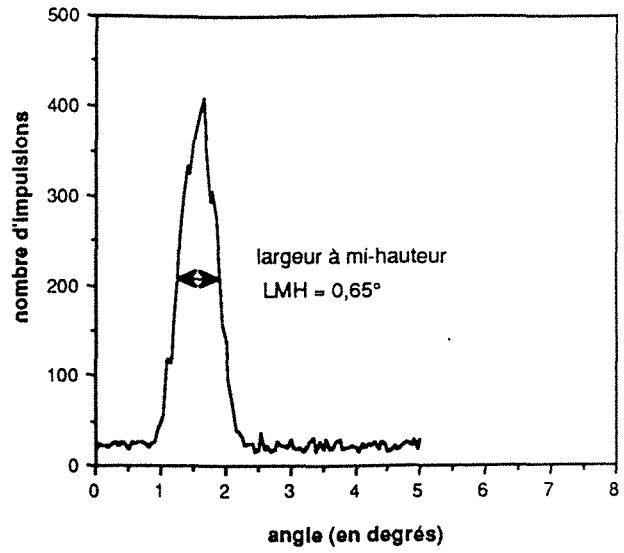
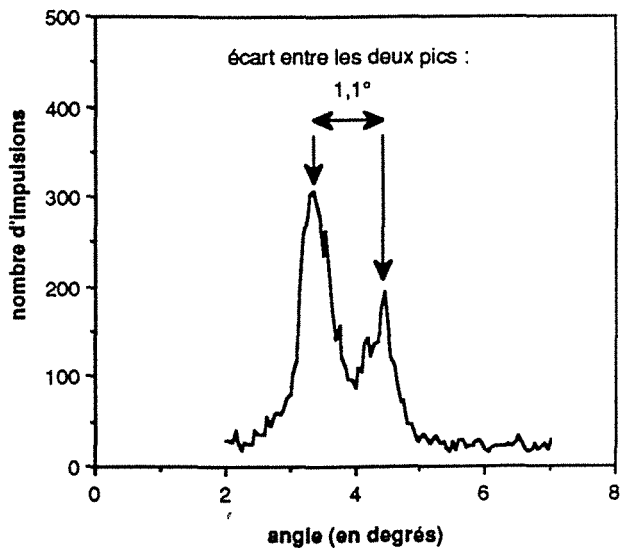


Figure III-22 : Désorientation mesurée en diffraction γ . L'angle δ est l'angle de désorientation réelle entre deux séries de plans diffractants. La désorientation mesurée lors de la réalisation du profil de diffraction autour de l'axe de rotation est l'angle ω , c'est-à-dire la projection de la désorientation δ sur le plan perpendiculaire à l'axe de rotation : la composante verticale de la désorientation n'est pas prise en compte.

(a) Dans le cas d'un seul pic.



(b) Dans le cas de deux pics.



(c) Quand le pic présente une forme étalée.

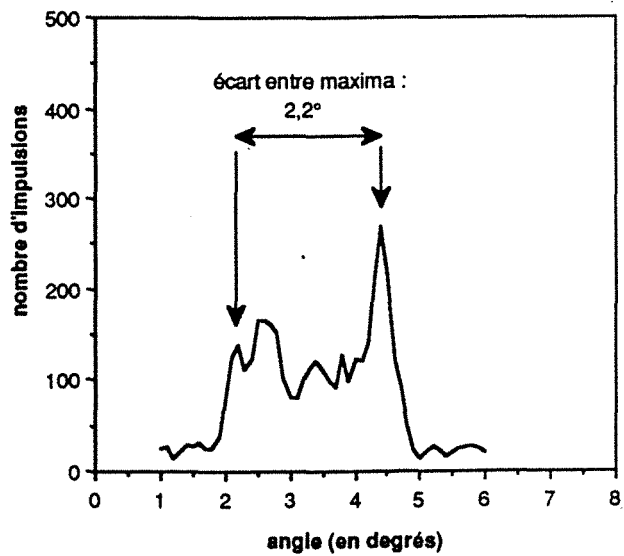


Figure III-23 : Paramètres mesurés sur les profils de diffraction γ .



Figure IV-1 : Micrographie longitudinale du bord d'une zone d'augmentation de section dans l'éprouvette à deux branches. Le mécanisme de branchement successifs est visible sur le bord oblique de la pièce : de grands axes secondaires partent des axes primaires et donnent naissance à des axes tertiaires. Quelques uns de ceux-ci deviennent axes primaires.

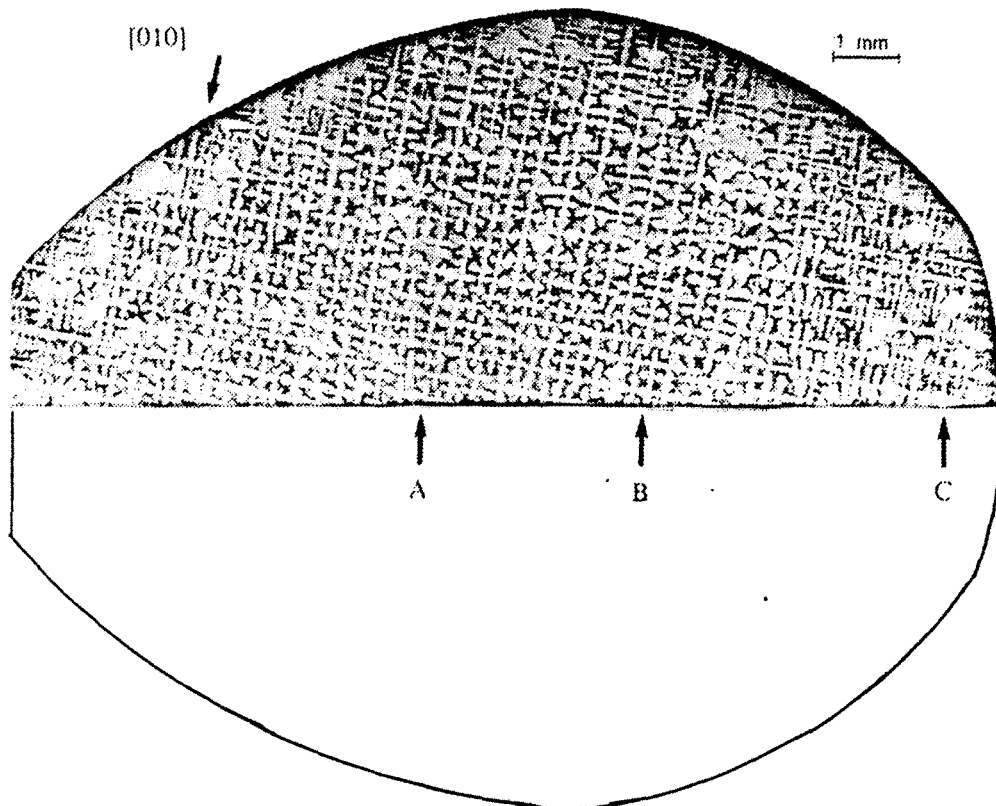


Figure IV-2 : Micrographie d'une demi-section transversale (les bords de la section entière sont reproduits) dans la zone de séparation ménagée de l'éprouvette à deux branches.

Schéma des coupes réalisées dans les zones de séparation des éprouvettes à quatre branches.

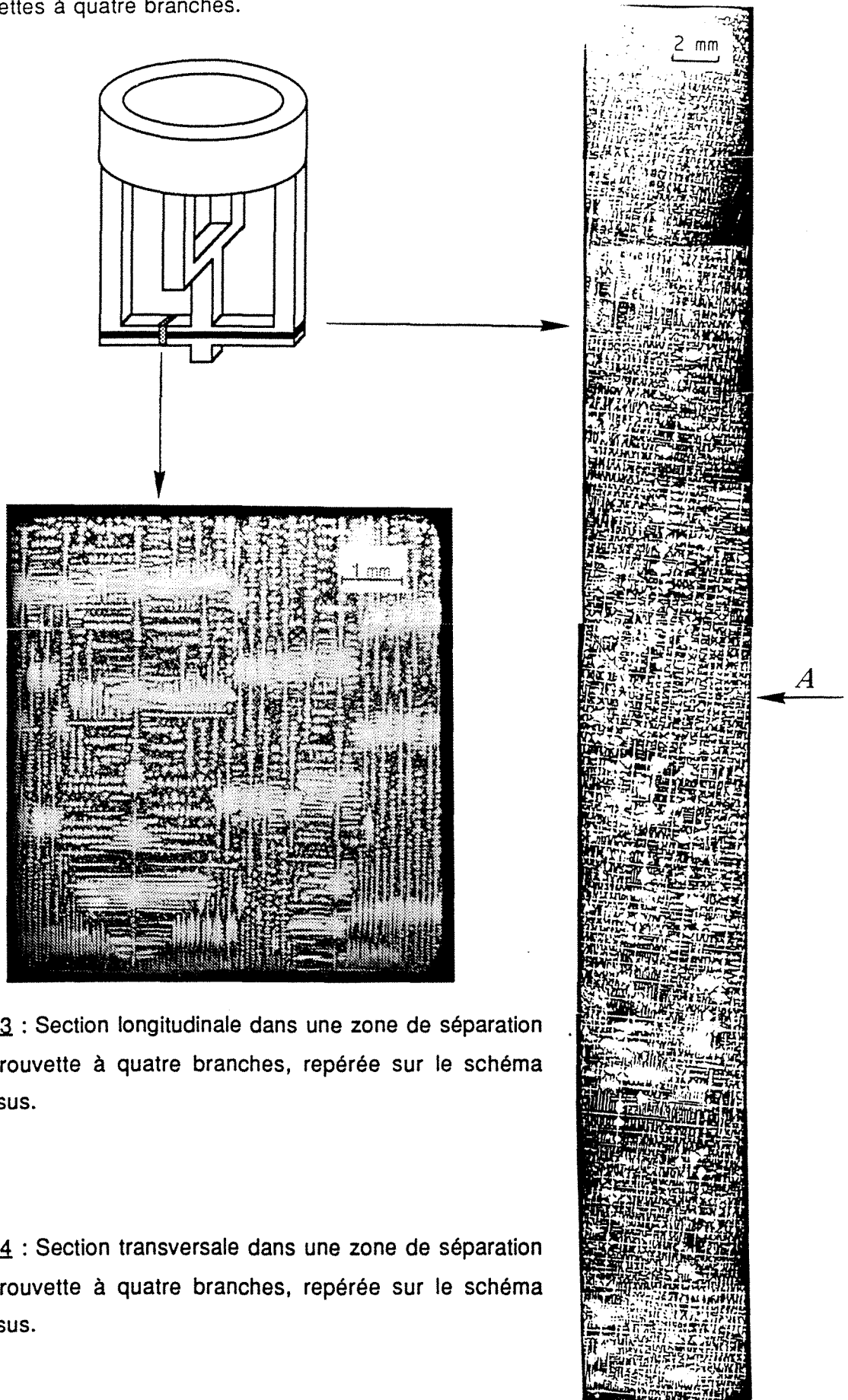


Figure IV-3 : Section longitudinale dans une zone de séparation de l'éprouvette à quatre branches, repérée sur le schéma au-dessus.

Figure IV-4 : Section transversale dans une zone de séparation de l'éprouvette à quatre branches, repérée sur le schéma au-dessus.

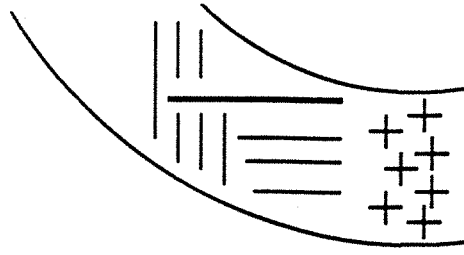


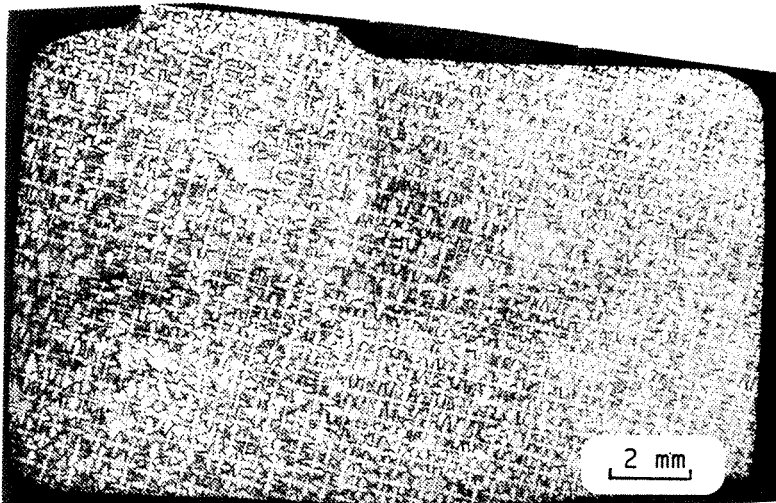
Figure IV-5 : Schéma d'une portion de couronne d'une éprouvette à quatre branches. Les croix correspondent à la zone située au-dessus d'une branche, où aucun alignement n'est visible. Les traits représentent les alignements de dendrites. L'alignement situé vers le centre est toujours plus long que les autres alignements.



(a) A 121 mm de la sortie de sélecteur.



(b) A 60 mm de la sortie de sélecteur.



(c) A 32 mm de la sortie de sélecteur.

Figure IV-6 : Micrographies de sections transversales prises à différentes hauteurs dans l'une des branches (branche 2) de l'éprouvette à deux branches.

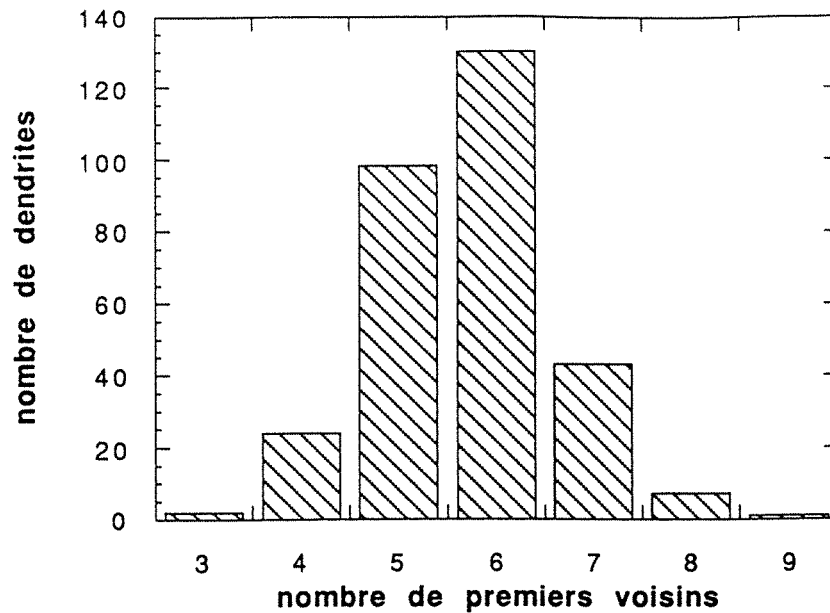


Figure IV-7 : Distribution du nombre de premiers voisins sur une portion de section transversale d'une branche de l'éprouvette à deux branches. La section se trouve à 74 mm de distance de la sortie de sélecteur.

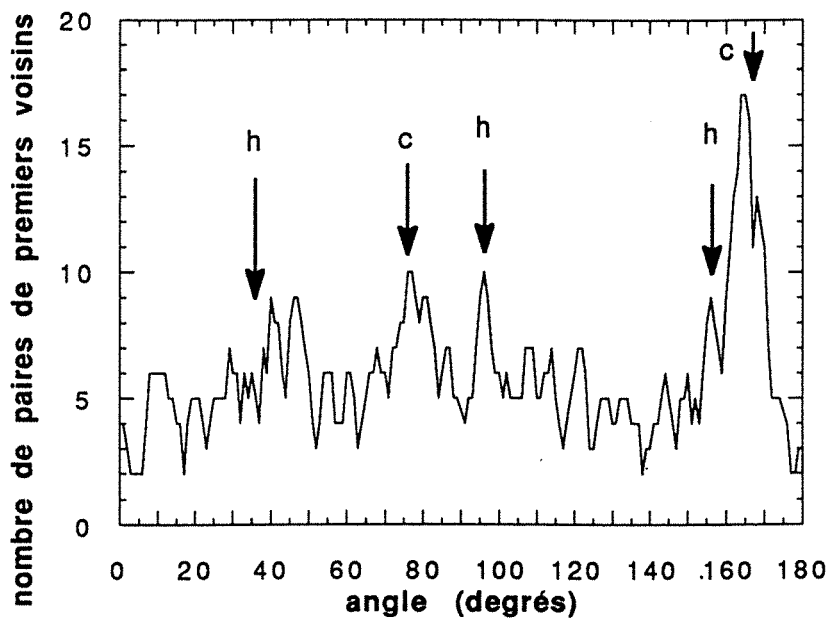


Figure IV-8 : Sur la même section que celle de la figure IV-7, répartition du nombre de paires de premiers voisins en fonction de l'angle dans le plan de la section de la direction de ces paires. La marque c fait référence à l'existence d'un réseau carré, dans les directions secondaires des axes dendritiques. La marque h fait référence à un réseau hexagonal.

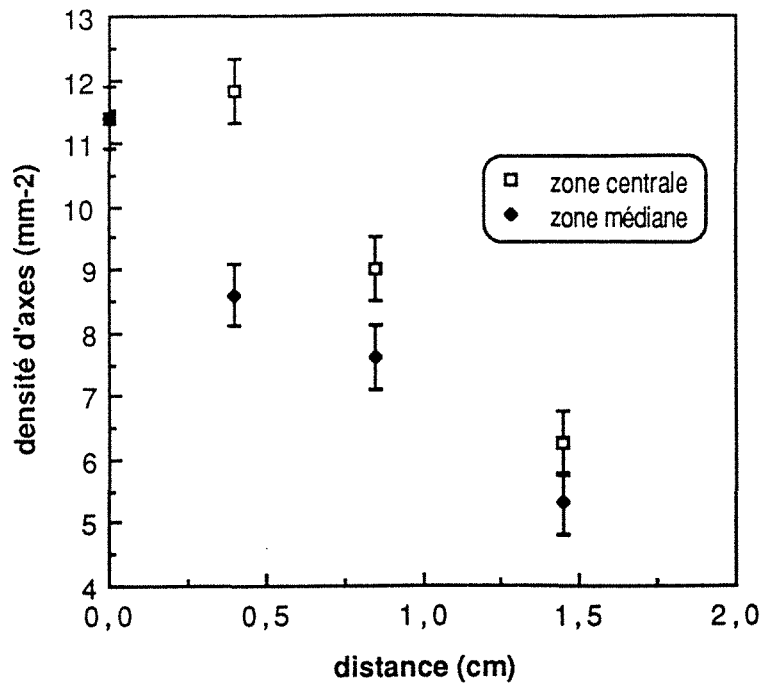


Figure IV-9 : Evolution de la densité d'axes en fonction de la distance à la sortie de sélecteur, dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches, pour la zone centrale (région A) et la zone médiane (région B).

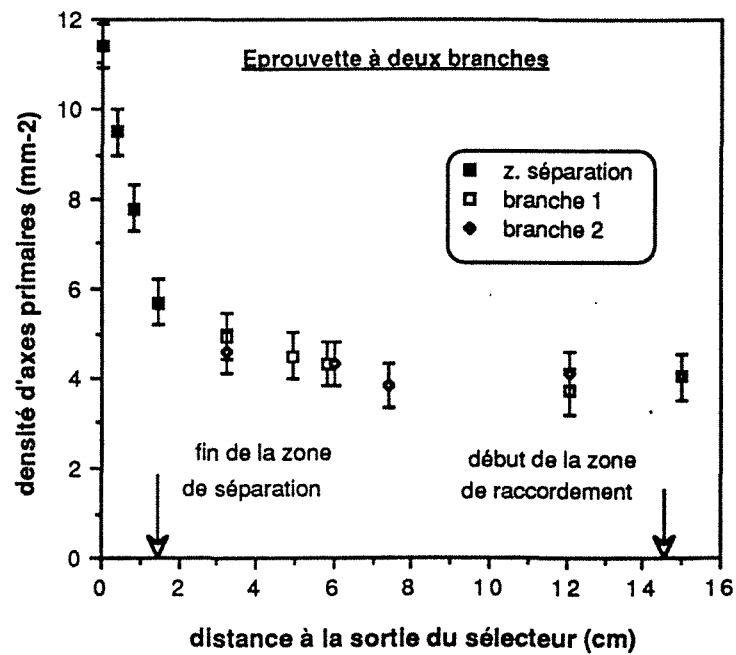


Figure IV-10 : Evolution avec la distance à la sortie de sélecteur de la densité d'axes primaires moyenne, dans l'éprouvette à deux branches.

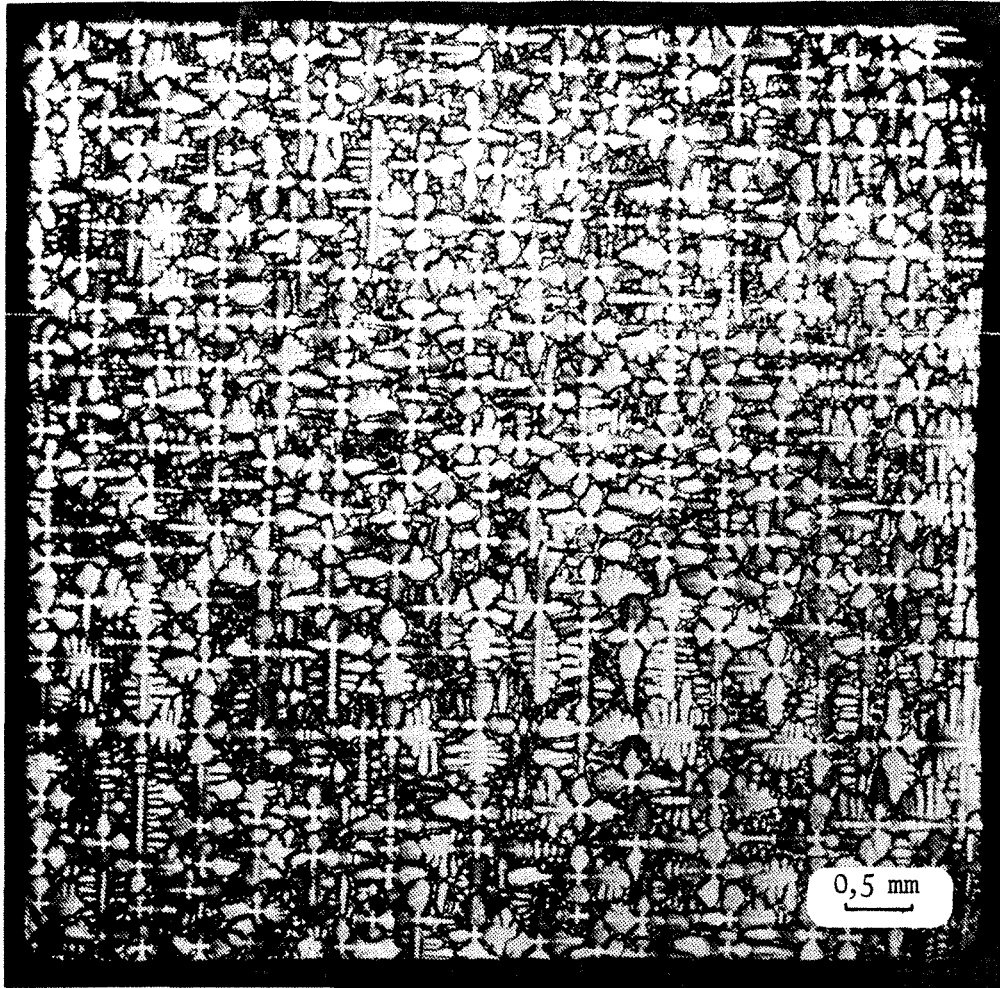


Figure IV-11 : Micrographie d'une section transversale d'une branche tangentielle d'une éprouvette à quatre branches. Le bord inférieur de la micrographie est situé vers le centre du four ; la densité d'axes y est plus faible.

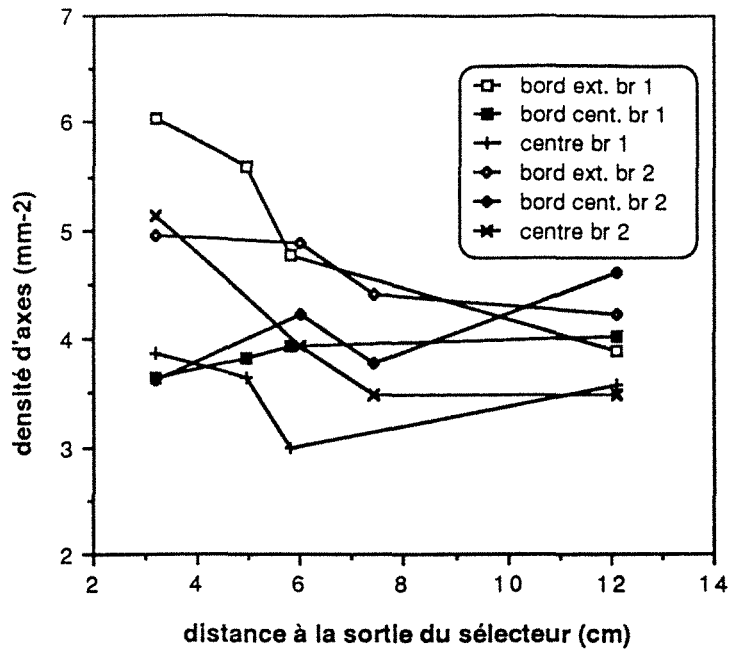


Figure IV-12 : Evolution avec la distance à la sortie de sélecteur, dans les branches de l'éprouvette à deux branches, à section transversale constante, de la densité d'axes primaire locale. La mesure a été réalisée au centre de la section, sur le bord situé vers l'extérieur et sur le bord situé vers le centre du four.

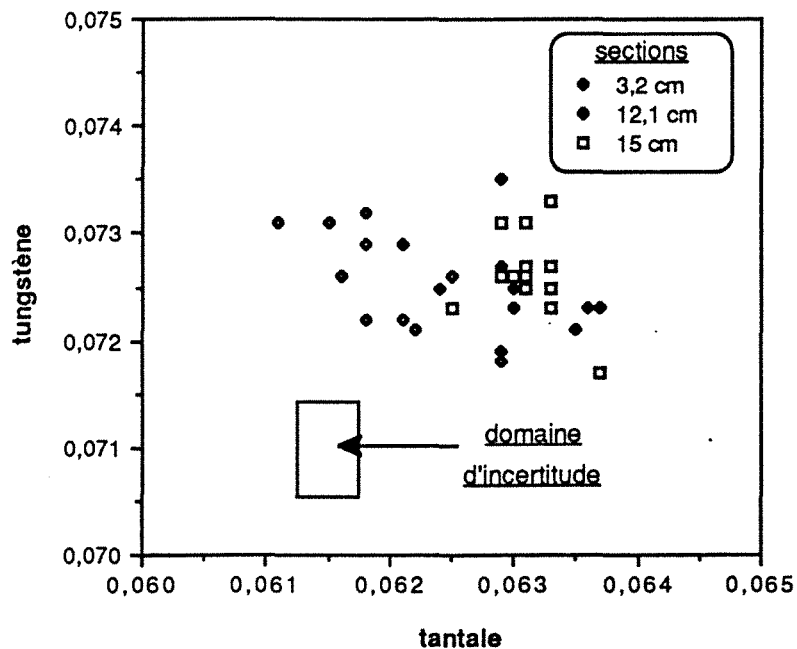


Figure IV-13 : Teneurs massiques en tantale et en tungstène au centre d'axes primaires, sur différentes sections transversales de l'éprouvette à deux branches dont la distance à la sortie de sélecteur est indiquée. Pour comparaison, le domaine d'incertitude dû au rayonnement X est noté.

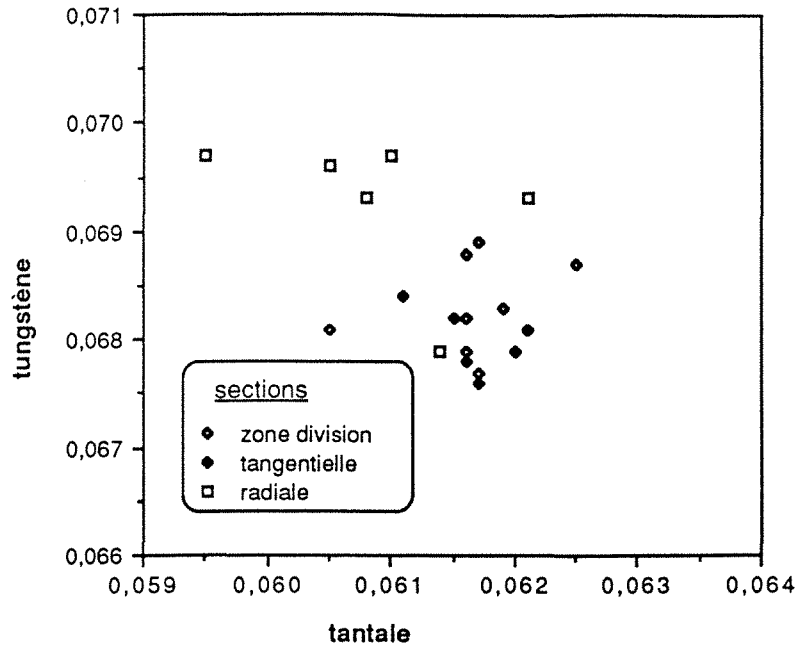


Figure IV-14 : Teneurs massiques en tantale et en tungstène de centres d'axes primaires sur différentes sections transversales de l'éprouvette à quatre branches.

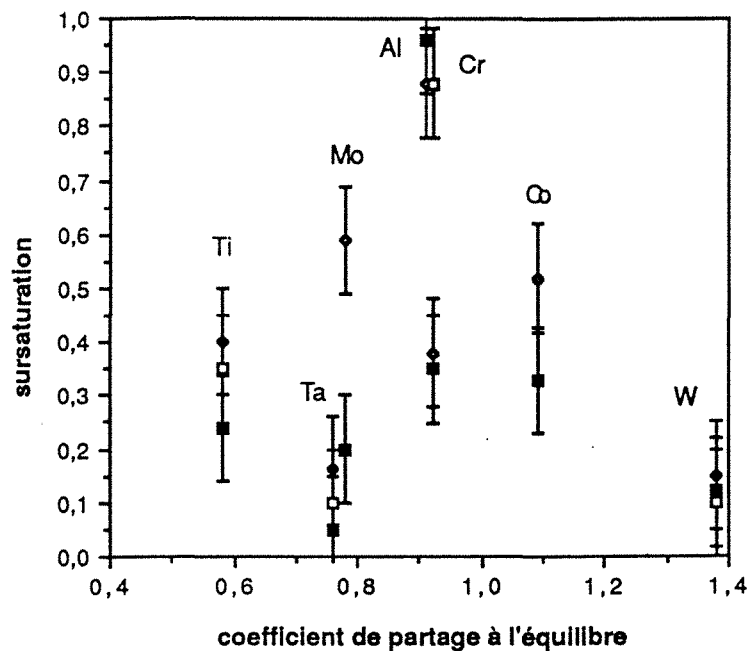
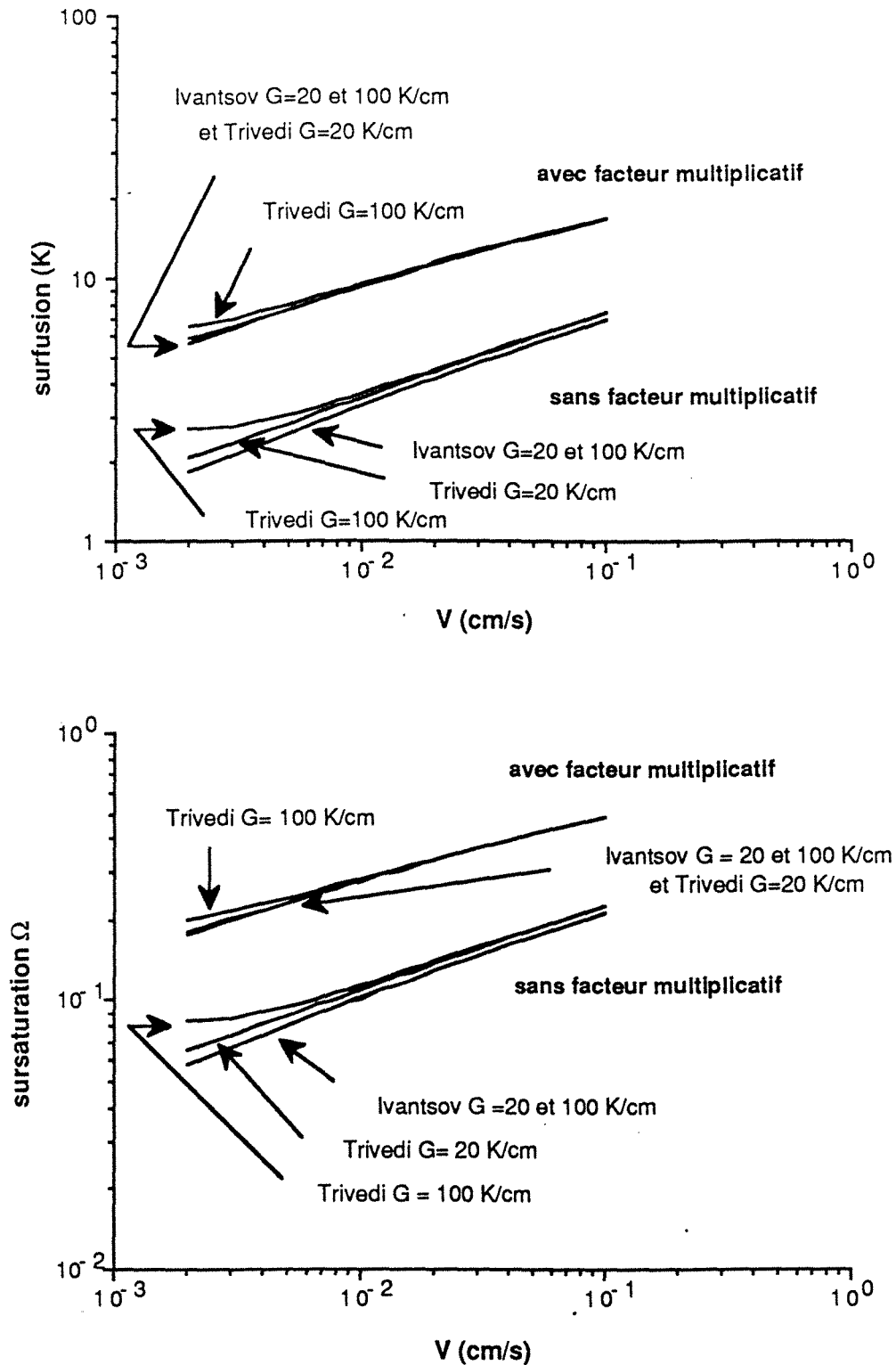


Figure IV-15 : Sursaturation Ω_i mesurée sur différentes éprouvettes et différentes sections. Les carrés noirs représentent les mesures sur l'éprouvette à 2 branches. Les losanges et les carrés blancs représentent celles réalisées sur des sections de l'éprouvette à 4 branches, respectivement dans une branche tangentielle et une branche radiale.



Figures IV-16 : Courbes théoriques d'évolution de la sursaturation et de la surfusion à la pointe de la dendrite dans l'AM1 en fonction de la vitesse pour divers gradients thermiques longitudinaux, d'après les modèles d'Ivantsov et Trivedi associés au critère de stabilité marginale.

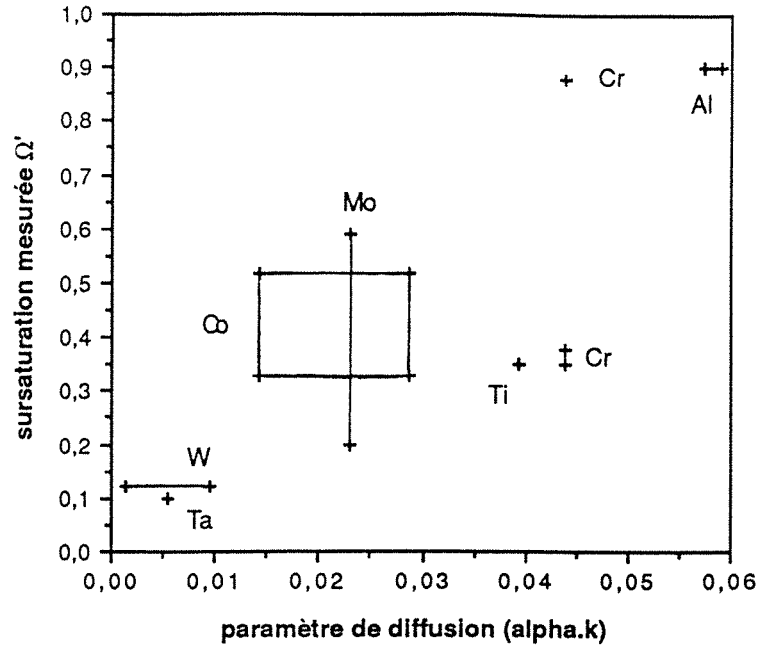


Figure IV-17 : Valeur des sursaturations mesurées Ω'_i en fonction du paramètre de diffusion ($\alpha.k$).

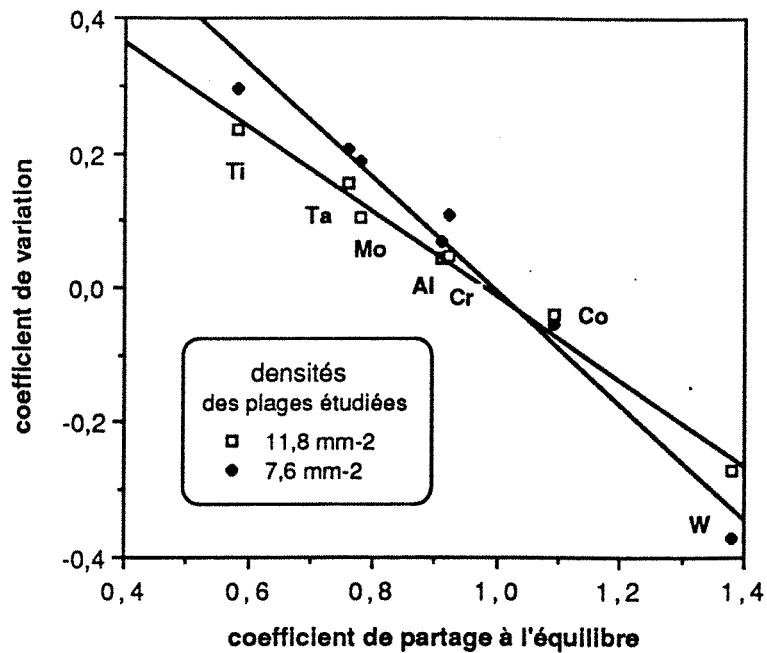
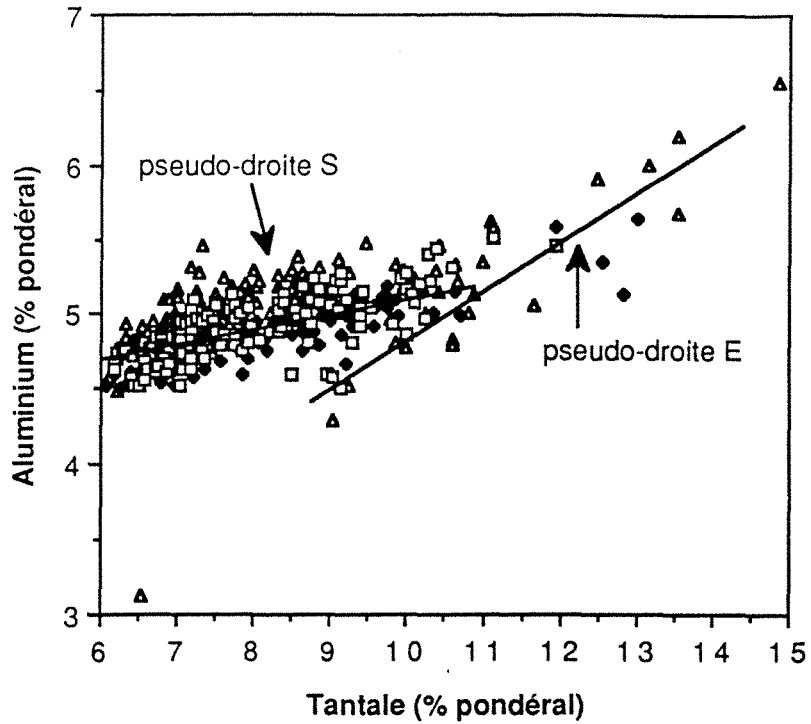
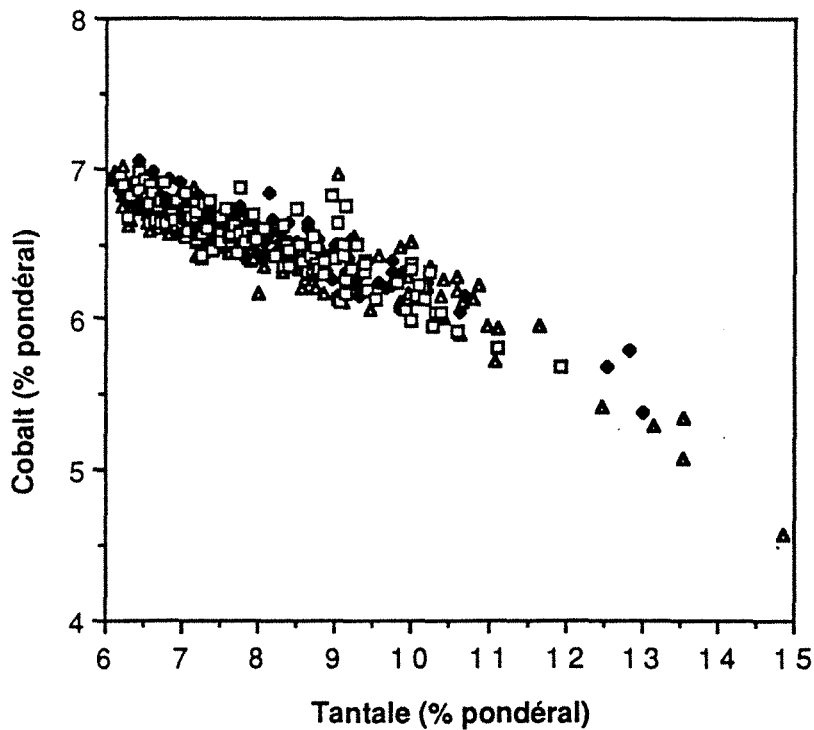


Figure IV-18 : Relation entre les coefficients de variation des mesures et les coefficients de partage à l'équilibre, pour deux plages de section transversales, situées dans la zone de séparation de l'éprouvette à deux branches.

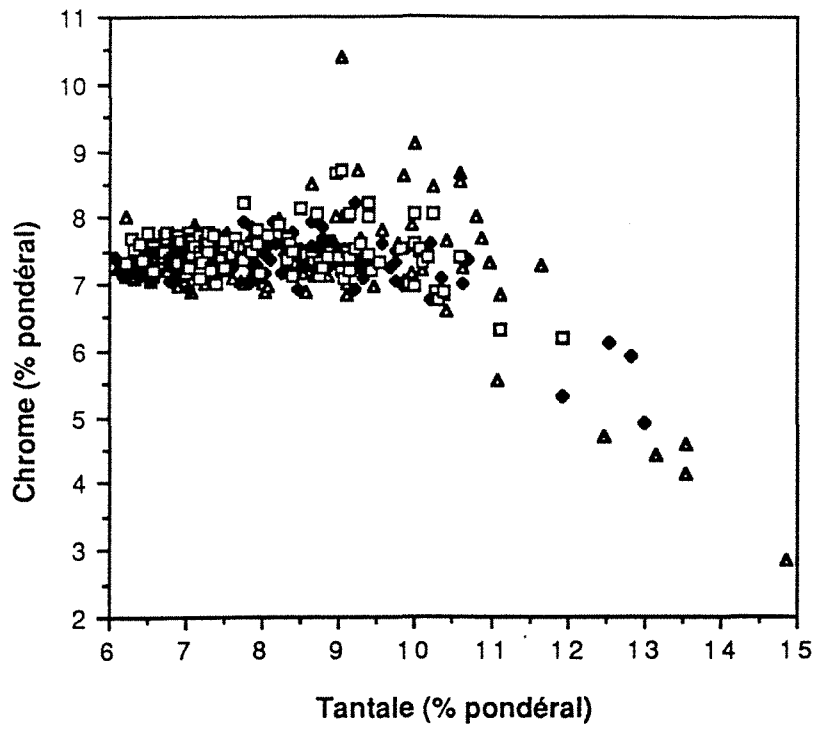


(a)

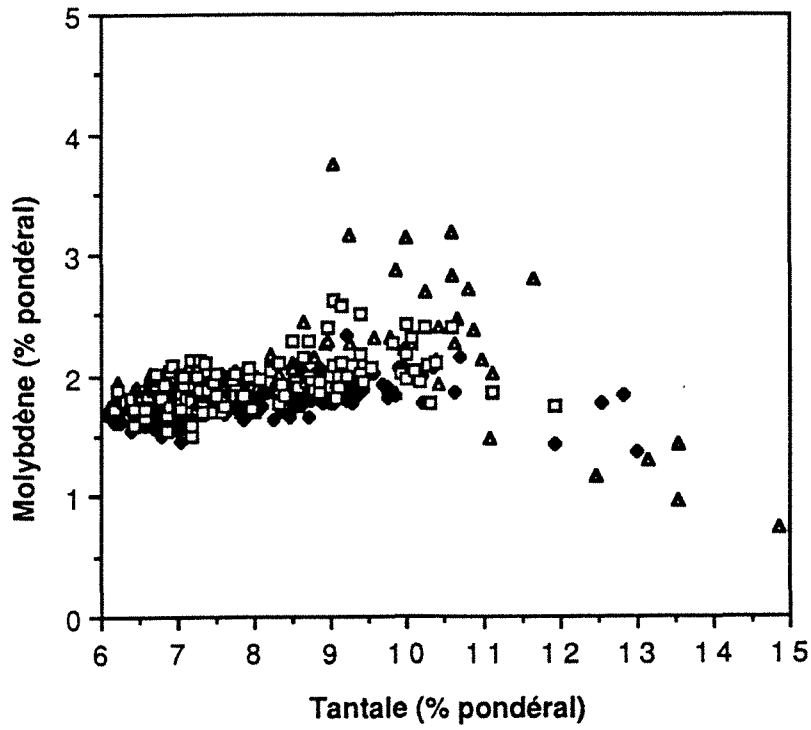


(b)

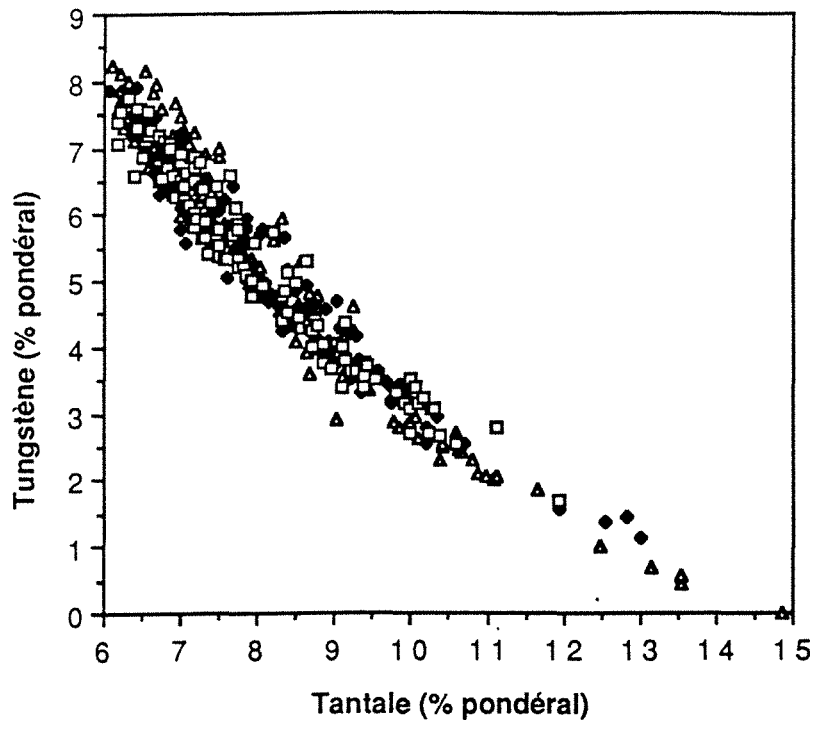
Figure IV-19 : Teneur pondérale de divers éléments d'alliage en fonction de la teneur correspondante en tantale, lors d'un quadrillage effectué sur trois plages de densités d'axes différentes. Les triangles correspondent à une plage de n_p égal à $7,6 \text{ mm}^{-2}$, les losanges à une plage de n_p égal à $8,6 \text{ mm}^{-2}$ et les carrés à n_p égal à $11,8 \text{ mm}^{-2}$.



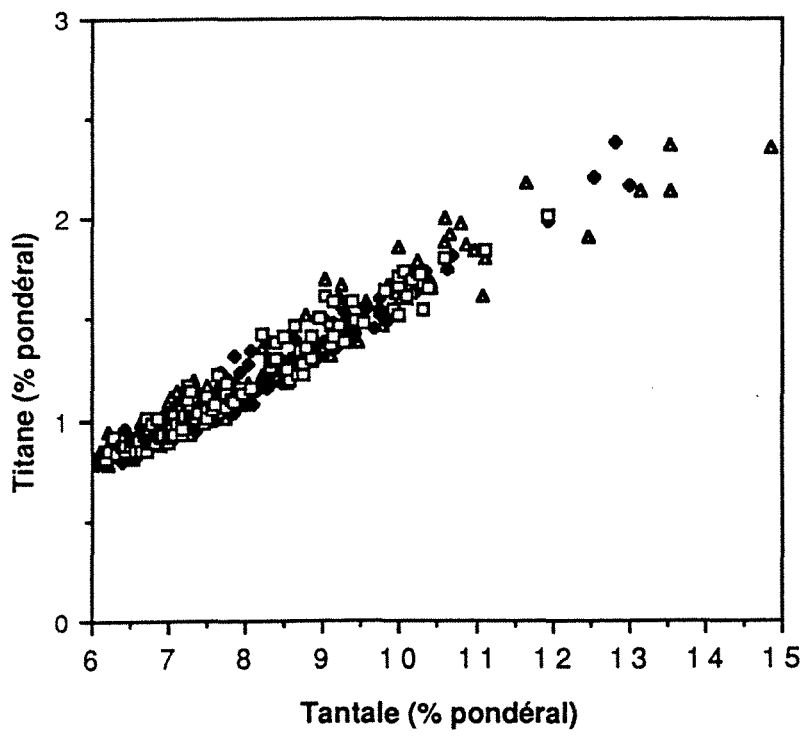
(IV-19 c)



(IV-19 d)



(IV-19 e)



(IV-19 f)

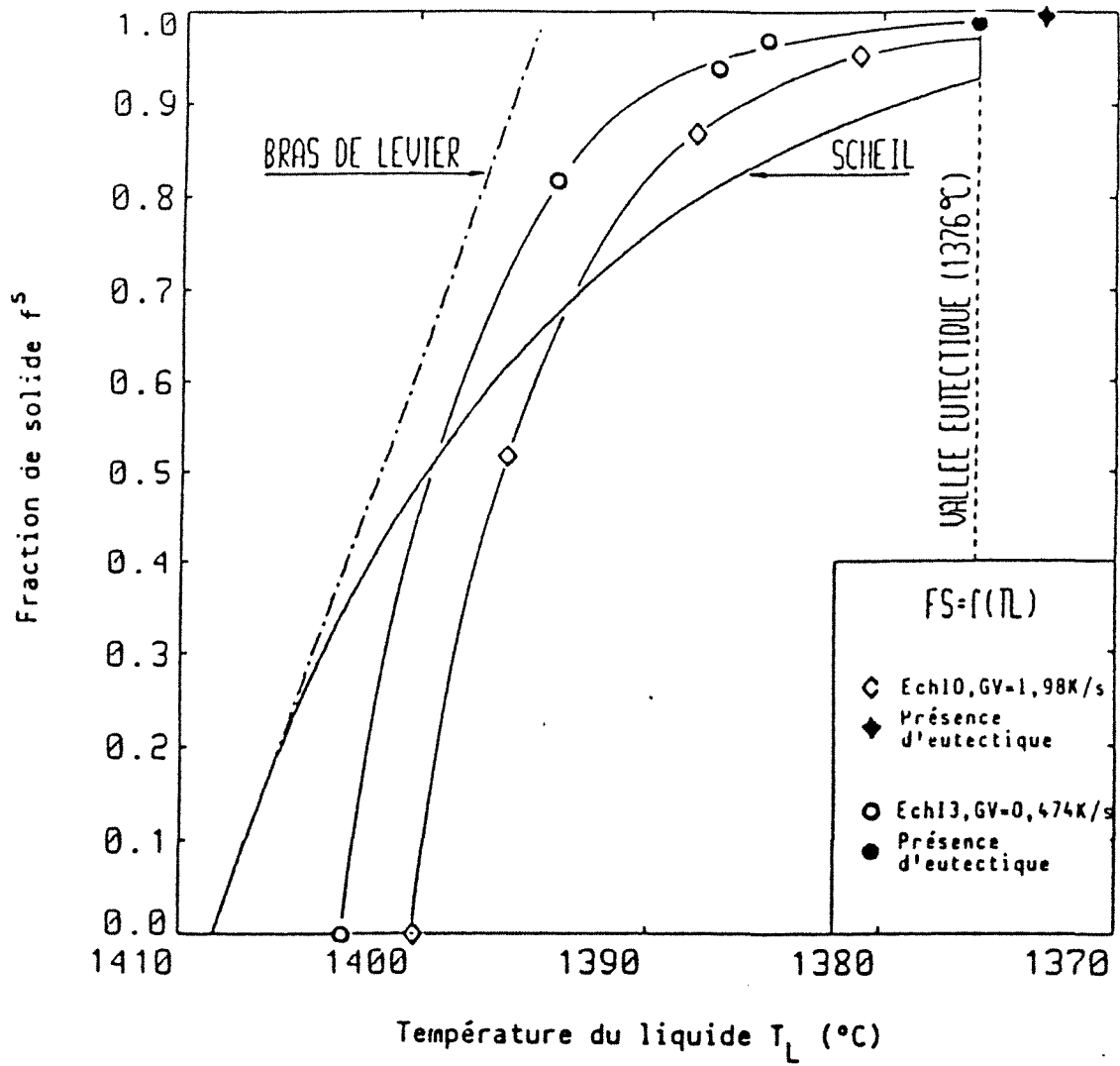


Figure IV-20 : Courbes expérimentales et théoriques de l'évolution de la fraction de solide en fonction de la température dans le cas d'un alliage ternaire base nickel [53].

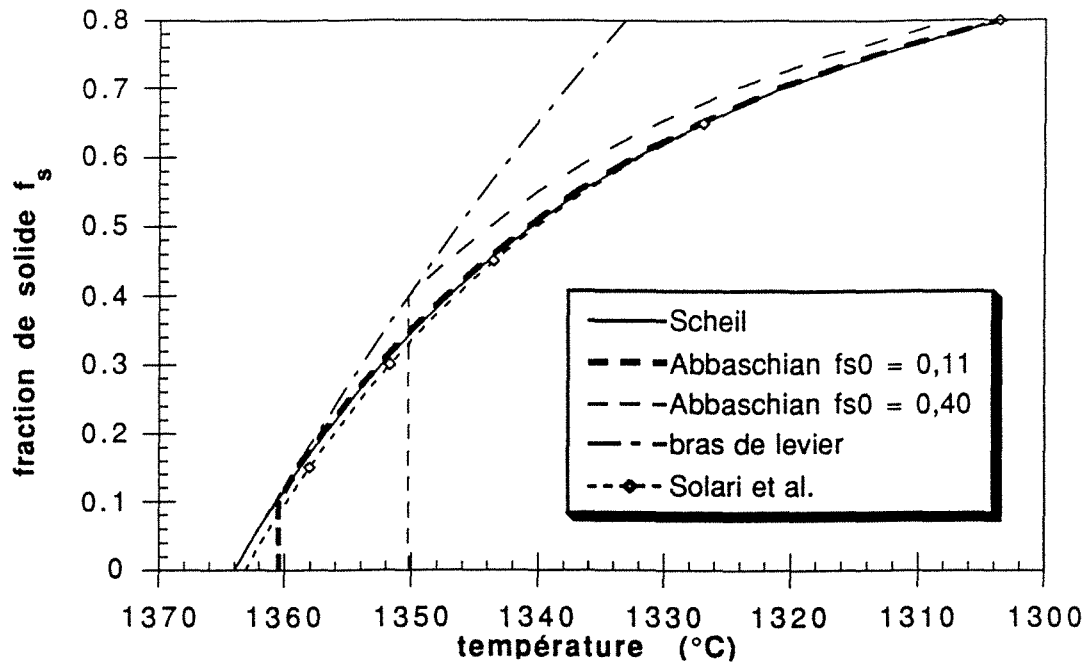
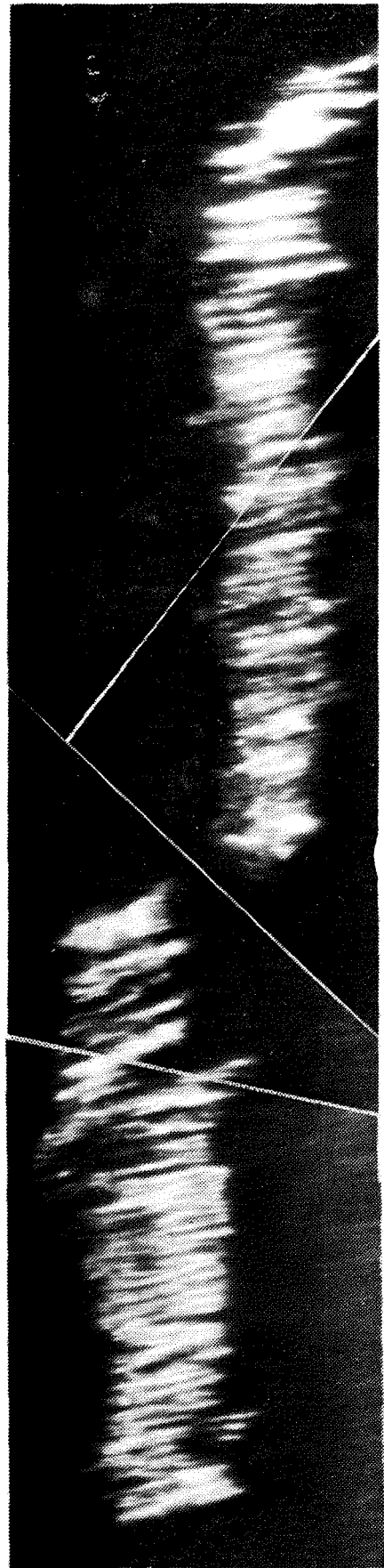
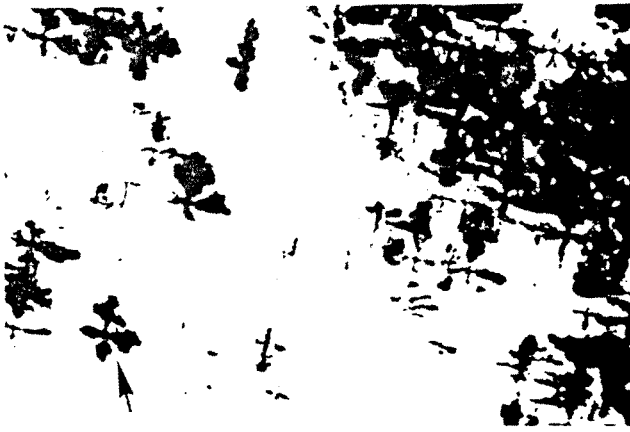


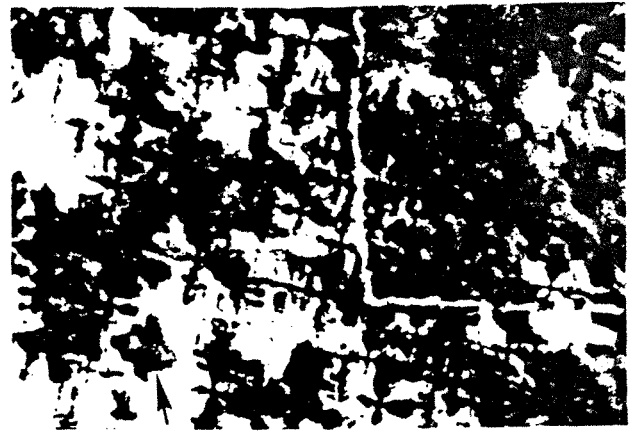
Figure IV-21 : Comparaison de différents modèles de l'évolution de la fraction de solide en fonction de la température, dans le cas de l'AM1.

Figure V-1 : Topographie X en faisceau polychromatique d'une section longitudinale. L'axe [001] est horizontal.

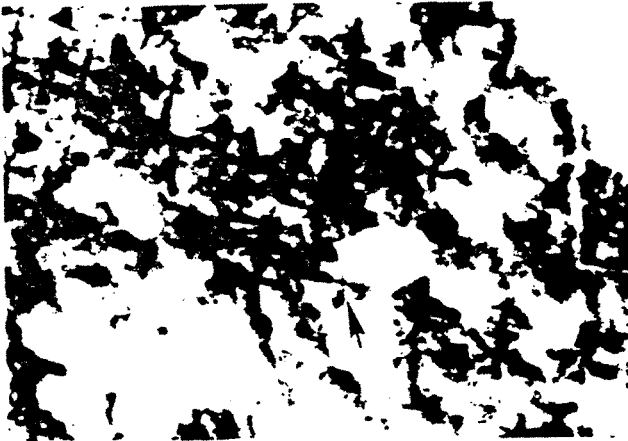




a)



b)



c)



d)

Figure V-2 : Topographies monochromatiques réalisées sur une section (001) et pour des réflexions 113. Une dendrite particulière a été repérée par une flèche sur chaque topographie. Topographies du haut : réflexion (113) ; topographies du bas : réflexion $(\bar{1}\bar{1}3)$. Ecart angulaire entre topographies de gauche et de droite : $-15'$ [4].

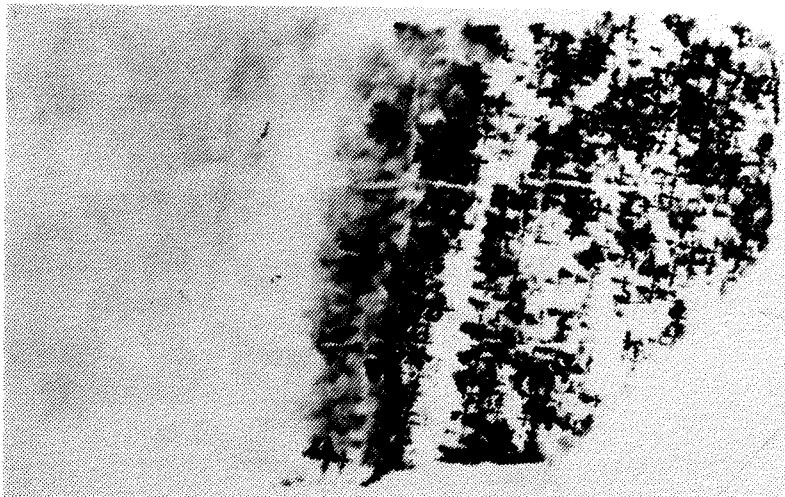
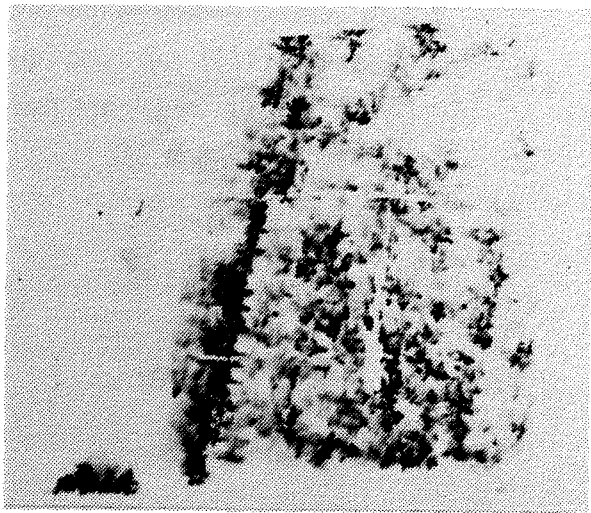
$\Phi = 87^{\circ}45'05''$

 $\Phi = 87^{\circ}15'14''$

 $\Phi = 86^{\circ}44'49''$

image fantôme

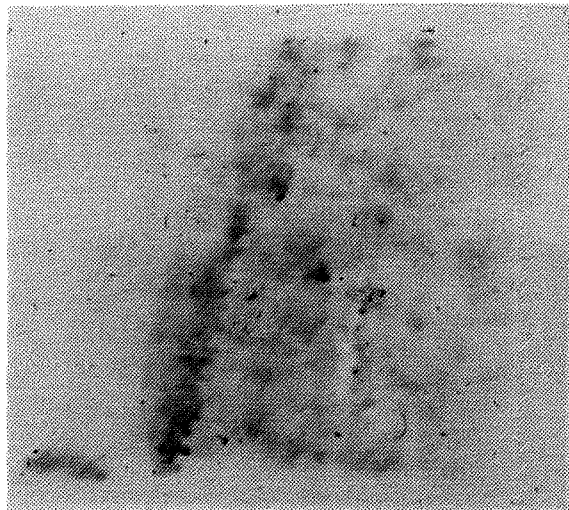
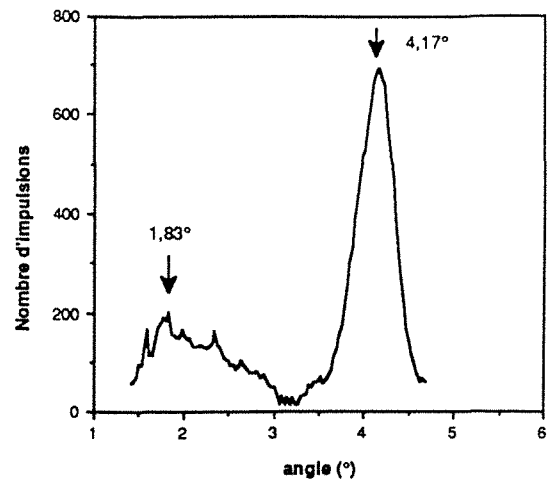


Figure V-3 : Série de topographies monochromatiques d'une section transversale de la branche 1 de l'éprouvette à deux branches. Réflexion (113), rotation autour de $[\bar{1}10]$. L'origine de l'angle Φ est arbitraire.

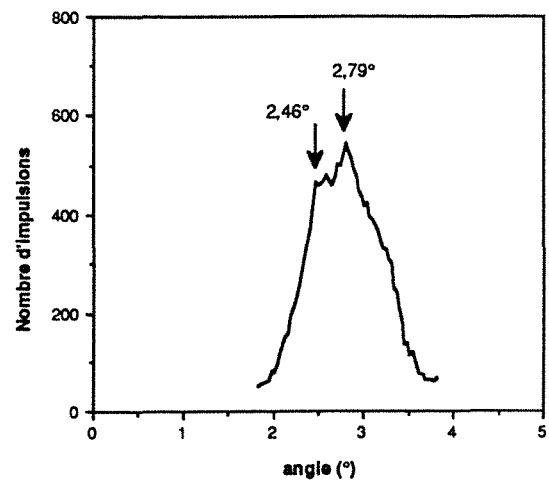


Figure V-4 : Topographie monochromatique réalisée par réflexion (113) sur une section (100) d'un échantillon ayant subi un traitement thermique d'homogénéisation des microségrégations [4].

(a) diffraction des plans (002) ;
rotation autour de [100]



(b) diffraction des plans (002) ;
rotation autour de [010]



(c) diffraction des plans (200) ;
rotation autour de [001]

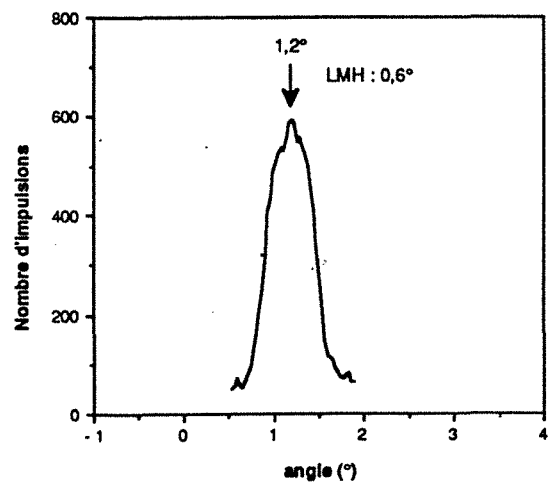
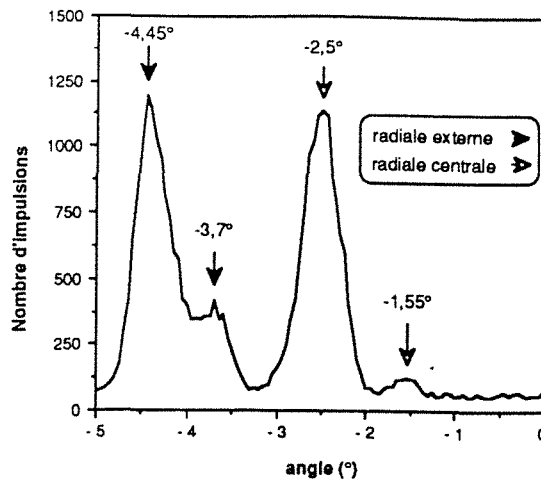
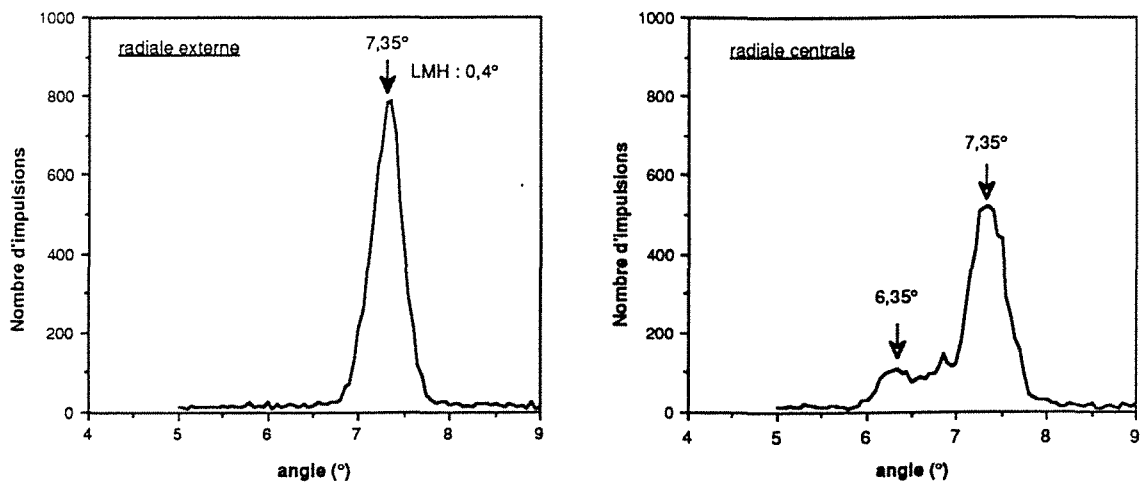


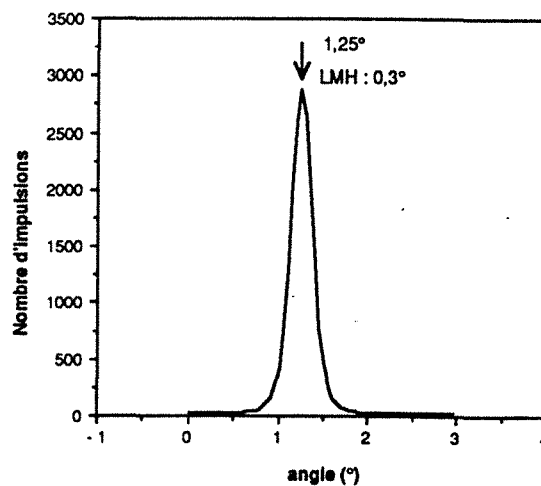
Figure V-5 : Profils de diffraction gamma obtenus sur une portion de branche de l'éprouvette à deux branches pour les trois axes de rotation. L'origine des angles est arbitraire sur chaque profil.



(a) diffraction des plans (002) ; rotation autour de [100].

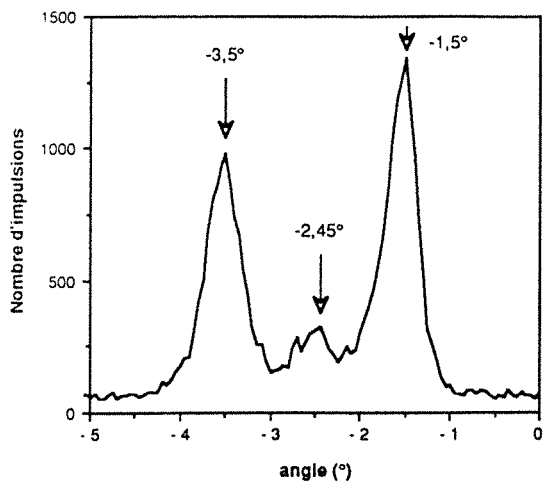


(b) diffraction des plans (002) ; rotation autour de [010].

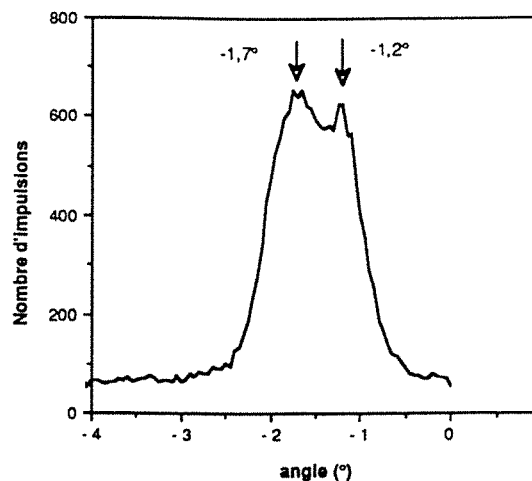


(c) diffraction des plans (002) ; rotation autour de [001]. Le profil intègre la diffraction des deux branches simultanément.

Figure V-6 : Profils de diffraction gamma obtenus sur deux branches d'une éprouvette à quatre branches pour les trois axes de rotation. L'origine des angles est arbitraire pour chaque axe de rotation.



(a) diffraction des plans (002) ;
rotation autour de [100].



(b) diffraction des plans (002) ;
rotation autour de [010].

Figure V-7 : Profils de diffraction gamma sur une portion de la branche 1 de l'éprouvette à deux branches.

Figure V-8 : Séries de topographies monochromatiques d'une section transversale dans la branche 2 de l'éprouvette à deux branches. L'origine de l'angle Φ est arbitraire.

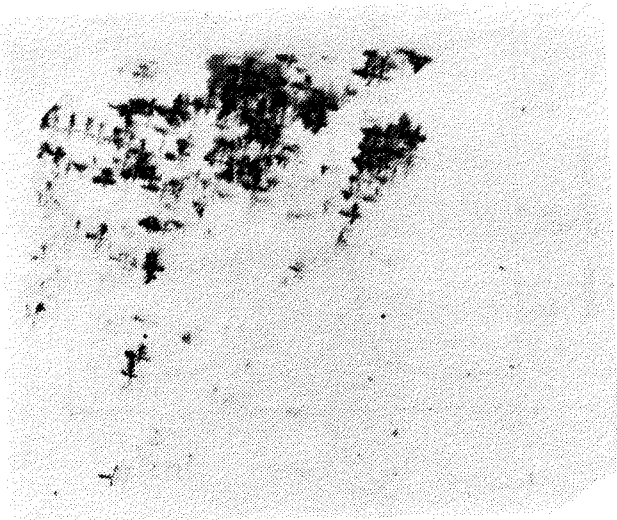
(a) page 191 : réflexion (113), rotation autour de $[\bar{1}10]$.

(b) pages 192 et 193 : réflexion $(\bar{1}13)$, rotation autour de $[\bar{1}\bar{1}0]$.

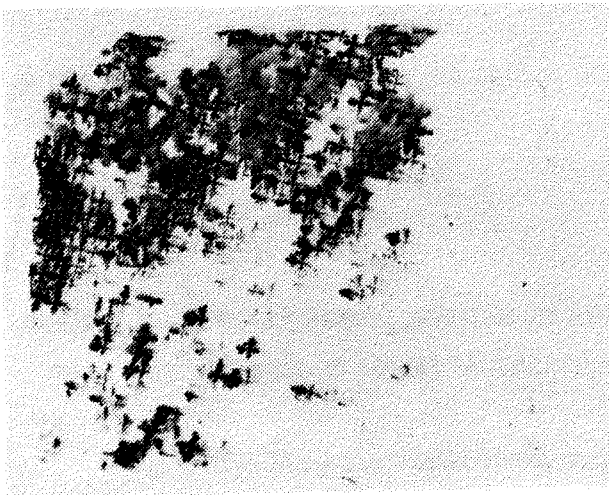
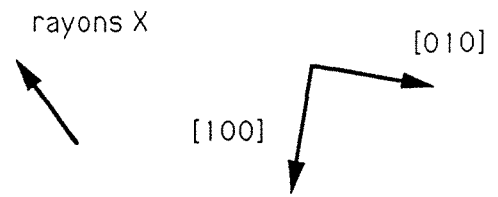
Figure V-9 : Série de topographies monochromatiques d'une section transversale dans la branche 1 de l'éprouvette à deux branches. L'origine de l'angle Φ est arbitraire.

(a) pages 194 et 195 : réflexion $(\bar{1}13)$, rotation autour de $[\bar{1}\bar{1}0]$.

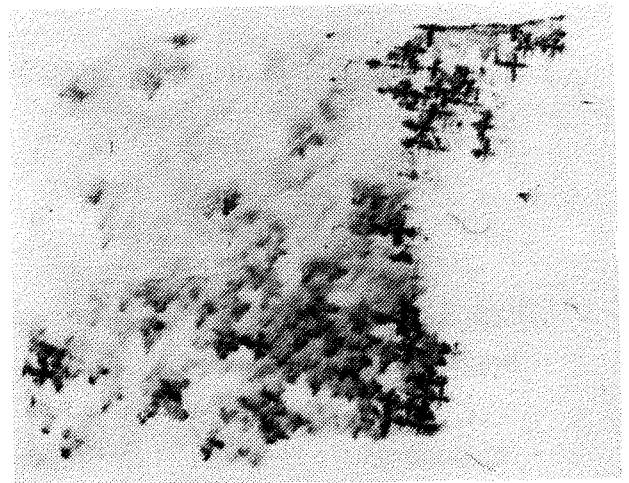
(b) pages 196 : réflexion (113), rotation autour de $[\bar{1}10]$.



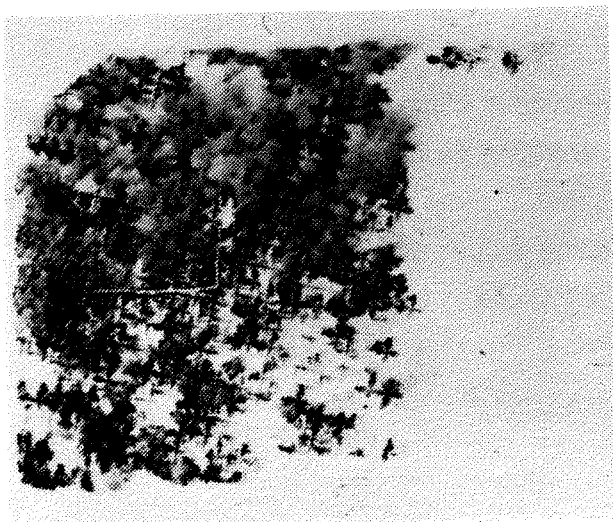
$\Phi = 65^{\circ}15'15''$



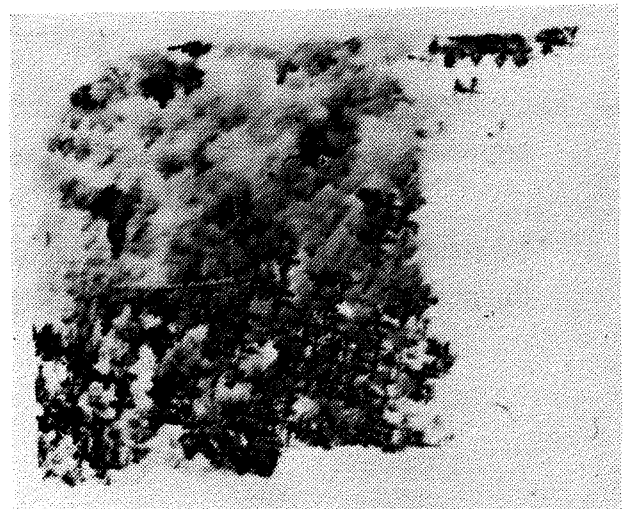
$\Phi = 65^{\circ}00'44''$



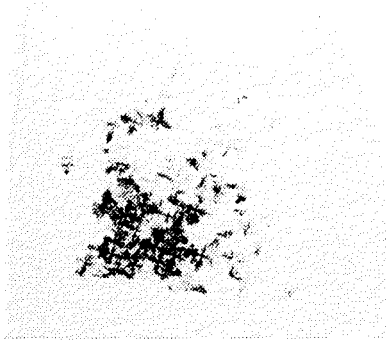
$\Phi = 64^{\circ}15'28''$



$\Phi = 64^{\circ}45'40''$

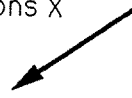


$\Phi = 64^{\circ}30'33''$



$\Phi = 64^{\circ}40'57''$

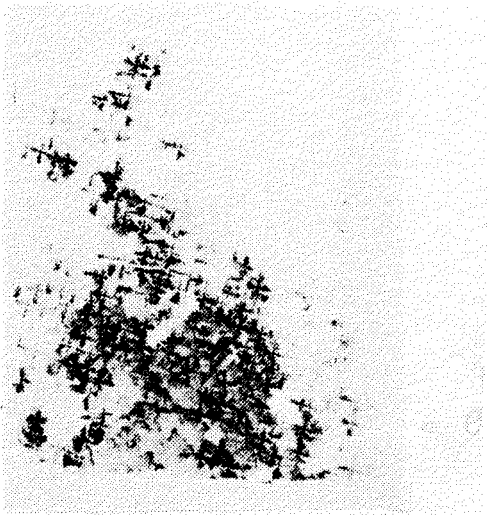
rayons X



[100]



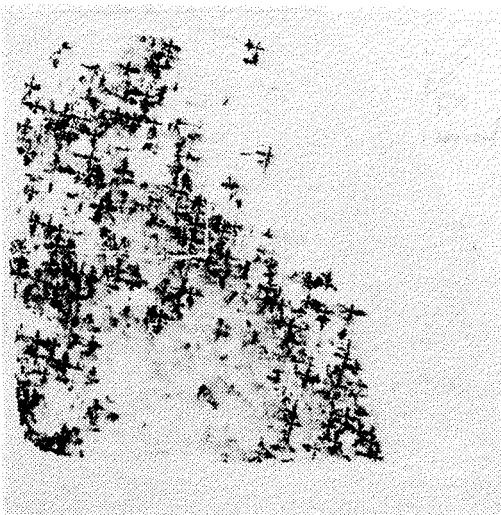
[010]



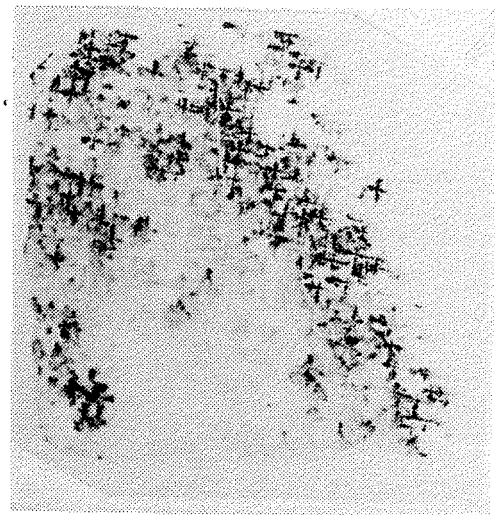
$\Phi = 64^{\circ}20'17''$



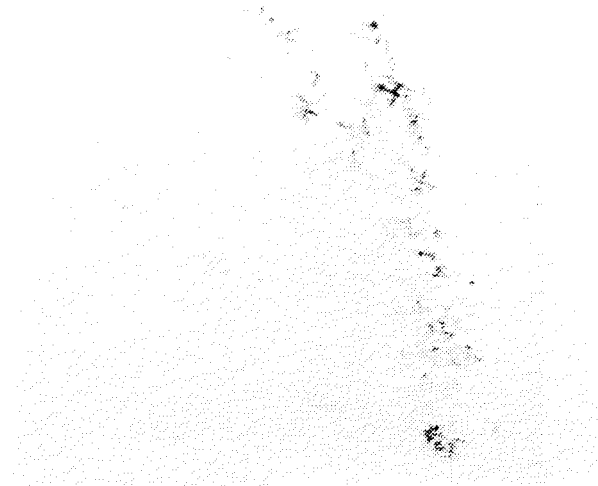
$\Phi = 63^{\circ}35'25''$



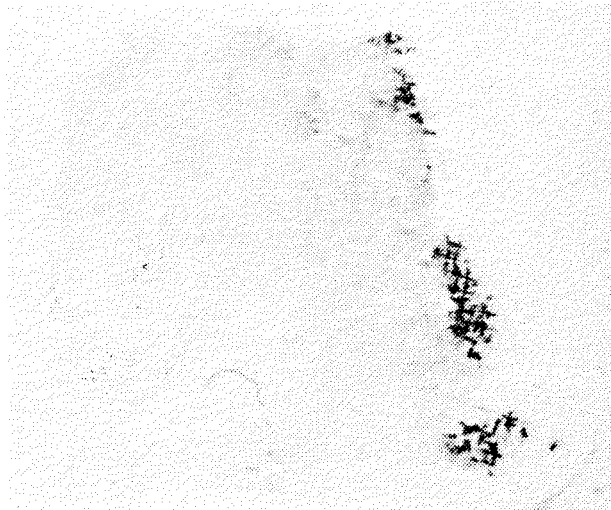
$\Phi = 64^{\circ}05'17''$



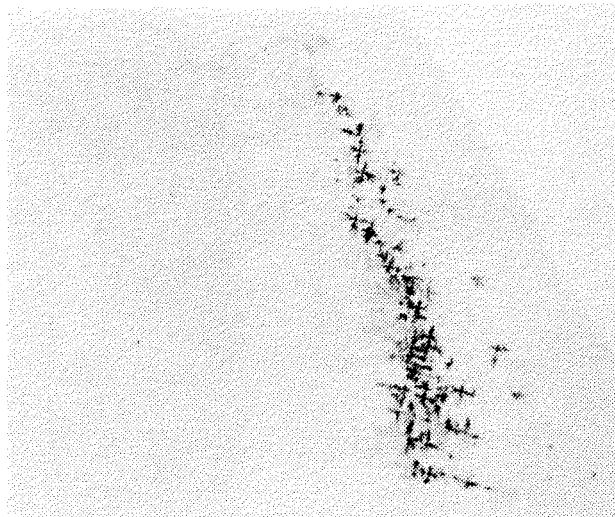
$\Phi = 63^{\circ}50'15''$



$\Phi = 63^{\circ}20'21''$



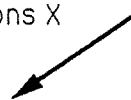
$\Phi = 63^{\circ}05'17''$



$\Phi = 62^{\circ}50'22''$

 $\Phi = 91^{\circ}16'00''$

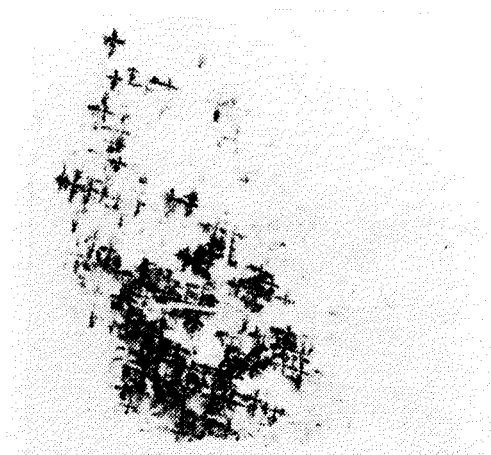
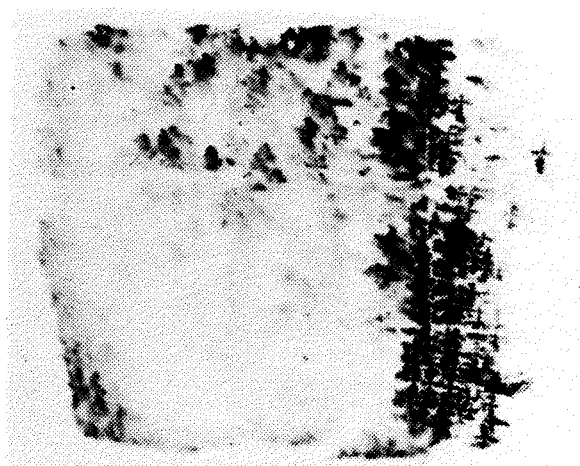
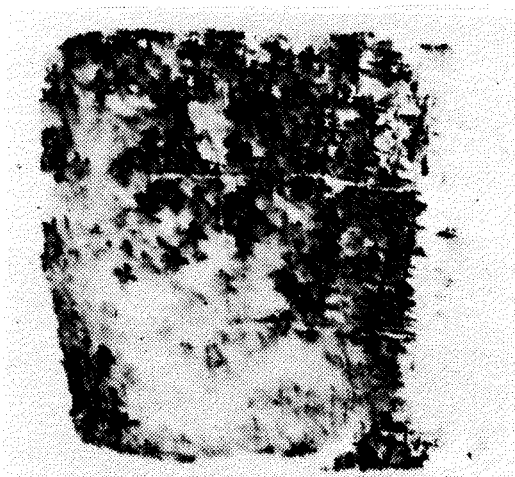
rayons X

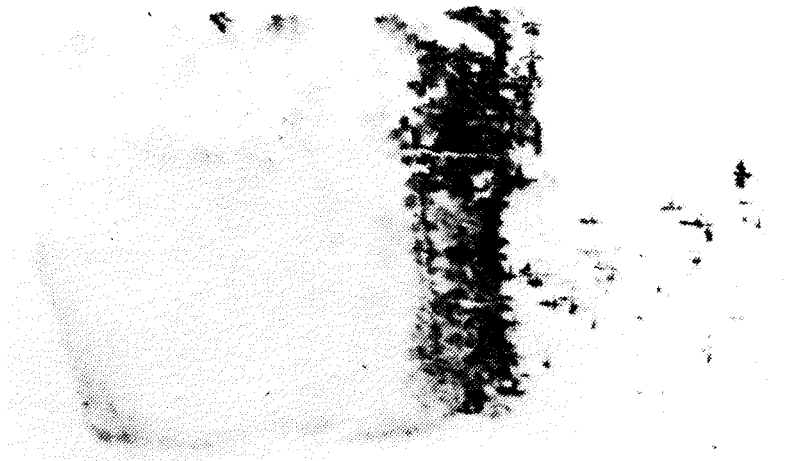


[100]



[010]

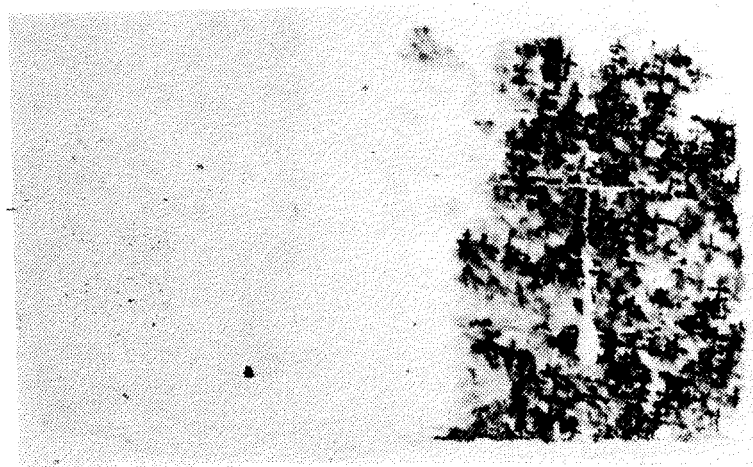
 $\Phi = 90^{\circ}55'02''$  $\Phi = 89^{\circ}55'06''$  $\Phi = 90^{\circ}35'25''$  $\Phi = 90^{\circ}15'05''$



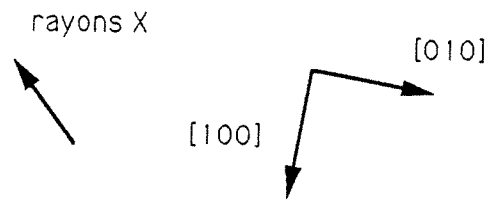
$\Phi = 89^{\circ}34'57''$



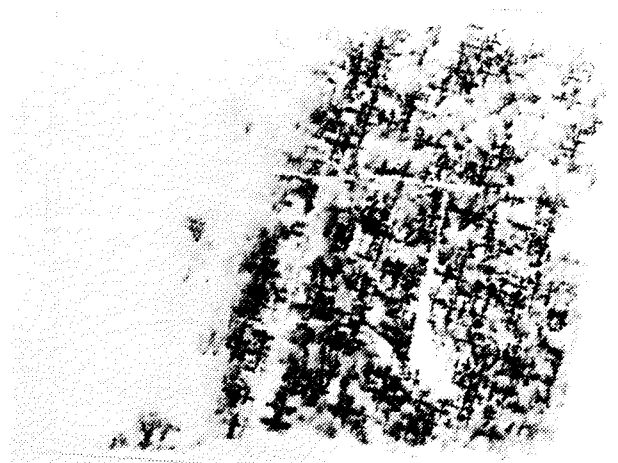
$\Phi = 89^{\circ}15'28''$



$\Phi = 88^{\circ}55'42''$

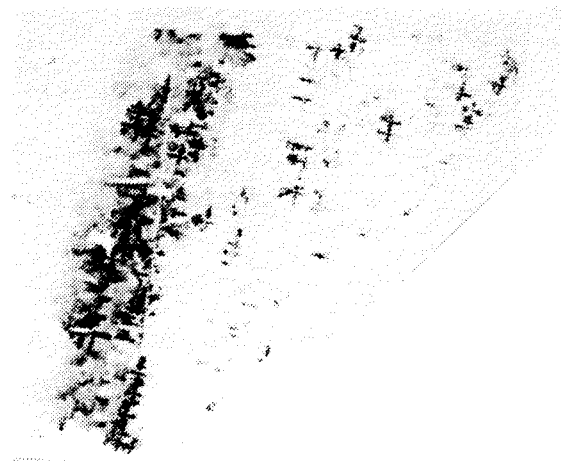
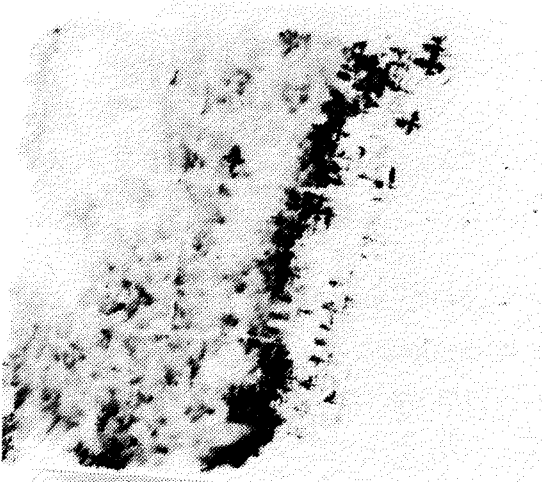


$\Phi = 89^{\circ}30'37''$



$\Phi = 88^{\circ}59'28''$

$\Phi = 87^{\circ}30'39''$



$\Phi = 88^{\circ}30'08''$

$\Phi = 87^{\circ}59'56''$

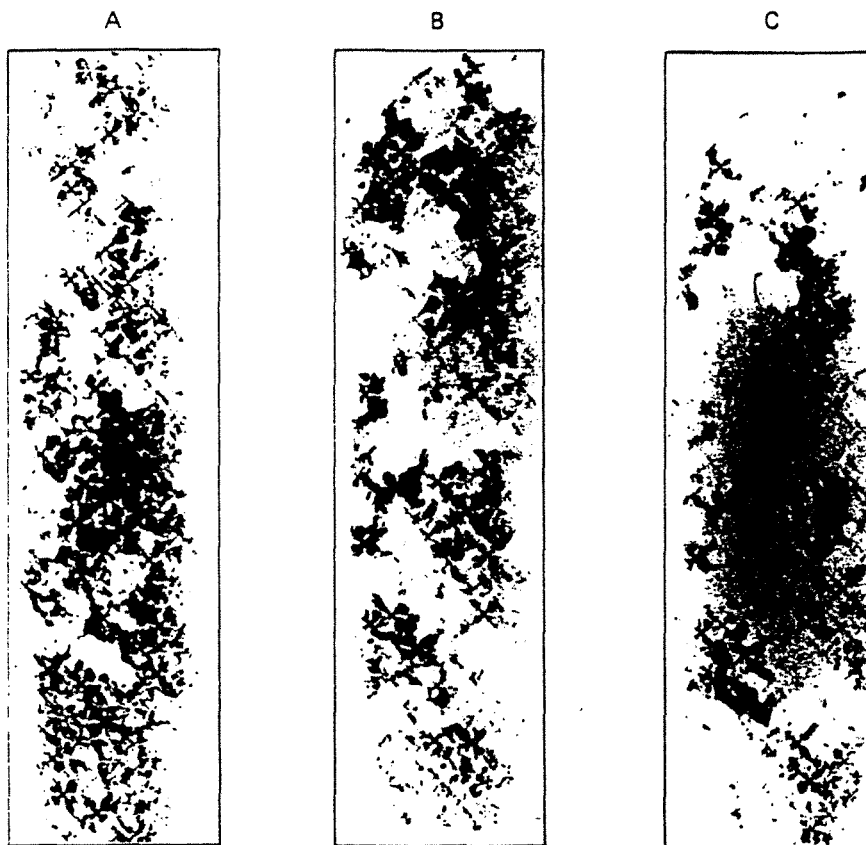
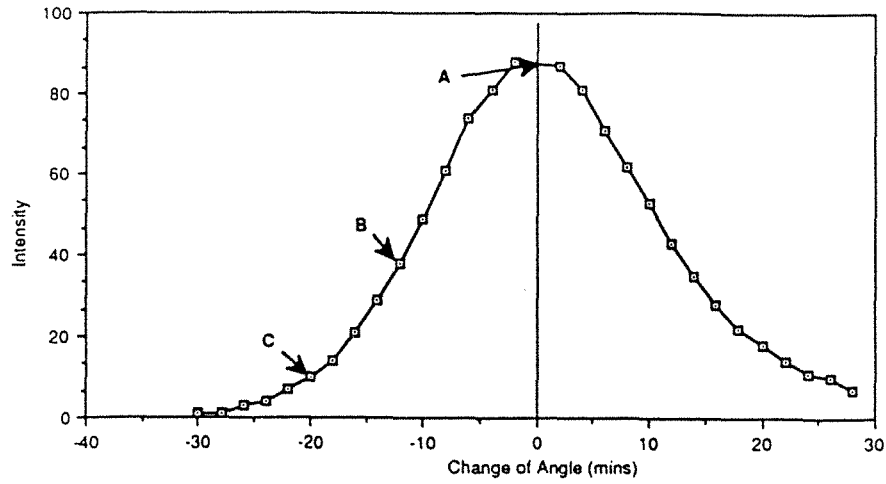


Figure V-10 : Profil de diffraction X réalisé sur une portion de section transversale dans une branche de l'éprouvette à deux branches, et topographies pour l'angle correspondant à l'intensité maximum (A), à mi-hauteur (B) et à 1/9 de l'intensité maximum (C) [4].

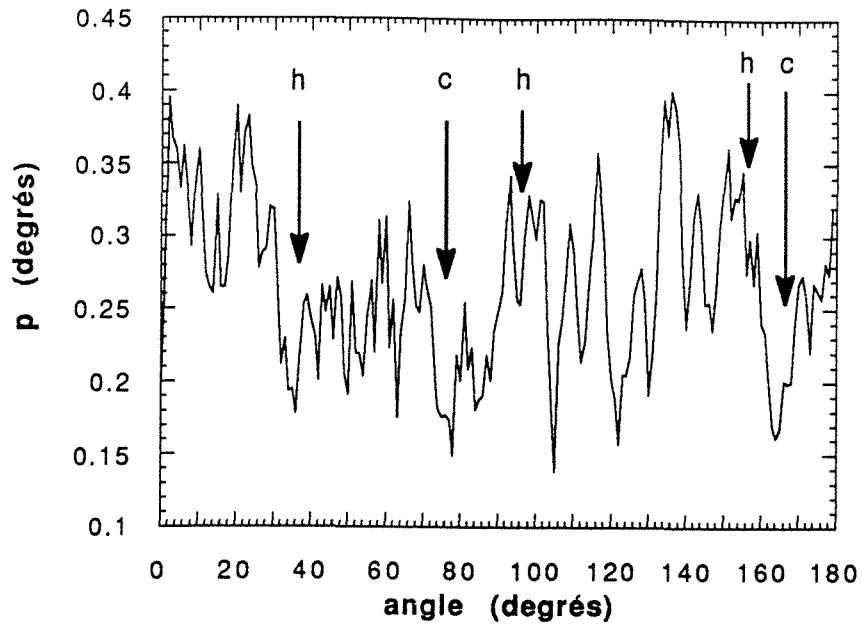
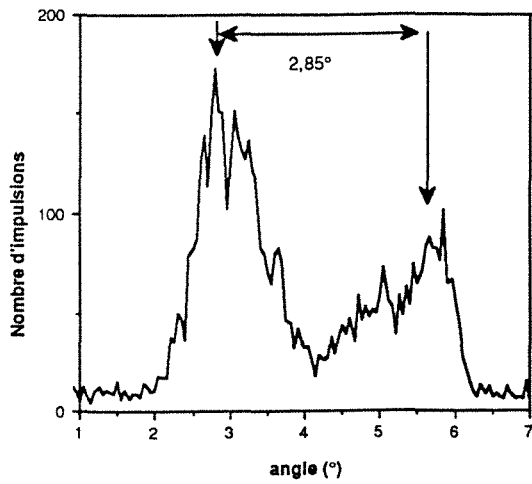
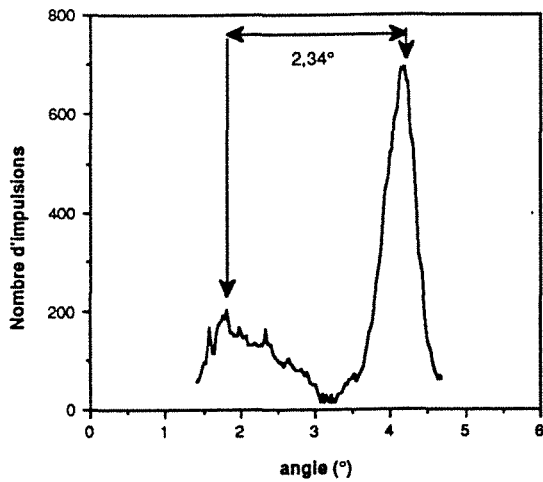


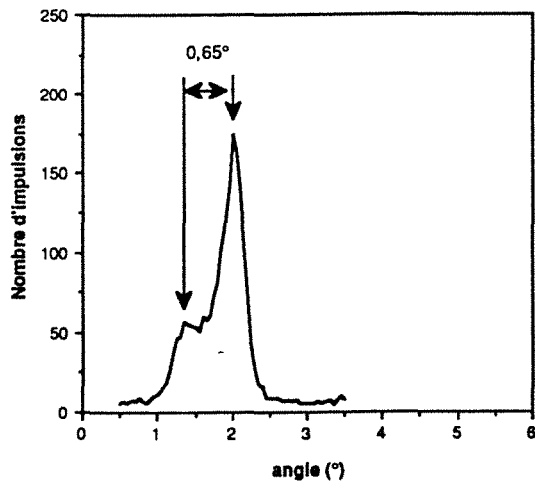
Figure V-11 : Distribution de la distance angulaire moyenne p en fonction de la direction de la paire de dendrites sur le plan de la section. Les marques du réseau hexagonal (h) et carré (c) correspondent à celles de la figure IV-8.



à 115 mm de la sortie de sélecteur



à 70 mm de la sortie de sélecteur



dans la zone de séparation

Figure V-12 : Evolution de la qualité cristalline dans la branche 2 de l'éprouvette à deux branches en fonction de la distance à la sortie de sélecteur. Les profils de diffraction γ correspondent à la diffraction des plans (002) autour de [100]. L'origine des angles est arbitraire et différente pour chaque profil.

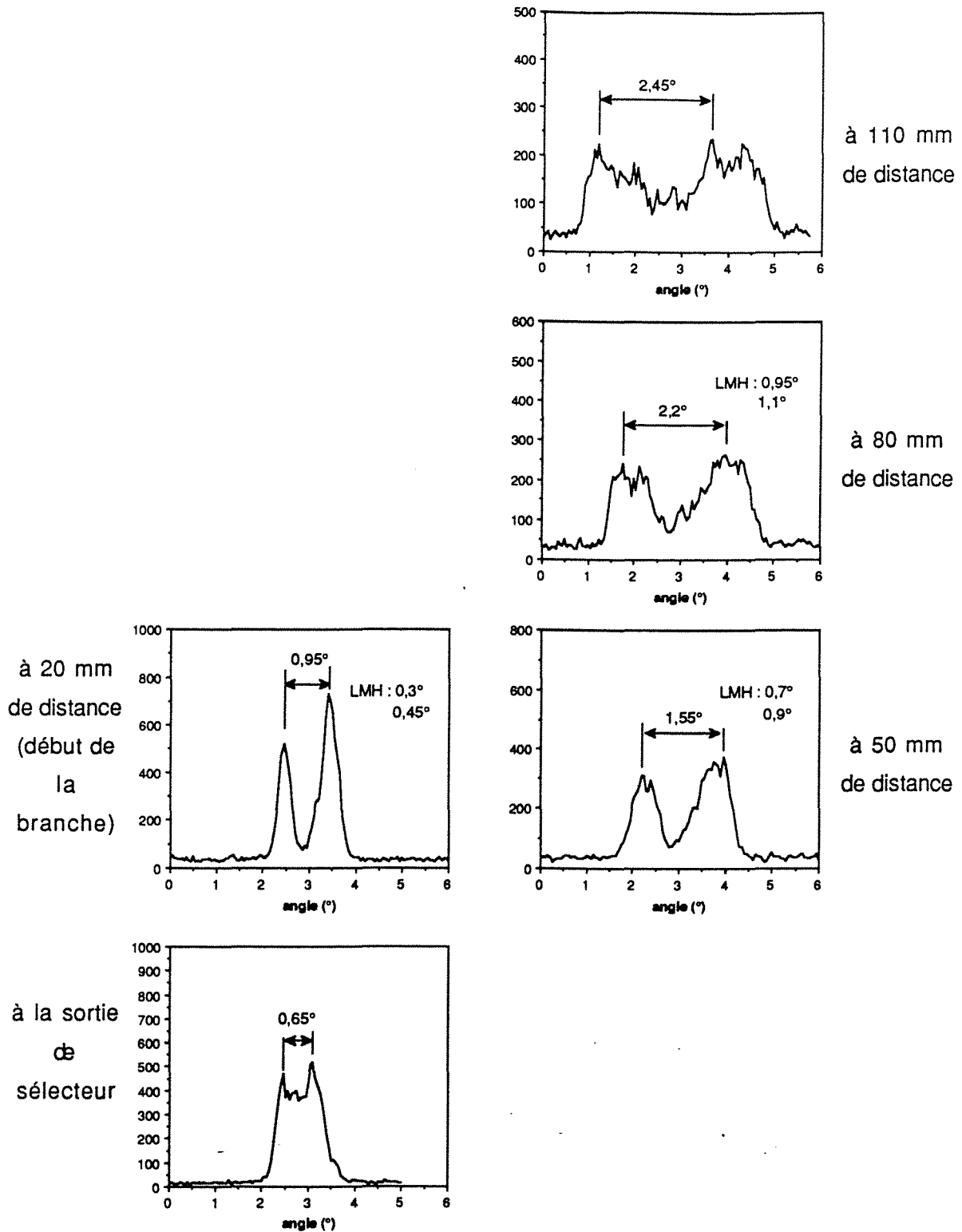
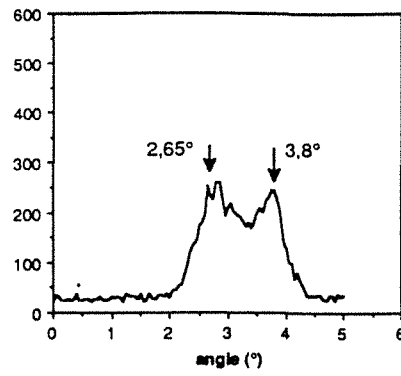


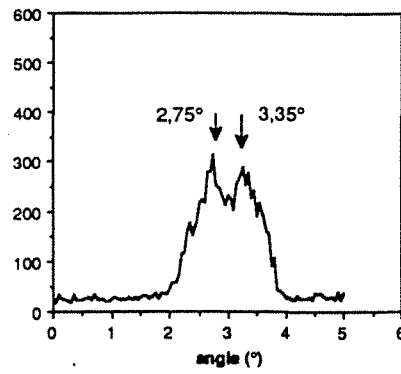
Figure V-13 : Evolution de la qualité cristalline avec la distance à la sortie de sélecteur dans une branche de l'autre éprouvette à deux branches. L'origine des angles est arbitraire mais identique pour chaque profil de diffraction.

(a) axe de rotation [100].

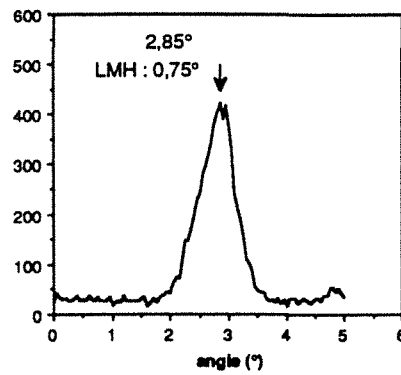
à 110 mm
de distance



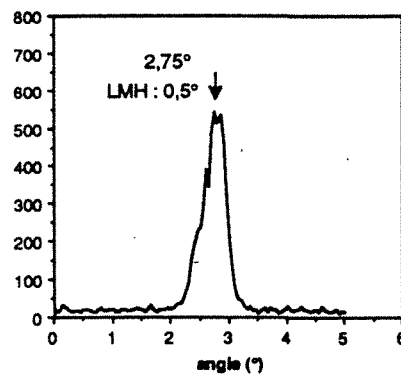
à 80 mm
de distance



à 50 mm
de distance



à 20 mm
de distance



(V-13 b) axe de rotation $[0\bar{1}0]$.

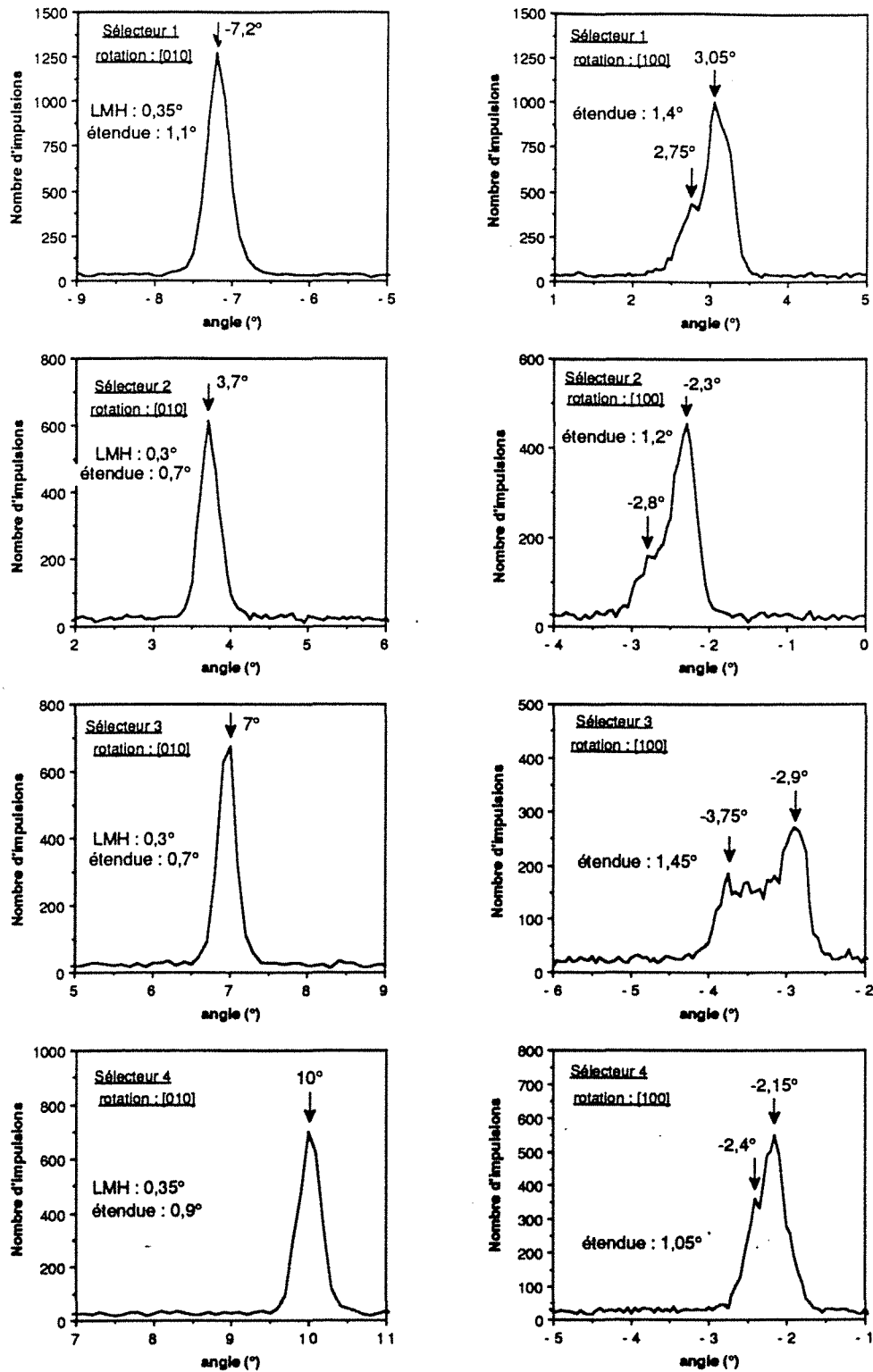


Figure V-14 : Profils de diffraction γ de la fin des sélecteurs pour les axes de rotation [010] et [100]. L'origine des angles de chaque profil est arbitraire.

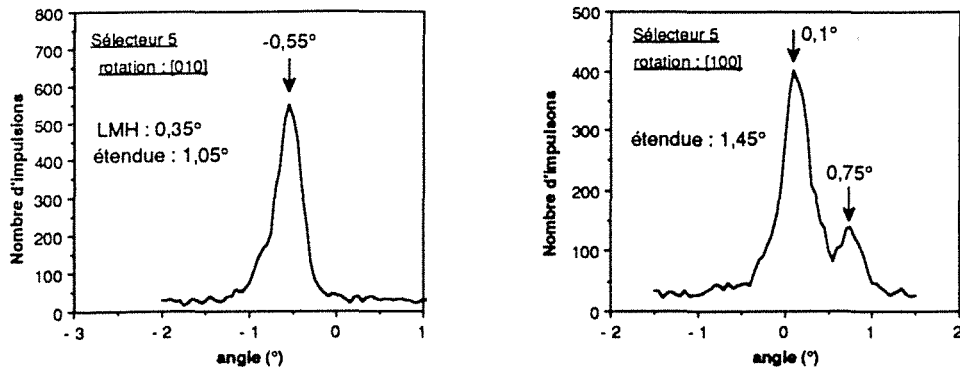


Figure V-15 : Profils de diffraction γ de la fin du sélecteur de l'éprouvette 5 pour les axes de rotation [010] et [100]. L'origine des angles de chaque profil est arbitraire.

[010]

rotation autour de
l'axe $[\bar{1}10]$,
variation d'angle :
 $0,5^\circ$



rotation autour de
l'axe $[110]$,
variation d'angle :
 $0,5^\circ$

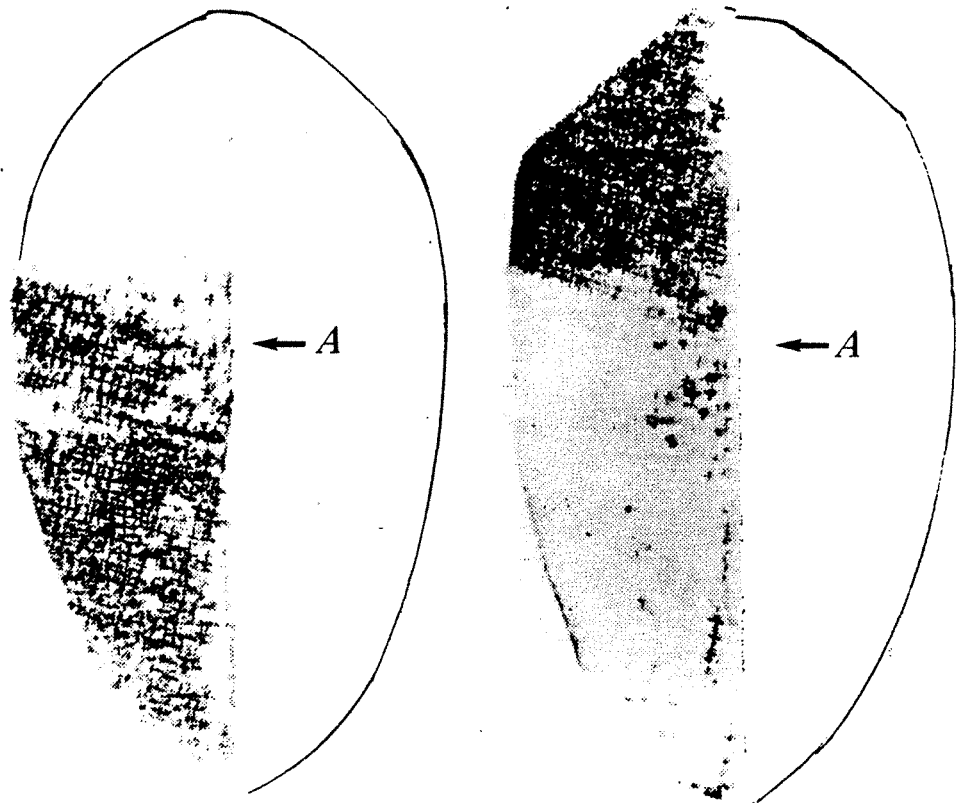


Figure V-16 : Séries de topographies X d'une demi-section transversale d'une zone à séparation ménagée, réalisées autour d'axes de rotation à 90° l'un de l'autre. La région A est celle de la figure IV-2.

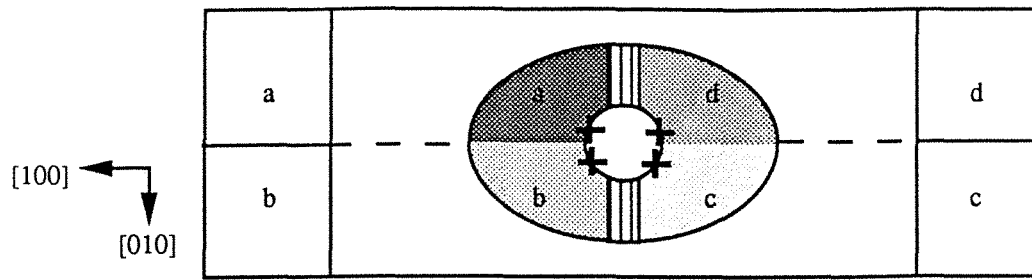
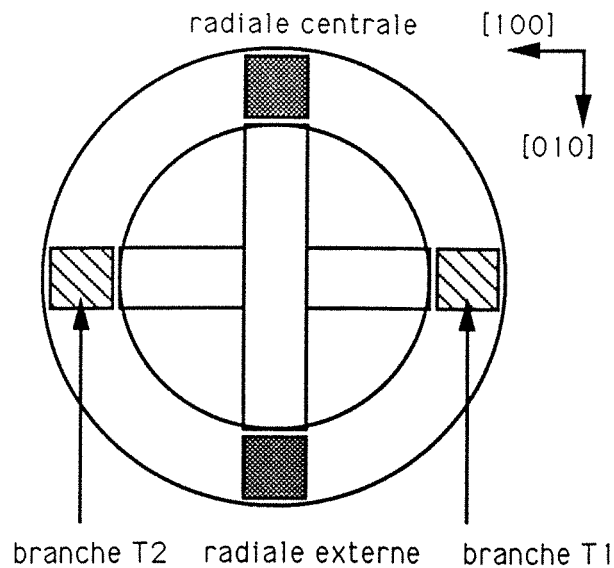
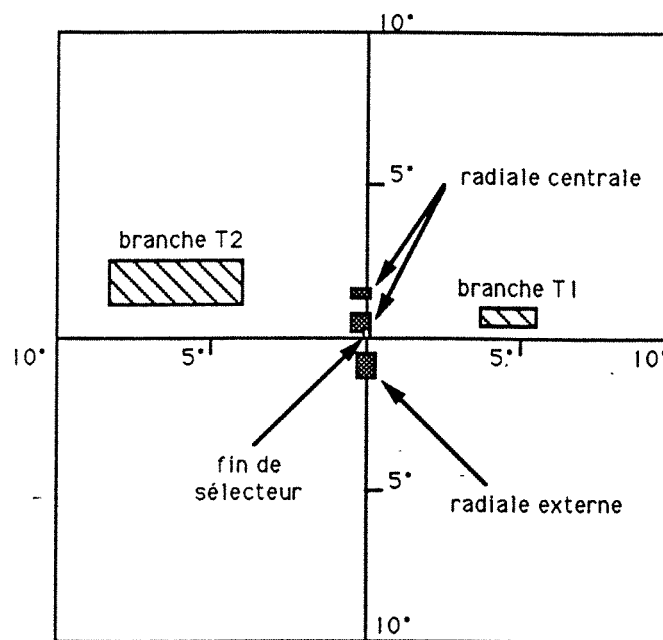


Figure V-17 : Schéma de formation des sous-grains dans une éprouvette à zone de séparation ménagée.

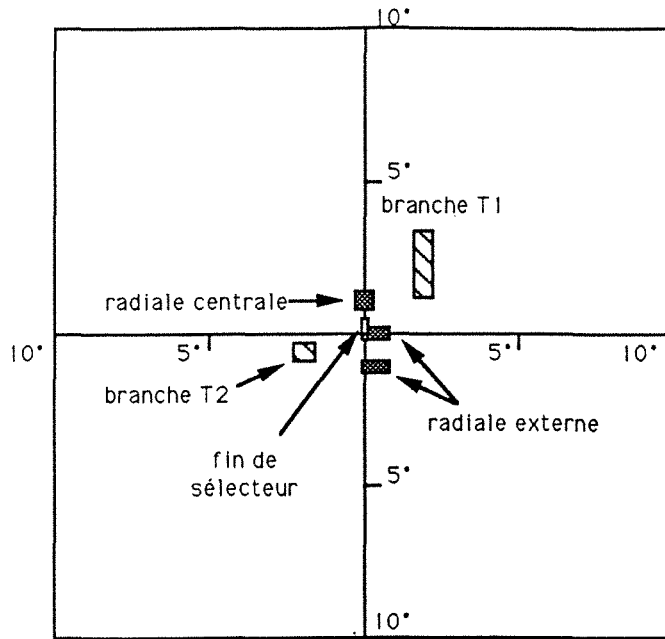


(a) position des branches dans l'éprouvette ; la zone de séparation des branches tangentielle est soit au-dessus, soit en-dessous de celle des branches radiales.

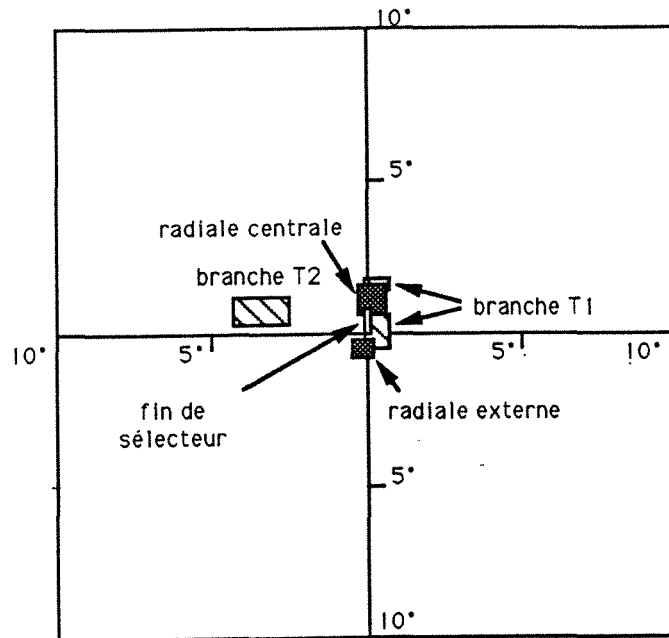


(b) éprouvette 1.

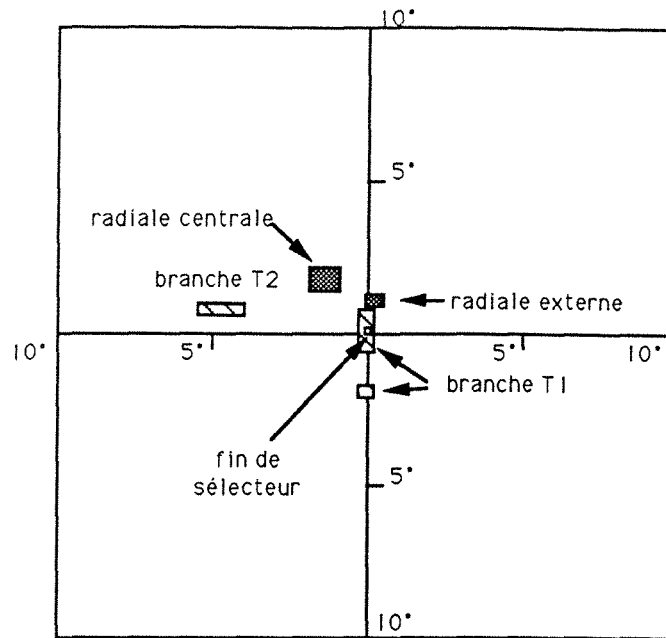
Figure V-18 : Projections stéréographiques de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches des éprouvettes à quatre branches. Les projections sont centrées sur le maximum du profil de diffraction de la fin de sélecteur.



(V-18 c) éprouvette 2.



(V-18 d) éprouvette 3.



(V-18 e) éprouvette 4.

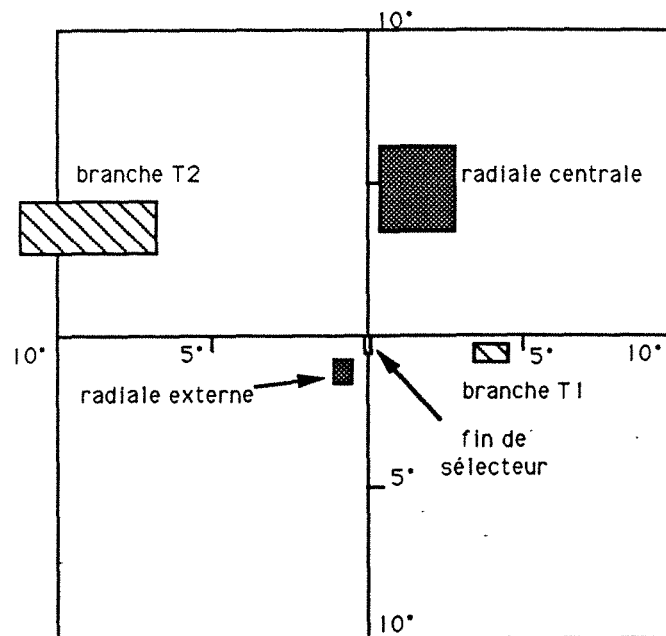


Figure V-19 : Projection stéréographique de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches de l'éprouvette 5. Les conventions sont identiques à celles de la figure V-18.

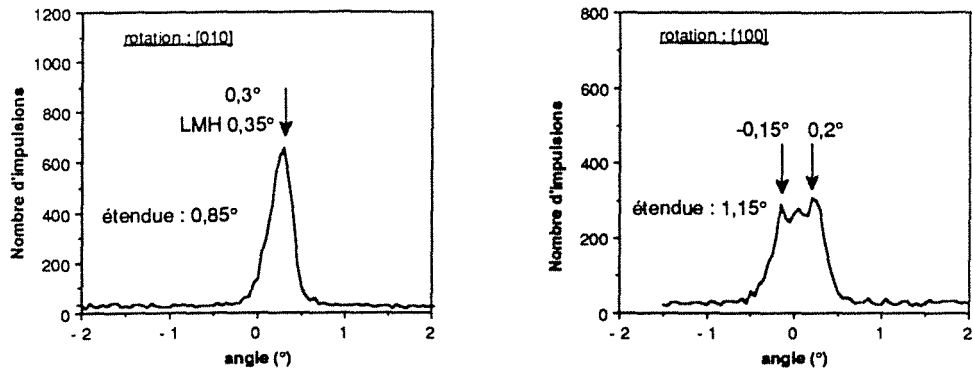


Figure V-20 : Profils de diffraction γ de la fin du sélecteur sélectionnant à 45°. L'origine des angles est arbitraire.

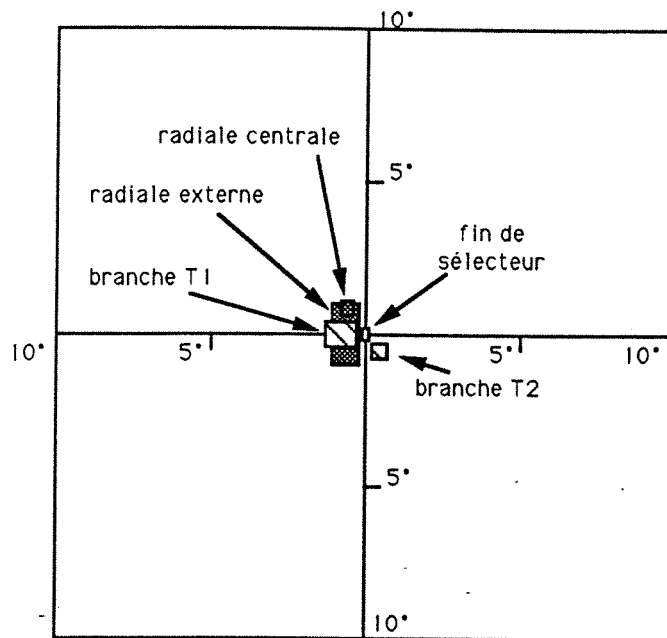
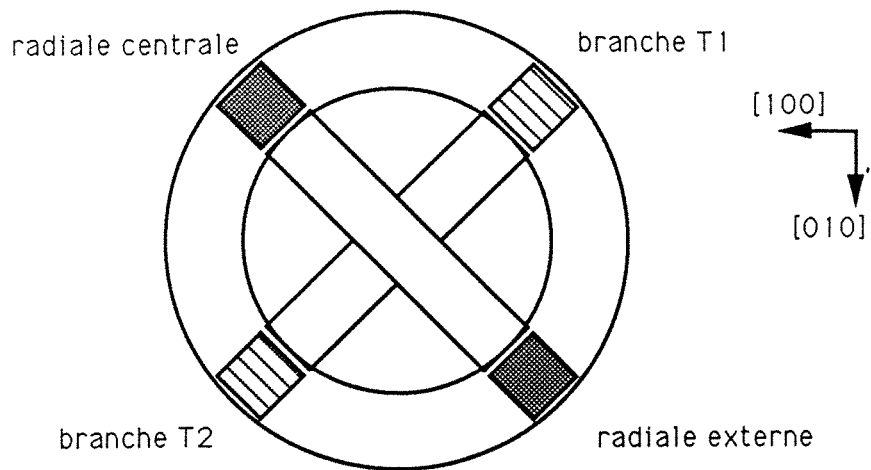


Figure V-21 : Projection stéréographique de la mosaïcité et de l'écart angulaire entre branches en haut des branches de l'éprouvette à sélection à 45° . Le schéma du haut indique la position des branches et le repère cristallographique utilisé. La position de l'éprouvette dans le four est identique à celle des éprouvettes précédentes.

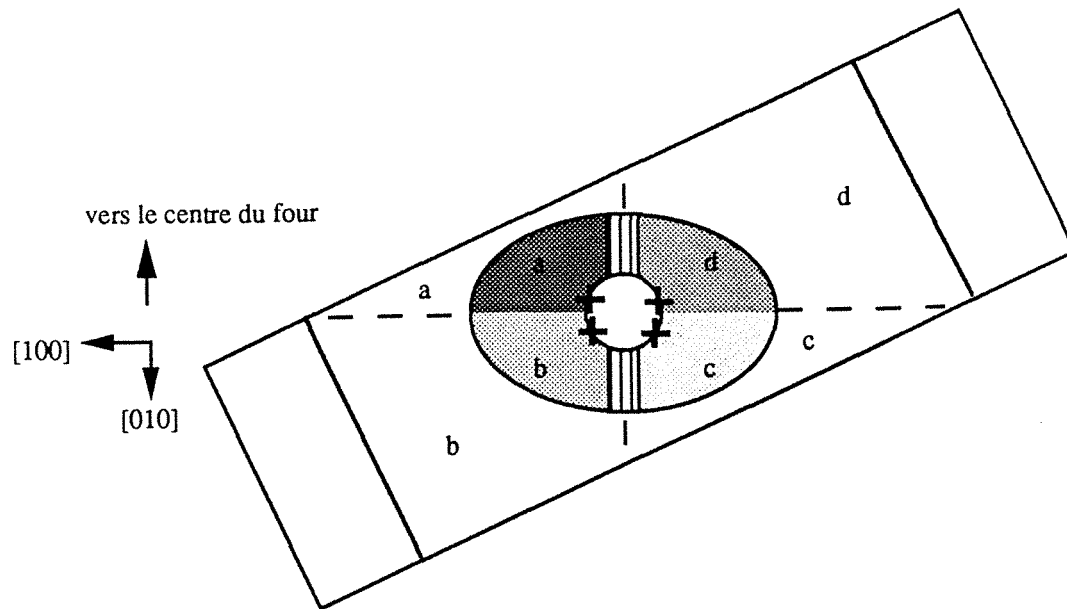


Figure VI-1 : Schéma de formation possible d'un seul sous-grain par branche d'éprouvette, dans le cas de l'éprouvette à deux branches.

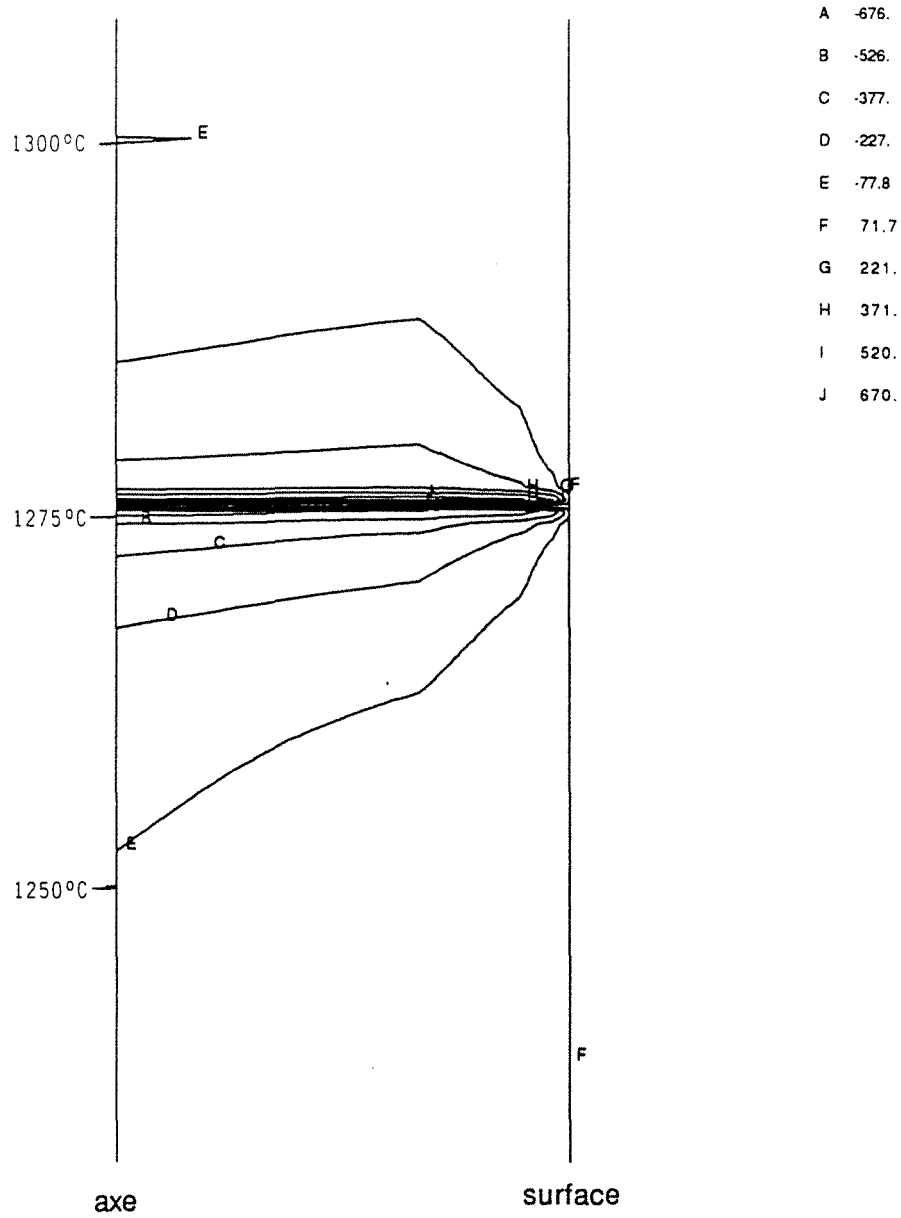
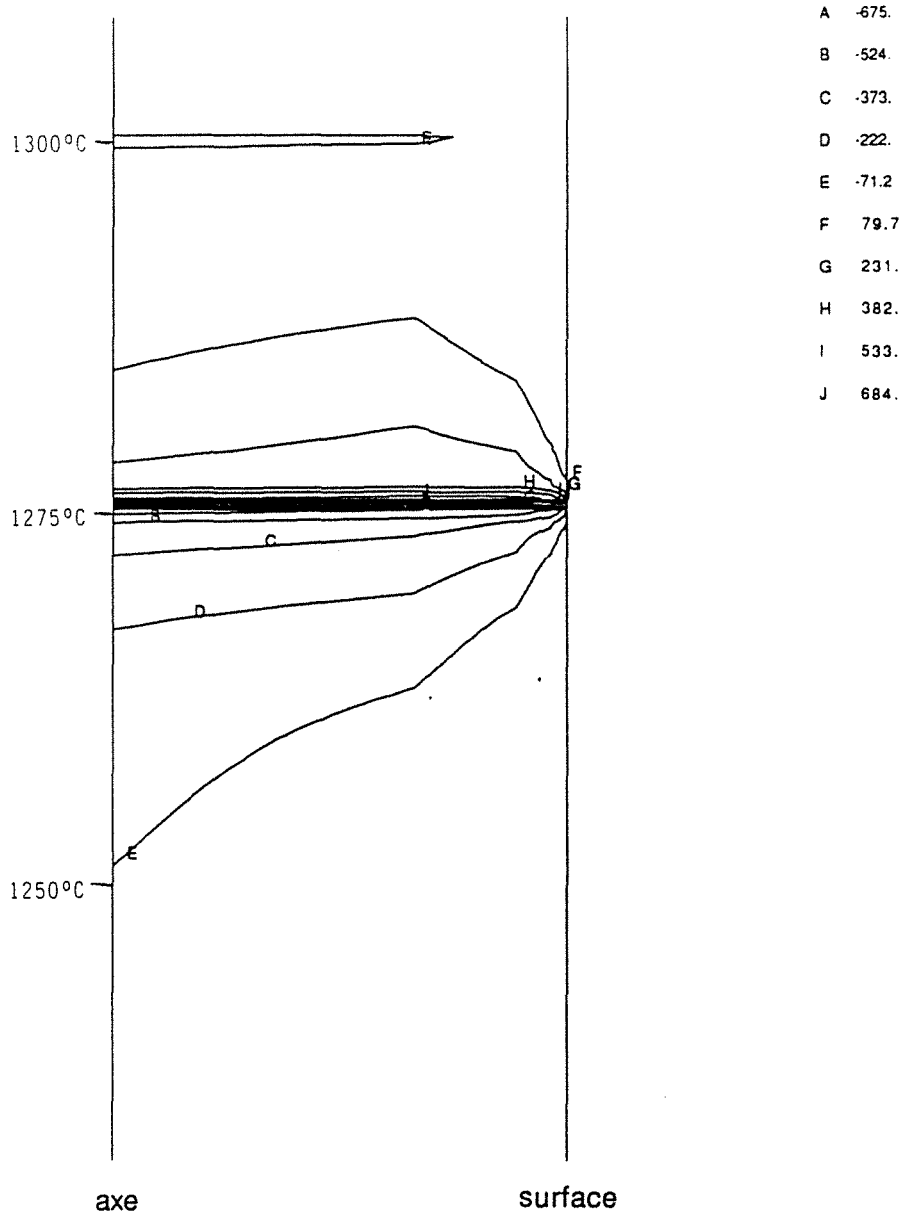
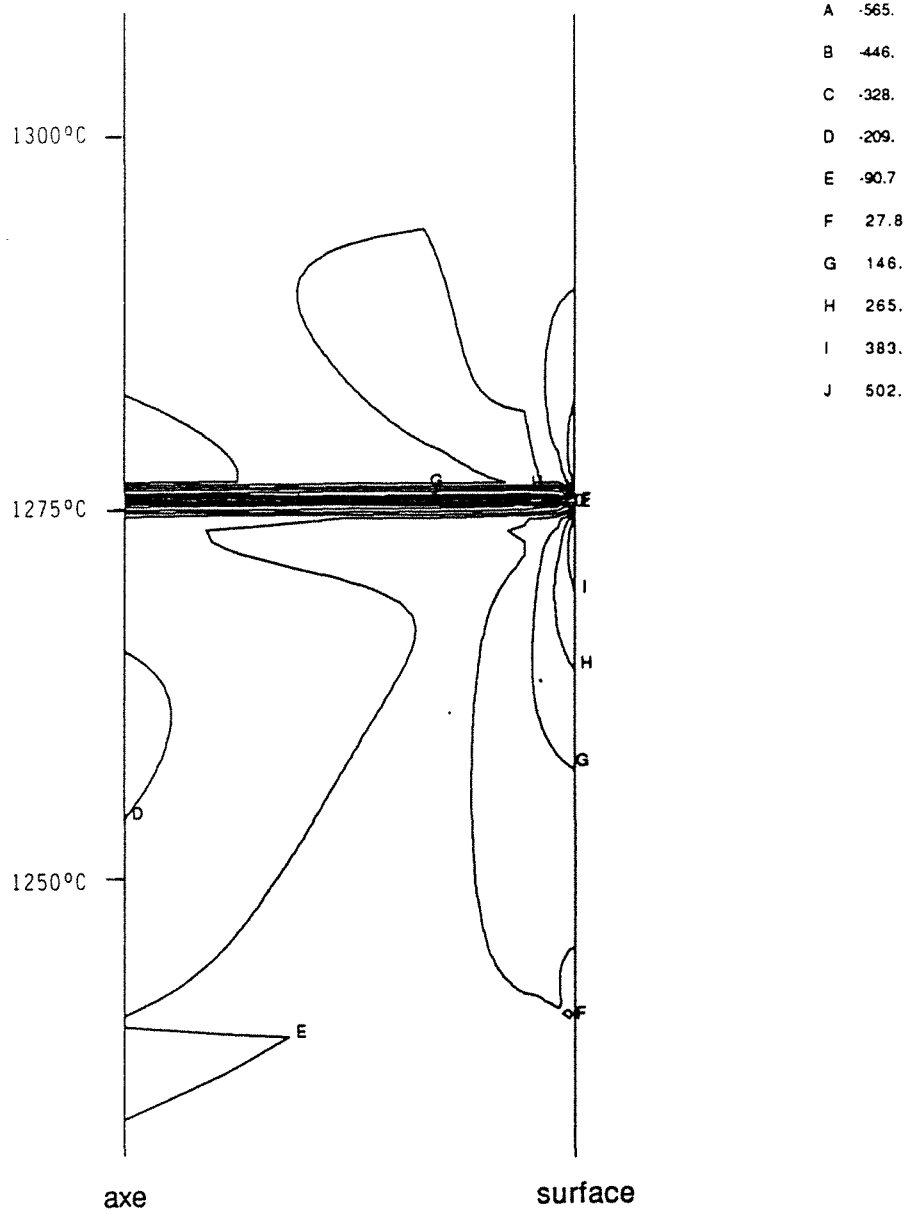


Figure VI-2 : Cartes d'isocontraintes dans une portion de barreau cylindrique, de hauteur 15 cm et de rayon 1,5 cm, soumis à un gradient de température de 20 K/cm. Les températures sont indiquées.

(a) contrainte radiale σ_{rr} (en MPa).



(VI-2 b) contrainte tangentielle $\sigma_{\theta\theta}$ (en MPa).



(VI-2 c) contrainte axiale σ_{zz} (en MPa).

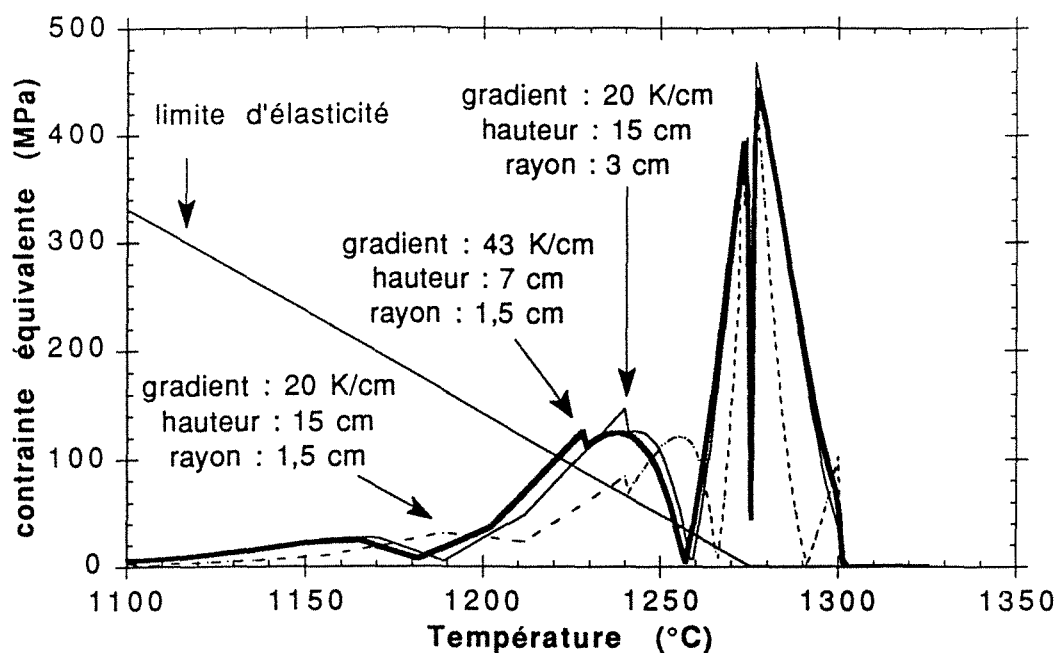


Figure VI-3 : Evolution de la contrainte équivalente pour différents barreaux en fonction de la température. Comparaison avec la limite d'élasticité.

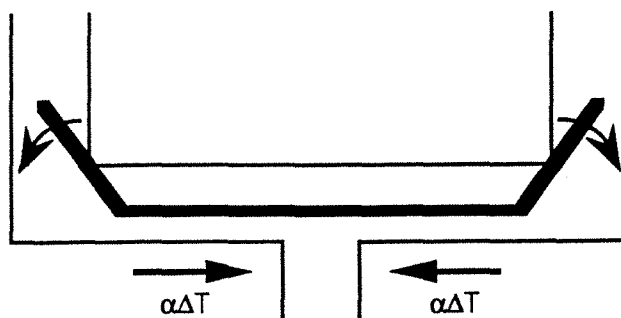


Figure VI-4 : Schéma de formation des désorientations entre branches dans le cas de l'éprouvette à quatre branches, suivant l'hypothèse d'un retrait contrarié aux extrémités de la zone de séparation. α est le coefficient de dilatation linéaire, ΔT , l'écart de température.

