



**HAL**  
open science

# Contribution à l'étude expérimentale des microségrégations dans les aciers présentant une réaction péritectique

Abdelaziz Addad

► **To cite this version:**

Abdelaziz Addad. Contribution à l'étude expérimentale des microségrégations dans les aciers présentant une réaction péritectique. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2007. Français. NNT : 2007INPL038N . tel-01752895

**HAL Id: tel-01752895**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01752895v1>**

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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

# **THESE DE DOCTORAT**

DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE  
Spécialité : Science et Ingénierie des Matériaux  
Ecole Doctorale : EMMA

Réalisée au  
LABORATOIRE DE SCIENCE ET GENIE DES MATERIAUX ET DE  
METALLURGIE à L'ECOLE DES MINES DE NANCY.

Présentée par :  
**Abdelaziz ADDAD**

## **CONTRIBUTION A L'ETUDE EXPERIMENTALE DES MICROSEGREGATIONS DANS LES ACIERS PRESENTANT UNE REACTION PERITECTIQUE**

Soutenue publiquement à Nancy le 28 juin 2007

Devant le jury composé de

M. Pierre ARCHAMBAULT	Président
M. Yves BIENVENU	Rapporteur
M. Manuel BOBADILLA	Rapporteur
M. Pierre Emmanuel RICHY	Examineur
M. Hervé COMBEAU	Co-directeur de thèse
M. Gérard LESOULT	Directeur de thèse

<b>I - INTRODUCTION.....</b>	<b>3</b>
<b>II - ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....</b>	<b>9</b>
II - 1. LA SEGREGATION CHIMIQUE.....	9
<i>La ségrégation, un phénomène multiéchelles.....</i>	10
<i>Définition de la macroségrégation.....</i>	10
<i>Définition de la microségrégation.....</i>	11
II - 2. TRAVAUX ANTERIEURS SUR LA MICROSEGREGATION.....	11
II - 3. EFFET DE LA MICROSEGREGATION SUR LES PRODUITS METALLURGIQUES.....	12
II - 4. CARACTERISATION DE LA MICROSEGREGATION.....	12
<i>Metallographie.....</i>	12
<i>Profils de concentrations.....</i>	14
<i>Le taux de microségrégation.....</i>	15
<i>Courbes de fractions cumulées.....</i>	15
<i>Lignes d'isocontours.....</i>	19
<i>Cartographie.....</i>	20
<i>Courbes de corrélations.....</i>	21
II - 5. PRINCIPALES VARIABLES QUI INFLUENT SUR LA MICROSEGREGATION.....	21
<i>La texture des grains : zone equiaxe/zone colonnaire.....</i>	21
<i>La composition chimique.....</i>	21
<i>L'interaction entre les éléments chimiques.....</i>	21
<i>La vitesse de refouissement.....</i>	23
<i>La nature de la phase.....</i>	23
<i>La nature du premier solide déposé.....</i>	24
<i>Les séquences de solidification.....</i>	24
<i>La surfusion à la pointe.....</i>	27
<i>La réaction péritectique.....</i>	29
II - 6. CARACTERISATION EXPERIMENTALE DE LA REACTION PERITECTIQUE.....	30
<i>Caractérisation de la microstructure.....</i>	30
<i>Diagrammes de sélection des microstructures.....</i>	32
<i>Evolution de la microségrégation au cours de la réaction peritectique.....</i>	32
II - 7. APPROCHE THEORIQUE DE LA MICROSEGREGATION.....	33
II - 8. EFFET DE LA DIFFUSION DANS SOLIDE SUR LA MICROSEGREGATION.....	34
II - 9. FRONT DE SOLIDIFICATION.....	34
II - 10. DESCRIPTION DU MODELE DE MICROSEGREGATION.....	35
<i>Description du modèle.....</i>	35
<i>Modèles de microségrégation 1D avec prise en compte de microstructures dendritiques complexes.....</i>	37
II - 11. SYNTHESE.....	39
<b>III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES.....</b>	<b>43</b>
III - 1. DEMARCHE EXPERIMENTALE.....	43
III - 2. DESIGNATION ET COMPOSITION DES ALLIAGES.....	44
III - 3. DISPOSITIF DE SOLIDIFICATION DIRIGEE (SD).....	44
<i>Principe.....</i>	44
<i>Caractéristiques techniques.....</i>	45
III - 4. DISPOSITIF DE TREMPER EN SOLIDIFICATION DIRIGEE (TSD).....	46
<i>Principe.....</i>	46
<i>Caractéristiques techniques.....</i>	46
III - 5. PARAMETRES DES ESSAIS DE SD ET DE TSD.....	48
III - 6. METHODES D'ETUDES :.....	49
<i>Métallographie.....</i>	49
<i>Analyse d'images.....</i>	51
<i>Incertitudes sur les mesures.....</i>	54
<i>Profil de concentration.....</i>	58
<i>Cartographie chimique.....</i>	59
<b>IV - MICROSTRUCTURES ET MICROSEGREGATION DANS LE METAL SOLIDIFIE.....</b>	<b>63</b>
IV - 1. ECHANTILLONS DES ESSAIS DE SD ET DU LINGOT.....	63
IV - 2. NATURE DES MICROSTRUCTURES EN SD.....	64
IV - 3. MICROSEGREGATION.....	65

<i>Influence des tailles</i> .....	65
<i>Influence de la composition</i> .....	70
<i>Influence de la nature de la solidification</i> .....	73
<i>Influence de la texture des grains</i> .....	77
IV - 4. SYNTHÈSE .....	84
<b>V - FORMATION DE LA MICROSEGREGATION</b> .....	<b>89</b>
V - 1. FORMATION DE LA MICROSEGREGATION DU NICKEL .....	89
<i>Solidification primaire en <math>\delta</math></i> .....	89
<i>Solidification primaire en <math>\gamma</math></i> .....	97
V - 2. FORMATION DE LA MICROSEGREGATION DU CHROME .....	98
<i>Solidification primaire en <math>\delta</math></i> .....	98
<i>Solidification primaire en <math>\gamma</math></i> .....	100
V - 3. ÉVOLUTION DE LA COMPOSITION À L'INTERFACE .....	103
<i>Évolution de la composition du nickel</i> .....	103
<i>Évolution de la composition du chrome</i> .....	104
<i>Effet de la taille de la structure</i> .....	105
V - 4. EFFET DE LA RÉACTION PERITECTIQUE .....	108
<i>Caractérisation expérimentale</i> .....	108
<i>Caractérisation de l'interface <math>\delta/\gamma</math></i> .....	110
<i>Évolution de la composition du nickel à l'interface <math>\delta/\gamma</math></i> .....	113
<i>Description de la régression de la ferrite</i> .....	114
<i>Genèse de la microstructure</i> .....	114
V - 5. EFFET DE LA MICROSTRUCTURE SUR LA MICROSEGREGATION .....	120
<i>Structure cellulaire et structure dendritique</i> .....	120
V - 6. SYNTHÈSE .....	128
<b>VI - DISCUSSIONS</b> .....	<b>133</b>
VI - 1. LE MODÈLE NUMÉRIQUE .....	133
VI - 2. MODÉLISATION DE LA MICROSEGREGATION EN CROISSANCE DENDRITIQUE COLONNAIRE .....	133
VI - 3. RÉSULTATS SUR LESQUELS A PU ÊTRE MÈNÉE LA COMPARAISON SIMULATION (LT) / EXPÉRIENCES (AA) .....	134
<i>Microségrégation dans le métal solidifié</i> .....	134
<i>Évolution de la microségrégation</i> .....	138
<i>Profils de composition</i> .....	139
<i>Effet de la taille de la structure</i> .....	142
<i>Évolution des fractions de phases</i> .....	143
<b>VII - CONCLUSIONS GÉNÉRALES ET PERSPECTIVES</b> .....	<b>147</b>
VII - 1. LES PRINCIPAUX RÉSULTATS DE NOTRE ÉTUDE .....	147
VII - 2. SYNTHÈSE .....	151
<i>Résultats Expérimentaux</i> .....	151
<i>Confrontation avec la modélisation</i> .....	151
VII - 3. PERSPECTIVES .....	155
<b>VIII - BIBLIOGRAPHIE</b> .....	<b>159</b>
<b>IX - ANNEXES</b> .....	<b>167</b>
IX - 1. ANNEXE 1 .....	167
IX - 2. ANNEXE 2 .....	170
IX - 3. ANNEXE 3 .....	171
IX - 4. ANNEXE 4 : .....	172
IX - 5. ANNEXE 5 : .....	173
IX - 6. ANNEXE 6 : .....	174
IX - 7. ANNEXE 7 : .....	175
IX - 8. ANNEXE 8 : .....	176
IX - 9. ANNEXE 9 : .....	177

# ***Chapitre I***

## ***Introduction***



## I - INTRODUCTION

La ségrégation des éléments chimiques est un phénomène inhérent à la solidification. Très tôt les scientifiques se sont attelés à comprendre le processus physico-chimique qui contrôle la ségrégation. Dès le moyen âge, on commençait à observer le phénomène de ségrégation. L'acier de Damas constitue un bel exemple en la matière. On peut lire dans la revue de métallurgie de 1924 dans un article de B. ZSCHOKKE intitulé : Du damassé et des lames de Damas l'extrait suivant :

" Avant tout, il faut bien préciser que le vieil acier damassé véritable des Indes nommé "pulat " (en russe "bulat ") n'est aucunement de l'acier soudé. Nous avons plutôt affaire, au contraire, à un acier fondu au creuset, régulier et dont la structure particulière résulte de phénomènes de cristallisation et de ségrégation ".

L'étude de la ségrégation et de la microségrégation n'a pris son ampleur qu'au cours du dernier siècle. Les travaux originaux de Gulliver et Scheil sur la compréhension de la microségrégation et leur modélisation avec une nouvelle approche qui remettait en cause la règle du bras de levier ont donné leur véritable essor aux études relatives à la microségrégation. Le couplage entre les études expérimentales et la modélisation a permis de mieux comprendre les phénomènes de ségrégation.

Depuis la révolution industrielle, la production métallurgique et de l'acier en particulier n'a cessé de gagner en qualité et en productivité. Les mutations qu'a subies l'industrie métallurgique imposent de plus en plus des cahiers des charges rigoureux en terme de qualité du produit final. La qualité des bruts de coulée est déterminée, entre autres, par l'intensité de la ségrégation chimique.

Notre travail rentre dans un projet français de métallurgie visant à optimiser les systèmes de coulée. Ce projet porte le nom de « OSC » qui est l'acronyme de "Optimisation des Systèmes de Coulée". Ce projet a été initié par Creusot Loire Industrie (actuellement Industeel) et soutenu par le Ministère Français de l'Industrie en collaboration avec plusieurs autres industriels (Arcelor, Aubert & Duval, Ascométal, Erasteel, Fonderie de l'Atlantique, PSA) et des laboratoires universitaires de recherches en matériaux tel que le LSG2M à l'Ecole des Mines de Nancy et le CEMEF à l'Ecole des Mines de Paris. D'autres prestataires chargés de commercialiser les codes de calculs, issus de ce projet, ont été associés à ce projet (SC&C et Transvalor). Ce groupe de travail comporte aussi un centre technique : le CTIF (le Centre Technique des Industries de la Fonderie).

La partie "métallurgie" du projet OSC vise à maîtriser la coulée, la solidification, et les phénomènes thermomécaniques au cours de la solidification et du refroidissement du métal coulé. Notre travail qui en fait partie, comprend deux volets : une partie expérimentale qui m'a été confiée et une partie modélisation confiée à Ludovic THUINET. Ces deux volets avaient pour finalité l'amélioration du module « microségrégation » intégré dans le code de Calcul nommé SOLID développé au LSG2M et qui vise à prédire la macroségrégation.



La dualité des deux approches, expérimentale et numérique, constitue un atout important. En effet le travail en interaction a été une force motrice au cours de notre formation doctorale. Ceci nous a permis à chaque étape de notre travail de confirmer et d'expliquer des résultats expérimentaux avec ceux prédits par la modélisation. De même les valeurs d'entrées des modèles numériques ont été, à chaque fois que cela était possible tirées des valeurs expérimentales.

Cette thèse vise à étudier expérimentalement l'effet sur la microségrégation de :

La composition chimique

La nature du premier solide déposé

La réaction péritectique

La nature de la microstructure (dendritique/cellulaire)

La texture des grains (colonnaire/ équiaxe)

Les gammes d'alliages choisies font partie des systèmes Fe-Ni-C et Fe-C-Cr. Hormis la caractérisation faite sur un lingot industriel de 100C6, tous les essais ont été menés à l'échelle du laboratoire, principalement sur un dispositif de solidification dirigée (SD) et un dispositif de trempe en cours de solidification dirigée (TSD). La caractérisation chimique a été menée essentiellement à la microsonde de Castaing. La microscopie quantitative fut utilisée pour déterminer les phases et leurs proportions.

Ce mémoire se divise en cinq chapitres :

**Le premier chapitre**, est une bibliographie, il résume les différentes approches utilisées pour la caractérisation de la microségrégation. Elle n'est nullement exhaustive. Nous avons retracé les méthodes de caractérisation de la microségrégation et les différents travaux effectués sur ce sujet en rapport avec notre programme de recherche.

**Le deuxième chapitre** traite des différentes techniques expérimentales utilisées lors de notre travail. Nous avons décrit dans ce chapitre les différents dispositifs expérimentaux, le mode de préparation des échantillons et le dépouillement des résultats expérimentaux. Nous avons aussi traité les différentes incertitudes de mesures liées à l'acquisition de la température, de la détermination des taux de phases et des concentrations chimiques. Une introduction sur des outils statistiques pour la détermination des distances caractéristiques est aussi présentée.

**Le troisième chapitre** est consacré à décrire la caractérisation de la microségrégation en fin de solidification. Pour cela nous avons utilisé des barreaux de 20 mm de diamètre. Dans ce chapitre nous avons étudié l'effet de la composition et de la nature du premier solide sur la microségrégation du nickel et du chrome. Nous avons aussi discuté de l'effet de la taille de la structure et de la position de la zone d'analyse sur la microségrégation. Nous avons aussi montré l'influence de la texture des grains sur la microségrégation. Pour cela, nous avons comparé la ségrégation du nickel entre une zone colonnaire et une zone équiaxe dendritique et ceci sur un essai de SD. Nous avons aussi comparé la ségrégation

du chrome entre une zone colonnaire et une zone équiaxe globulaire et ceci sur un lingot industriel (100C6).

**Le quatrième chapitre** traite de l'étude de la formation de microségrégation au cours de la solidification. Dans cette partie nous avons suivi l'évolution de la microségrégation au cours de la solidification à l'aide d'un traitement des mesures de composition chimique à la microsonde de *CASTAING*. Nous avons aussi montré outre l'originalité de ces courbes, leurs convergences en fin de solidification vers celles trouvées en fin de solidification sur des essais de SD. Les évolutions des fractions de phases au cours de la solidification et de la composition chimique dans le solide et dans le liquide ont été tracées expérimentalement.

Nous avons établi également le déroulement de la réaction péritectique et son influence sur la microségrégation. Nous avons montré la déplétion du nickel à l'interface ferrite/austénite et l'évolution de cette interface au cours de la réaction péritectique. Il a été montré que cet appauvrissement peut expliquer les faibles valeurs du nickel dans les courbes de fractions cumulées au cours de la réaction péritectique. Nous avons aussi suivi l'évolution du profil du nickel le long d'une dendrite et son évolution au cours de la réaction péritectique.

Nous avons par la suite effectué une étude sur l'effet de la microstructure sur la microségrégation. Nous avons comparé les courbes de fractions cumulées et leur évolution au cours de la solidification entre une structure dendritique et une structure cellulaire. Enfin, nous avons retracé la genèse des microségrégations observées en fin de solidification dans le cas des structures cellulaires.

**Le cinquième chapitre** est consacré à la comparaison des résultats expérimentaux (A.ADDAD) et des résultats numériques (L.THUINET). Nous avons aussi mis en lumière les résultats expérimentaux qui sont hors du cadre actuel des travaux de L.THUINET. Nous terminerons notre manuscrit par des conclusions et des perspectives.



## ***Chapitre II***

# ***Étude Bibliographique***



## II - ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

### II - 1. LA SEGREGATION CHIMIQUE

Dans le domaine de la métallurgie, on définit la ségrégation comme l'hétérogénéité de la composition chimique sur le produit final. Elle est induite au cours de la solidification. Cette ségrégation est le plus souvent source de défauts de santé interne, pour les pièces produites et ceci quel que soit le procédé utilisé : moulage, coulée continue, métallurgie des poudres....

Elle est souvent à l'origine de certains défauts tels que la crique à chaud, les microretassures. Elle peut être aussi associée à des phénomènes de précipitations tel que les carbures, les eutectiques, et les sulfures. Elle engendre aussi dans certains cas une augmentation de l'intervalle de solidification par la présence de poches encore liquide au-dessous de la température du solidus, ce qui peut favoriser des ruptures au niveau de ces zones en fin de solidification. Elle engendre aussi une baisse des propriétés mécaniques : résilience, résistance à la rupture, limite élastique. Ceci est prévisible du fait de la forte corrélation entre les propriétés mécaniques et l'homogénéité de la structure.

Il est clair, donc, que l'étude de la ségrégation, en particulier la microségrégation dans les alliages métalliques, n'a rien d'un sujet purement fondamental, ni d'une construction de l'esprit. Bien au contraire, il s'agit de comprendre en premier lieu le phénomène et en second lieu d'apporter des éléments de réponses à l'industrie métallurgique qui est confrontée au quotidien à ce problème.

Le sujet a été abordé par différentes études soit empiriques, soit théoriques [Lacaze et Lesoult, 1]. Suite aux évolutions du calcul numérique, l'approche numérique est venue étoffer l'approche théorique afin de combiner les équations qui régissent la ségrégation (mécanique des fluides, thermodynamique, transfert de masse et de chaleur,...) en algorithmes qui permettent de prédire la ségrégation finale sur le brut de coulée. Cette prédiction est à chaque fois qualifiée soit par des investigations expérimentales sur les bruts de coulée, soit par des études expérimentales dédiées.

Les codes de calcul nécessitent la construction de base de données sur les alliages étudiés telles que:

- La température de liquidus
- La température de solidus ou de fin de solidification
- Le coefficient de partage
- L'évolution de la concentration
- Les tailles caractéristiques
- La distribution des tailles
- La morphologie des grains

Cette liste, qui n'est pas exhaustive, montre l'utilité d'une approche expérimentale, non seulement pour valider toute approche théorique et numérique, mais aussi pour apporter des données fiables, utilisées lors de la

simulation numérique. Elle peut aussi, dans certains cas, valider des valeurs issues de bases de données thermodynamiques ou les affiner.

La ségrégation, un phénomène multiéchelles

La ségrégation désigne une différence de composition chimique en un point donné, d'une pièce de coulée par rapport à la composition nominale. Suivant son étendue on distingue :

La microségrégation à l'échelle de la dendrite

La mésoségrégation à l'échelle du millimètre

La macroségrégation à l'échelle centimétrique et plus

Nous allons nous restreindre à la microségrégation, sans oublier l'existence de la forte interaction entre la micro et la macroségrégation [Lesoult et Col, 2] et [Mazet, 3].

Définition de la macroségrégation

La macroségrégation (figure 1 et 2) résulte du mouvement du liquide ou du solide et de la composition chimique locale qui diffère de la composition chimique moyenne.

Les forces motrices de ce mouvement sont principalement :

La contraction lors de la solidification

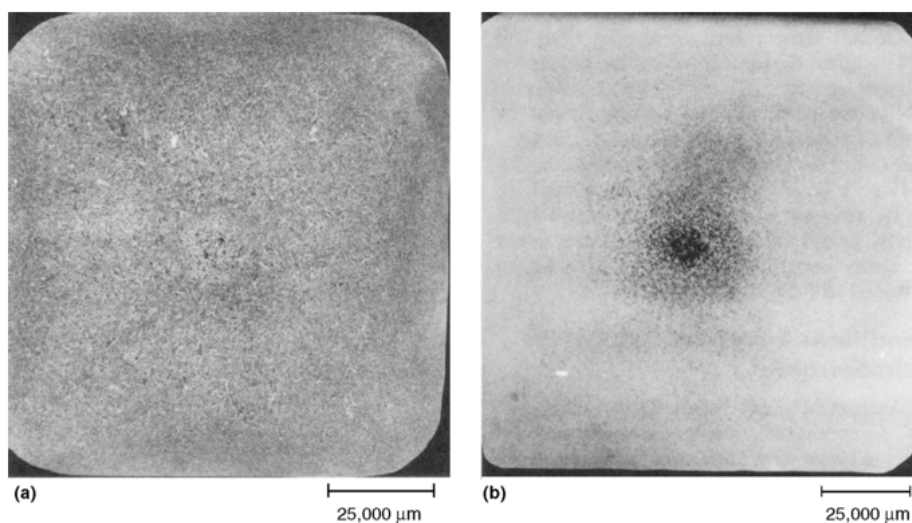
L'effet de la gravité sur la différence de densité causée par le changement de phase ou de composition chimique.

Les forces centrifuges externes ou électromagnétiques

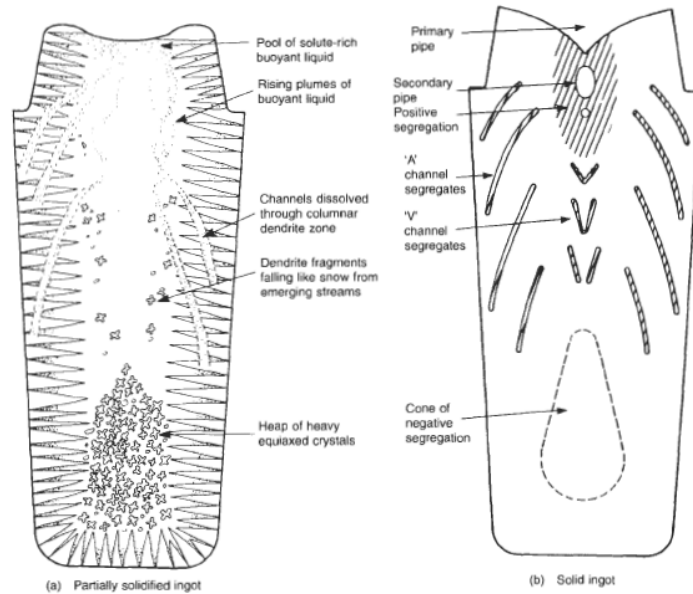
La formation de bulles de gaz

La déformation de la phase solide due à la déformation thermomécanique et la pression statique

Les forces capillaires



**Figure 1 Macroségrégation sur coupe transversale  
D'un lingot d'acier [ASM Handbook, 4]**



**Figure 2 Développement de la macroségrégation dans un lingot d'acier (a) au cours de la solidification (b) à la fin de la solidification [ASM Handbook, 4]**

La macroségrégation peut être évaluée par :

La valeur de la ségrégation :  $\Delta C = C_{\max} - C_0$

Le taux de ségrégation :  $C_{\max} / C_{\min}$

Le degré de ségrégation :  $100 * C_{\max} / C_0$

Définition de la microségrégation

Durant la solidification d'un alliage dendritique, le soluté rejeté à l'interface solide/liquide est redistribué à l'échelle locale de la distance entre bras secondaire (10 à 100  $\mu\text{m}$ ) par diffusion ou bien par convection. Ce processus qu'on appelle microségrégation, contrôle la composition, la microstructure et la fraction de phases eutectiques et autres phases qui se forment [Voller et Col, 5]

## II - 2. TRAVAUX ANTERIEURS SUR LA MICROSEGREGATION

Les principes de base qui régissent la microségrégation furent montrés au début du siècle par Gulliver [Gulliver, 6], puis par Scheil [Scheil, 7]. Par la suite, les travaux de Kohn et Philibert [Kohn et Col, 8] puis ceux de Drouzy et Mascré [Drouzy et Col, 9] montrèrent une description quantitative de la diffusion restreinte dans le liquide et dans le solide. Bolling et Tiller [Bolling et Col, 10] démontrant l'effet de la surfusion aux pointes sur la microségrégation ont affiné la description de la microségrégation. Par la suite, plusieurs travaux relatifs à l'étude de la microségrégation dans le cas d'alliages multiconstitués ont été publiés, dont ceux de [Ohanaka, 11], [Rappaz et Col, 12] et [Flemings, 13].



### II - 3. EFFET DE LA MICROSEGREGATION SUR LES PRODUITS METALLURGIQUES

La caractérisation de la microségrégation est faite de façon qualitative par la métallographie ou bien quantitativement en utilisant les techniques de microanalyses :

type microsonde de Castaing. Dans ce dernier cas, les analyses se font soit sur du brut de coulée pour observer la microségrégation à la fin de la solidification, tel que l'observe le métallurgiste, soit sur des échantillons trempés pour étudier l'évolution de la microségrégation au cours de la solidification.

L'analyse fine du brut de coulée est le propre même de la caractérisation qu'effectue de façon quotidienne, ou presque, le métallurgiste. Elle s'effectue soit sur des lingots, ou bien sûr des pièces moulées, ceci étant bien sûr à l'échelle industrielle. Plusieurs prélèvements sont effectués, à plusieurs endroits, dans le cas de structures de solidifications différentes (structure de peau, structure colonnaire et structure équiaxe) Mazet [Mazet, 3]

### II - 4. CARACTERISATION DE LA MICROSEGREGATION

Metallographie

Le principe de l'utilisation de la métallographie repose sur le pouvoir différentiel de certaines attaques métallographiques, vis-à-vis des zones les plus ségrégées. Seulement, la finesse du pouvoir différentiel de l'attaque chimique est moins précise qu'une analyse chimique. Ceci donne seulement une information qualitative. Elle permet parfois néanmoins, de caractériser, les phases en présences et l'intensité de la ségrégation des éléments chimiques dans ces phases [Hawksworth et Col, 14].

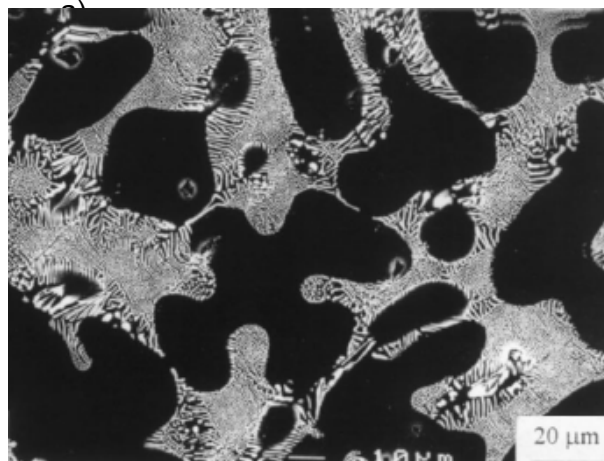


Figure 3 Attaque métallographique, d'une coupe transversale lors d'un essai de solidification dirigée représentant la phase alpha de l'aluminium et une microstructure eutectique (Al-5,7 Ce %at) [Hawksworth et Col, 14]

## Analyse fine des échantillons trempés

Pour analyser la genèse de la formation de la microségrégation, il est très difficile de remonter à ces informations sur des pièces « brut de coulée ». Pour étudier l'évolution de la microstructure, des systèmes de type Bridgman ont été conçus. Ce genre de dispositif sur des barreaux de faibles diamètres permet sur des coupes longitudinales de remonter à l'historique de la structure de solidification [BOETTINGER, 15] et d'analyser par la suite grâce des coupes transversales :

Le taux de phases

La taille de la structure

La distance entre branches primaires

La microségrégation chimique

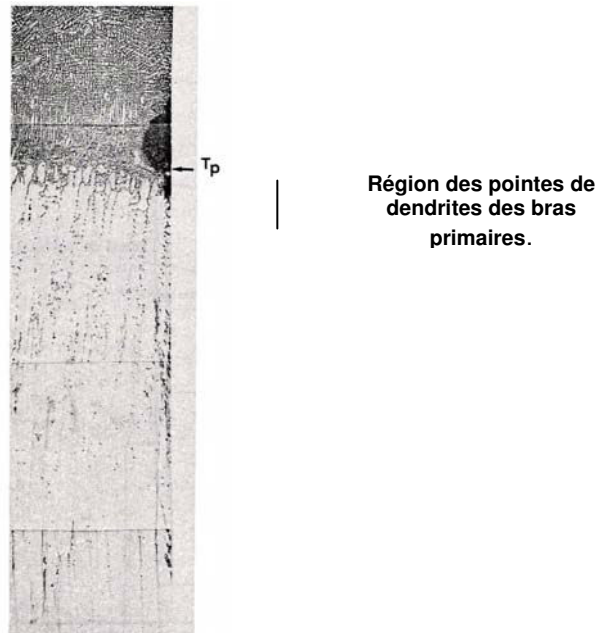
La technique cependant, a ses limites :

Pour des raisons techniques et de sécurité, il n'est pas possible de faire des essais de trempe en cours de solidification avec des barreaux de plus de 10 mm de diamètre.

L'estimation de la taille moyenne de la structure est faite avec une moindre précision à cause de la faiblesse de la plage d'analyse.

Entre le moment de la trempe et l'observation métallographique, la structure ne reste pas totalement figée et on assiste à une légère continuation de la solidification.

Elle reste quand même, la technique la plus adaptée à l'heure actuelle, pour étudier la formation de la microségrégation [Bobadilla et Col, 16], [Fredriksson, 17], [Ueshima, 18] et [Lacaze et Col, 19].



**Figure 4** Coupe longitudinale d'un barreau issue d'une trempe au cours de solidification. L'image montre une interface liquide/solide d'un alliage péritectique Fe-Ni-Cr [Bobadilla, 20]

## Profils de concentrations

La microségrégation résulte de la répartition des solutés au cours de la solidification. L'étude quantitative de la ségrégation ne peut être menée par les méthodes métallographiques classiques. En effet les réactifs d'attaques habituels, des aciers par exemple (empreinte Baumann, acide picrique ou chlorhydrique à chaud) révélant qualitativement le faciès dendritique, mais ne permettent pas de préciser, ni l'importance de l'hétérogénéité, ni la nature des éléments ségrégés.

Dés les années 50 plusieurs études ont été menées pour caractériser cette microségrégation, mais les méthodes magnétiques et spectrographiques utilisées au début furent vite éliminées car leurs applications se sont montrées limitées et délicates [21]. D'autres approches furent mises en œuvre à l'instar de la radiographie, basée sur l'observation de la répartition topographique d'un élément donné, en fonction de la concentration de cet élément dans un flux de neutrons néanmoins cette méthode resta inadéquate et imprécise.



Figure 5 Illustration de la ségrégation de l'arsenic dans l'alliage Fe-As par autoradiographie [Philibert, 21].

Ce n'est qu'avec l'apparition des premières microsondes de *Castaing* que l'étude fine de la microségrégation prit son essor. *Philibert* [Philibert, 21] et *Flemings* [Flemings, 22] furent les pionniers de cette approche en établissant au début des profils de concentration des éléments sur des lignes traversant des axes dendritiques et où les pics positifs et négatifs représentent les ségrégations positives et négatives respectivement. Une illustration des profils tracés est montrée sur la figure 6 [Blanc et Col, 23]

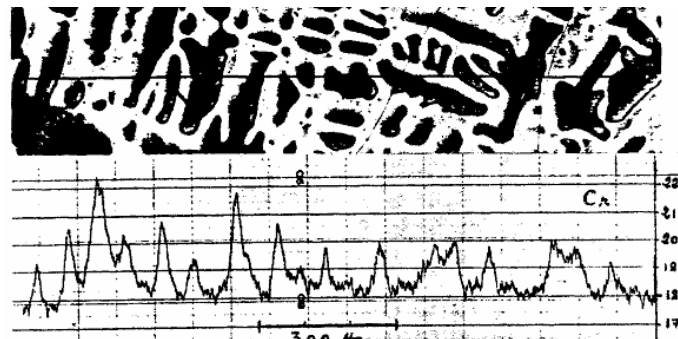


Figure 6 microségrégation du chrome dans un alliage austénitique à l'état brut de coulée (Zone centrale) [Blanc et Col, 23]

## Le taux de microségrégation

Pour caractériser quantitativement la microségrégation, le taux de microségrégation est souvent utilisé à l'échelle industrielle et fut par le passé souvent utilisé, faute de caractérisation plus fine, telle que les courbes de fractions cumulées.

Le taux de microségrégation est défini par le rapport de la concentration maximale sur la concentration minimale. Le tableau 1 rassemble quelques valeurs du taux de microségrégations mesurés à l'échelle industrielle.

Microsegregation ratio	Alloys, mass%
Mo (1.4-2.0)	Carbon steel (0.3-0.4C)
Cr (1-5, increases with C up to 1.4%)	Fe-(1-3)Cr-C
Mo (2.7-3.8), Cr (1.4-1.5)	1.2Cr-0.25Mo steel
Ni (1.2-1.4), Cr (1.3-1.5), Mo (2.6-3.8)	2.8Ni-0.8Cr-0.5Mo steel
Mn (1.3-1.8)	1.5Mn steel
Ni (1.06-1.07), Cr (1.3)	18Cr-8.6Ni stainless steel
Ni (1.1), Cr (1.1-1.3)	25Cr-19Ni stainless steel
Si (1.8-3.1), Mn (1.3-1.8)	19Cr-15Ni stainless steel
P (36 for cooling rate $\dot{T} = 0.083$ K/s) P (30 for cooling rate $\dot{T} = 0.167$ K/s) P (15 for cooling rate $\dot{T} = 0.833$ K/s)	22Cr-20Ni stainless steel

Tableau 1 Valeurs usuelles du taux de microségrégation dans les aciers  
[ASM Handbook, 24].

## Courbes de fractions cumulées

L'évolution de la compréhension du phénomène de microségrégation et la modélisation mathématique montra les limites des profils de concentration ce qui amena à établir d'autres représentations graphiques expérimentales appelées courbes de fractions cumulées [LESOULT, 25], d'autres méthode, qui consistent à décrire la répartition du titre du soluté linéairement le long d'une direction privilégiée de bras de dendrite, restent biaisées et manquent de représentativité statistique. En effet la répartition de Gulliver -Scheil rapportée au volume est

indépendante de la forme du cristal. Il n'est pas de même, pour une représentation rapportée à une distance. Flemings et Col construisirent ces courbes cumulées expérimentales à partir de mesures faites à la microsonde sur des alliages à base de fer et comparèrent leurs résultats à leurs modèles plutôt qu'à celui de Gulliver - Scheil [Flemings, 22].

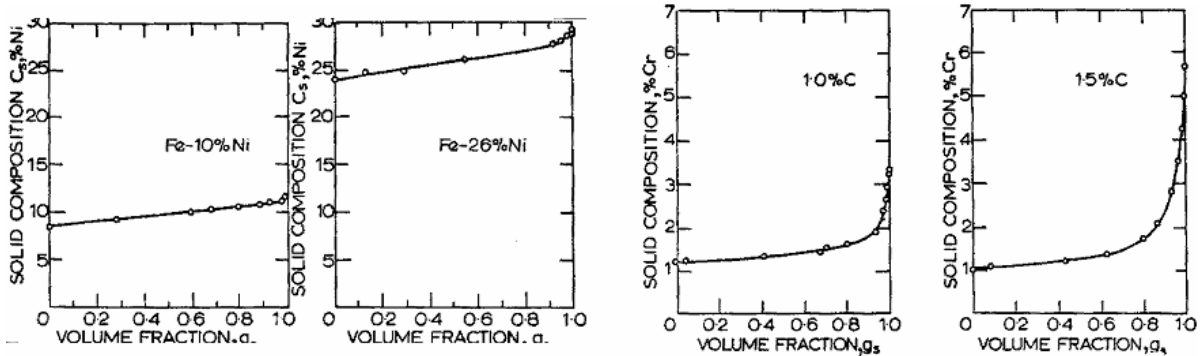


Figure 7 courbes cumulées expérimentales du nickel dans des alliages Fe-Ni et du chrome dans des alliages Fe-C-Cr [Flemings, 22].

Cette approche sera par la suite justifiée en se basant sur des formulations statistiques par Gungor et confrontée avec des résultats expérimentaux sur l'alliage Al- 4,5 % Cu [Gungor, 26]. Lacaze et Lesoult utilisèrent cette approche pour démontrer l'existence d'une rétrodiffusion du Mg et du Cu dans un alliage de type AlCuMgSi (Figure 8) et quantifier les fractions eutectiques [Lacaze et Lesoult, 27] et confronter ces résultats expérimentaux à des modèles numériques [Lacaze et Lesoult, 28].

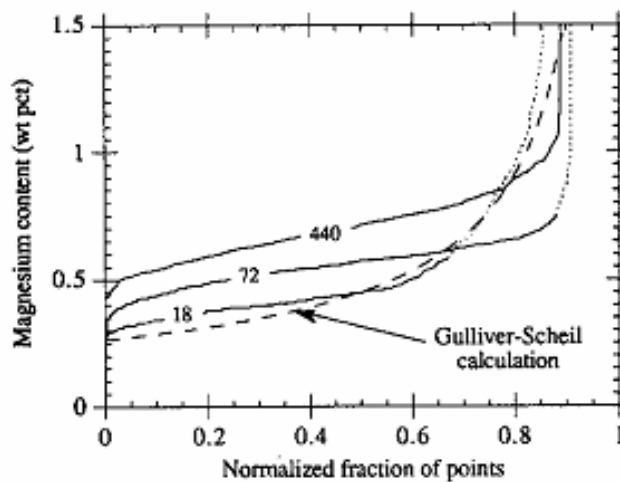


Figure 8 Courbes cumulées de microségrégation du Mg au cours de la solidification d'un alliage AlCuMgSi [28]

Cette représentation fut aussi utilisée, pour déceler la diminution du titre en manganèse en fin de solidification dans un lingot de type 100C6 en raison de la précipitation de sulfures de manganèse en fin de solidification [Mazet, 3]. Dans le cas d'un alliage péritectique, Lacaze et Col ont montré, par exemple que la corrélation n'est pas linéaire, surtout aux faibles valeurs de manganèse. En effet

la figure 9 montre une valeur maximale du manganèse au centre des dendrites [Lacaze et Col, 19].

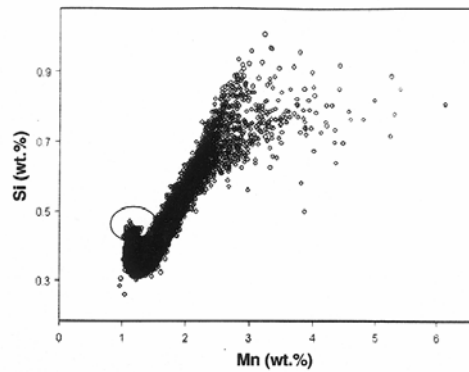


Figure 9 Corrélation entre le taux de silicium et le taux de manganèse dans un acier péritectique [Lacaze et Col, 19].

Ueshima et Col en comparant des courbes cumulées expérimentales et des modèles numériques sur des aciers (Figure 10) ont montré la diffusion du phosphore de la ferrite  $\delta$  vers l'austénite et de façon moindre celle du manganèse [18].

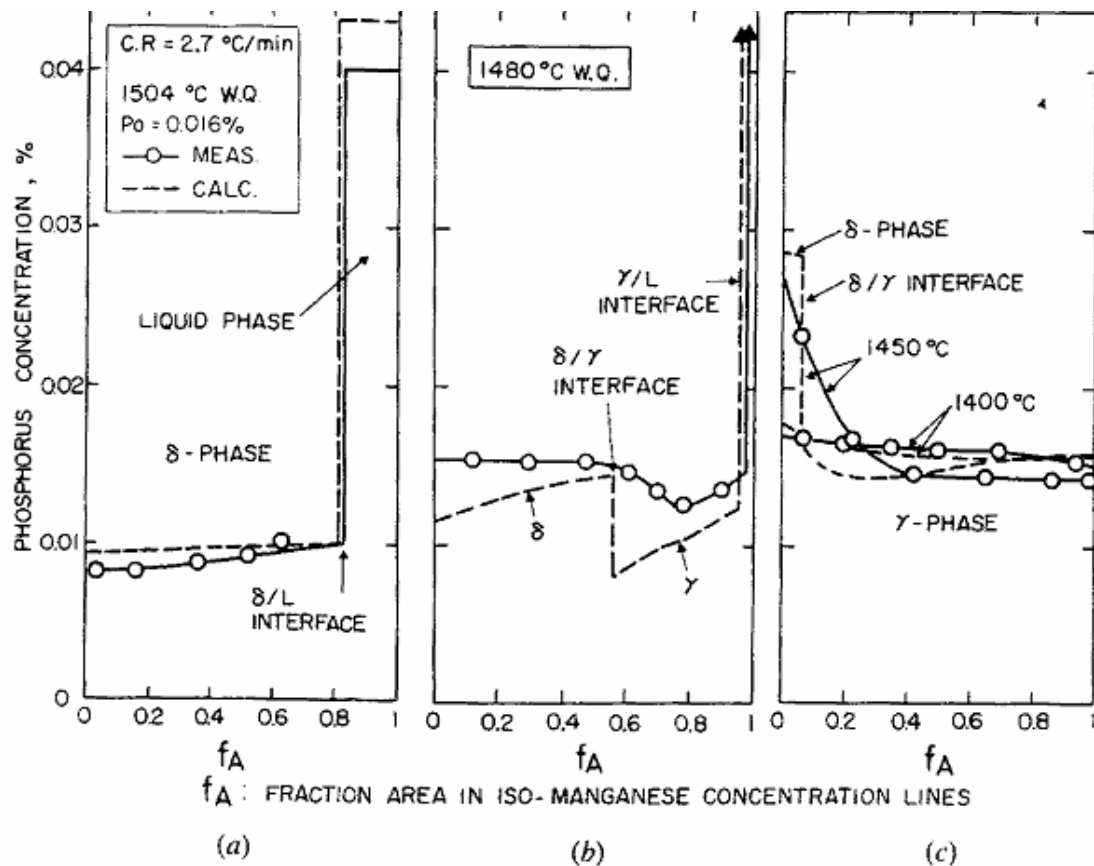


Figure 10 Redistribution du phosphore au cours de la solidification (a) 1504 °C (b) 1480 °C (c) 1450 °C et 1400 °C [Ueshima, 18].

Les courbes des surfaces cumulées peuvent servir aussi à caractériser l'intensité de la microségrégation. Sur deux microstructures appartenant au même échantillon, à l'instar des travaux de Viale [Viale et Col, 29] et Petitgand [Petitgand, 30]. Dans ces études, sur un acier austénitique à 0,70 % de C la construction des courbes fut basée sur un seuillage successif des images de RX après étalonnage entre la concentration et le niveau de gris de chaque pixel. Ceci a permis en fait de construire des courbes de surfaces cumulées équivalentes aux précédentes.

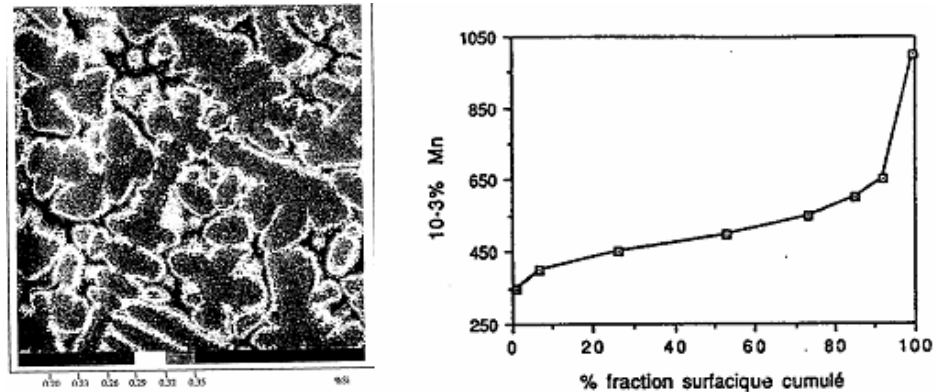


Figure 11 Évolution de la teneur en manganèse en fonction de la fraction surfacique [Petitgand, 30]

Xie et Coll ont étudié la microségrégation sur des alliages ternaires de type Al-Cu-Mg solidifiés de manière unidirectionnel, avec des vitesses de refroidissement différentes et ont confronté les résultats obtenus expérimentalement (redistribution du soluté, fraction solide, structure métallographique, courbes de fractions cumulées) à un modèle numérique. En tenant compte de la diffusion dans le solide, la surfusion à la pointe et la formation de l'eutectique, ils montrèrent une bonne concordance avec les résultats expérimentaux (figure 12). Par la suite Yan et Coll publièrent [Yan et Col, 31] des travaux sur des alliages quaternaires Al-Cu-Mg-Si.

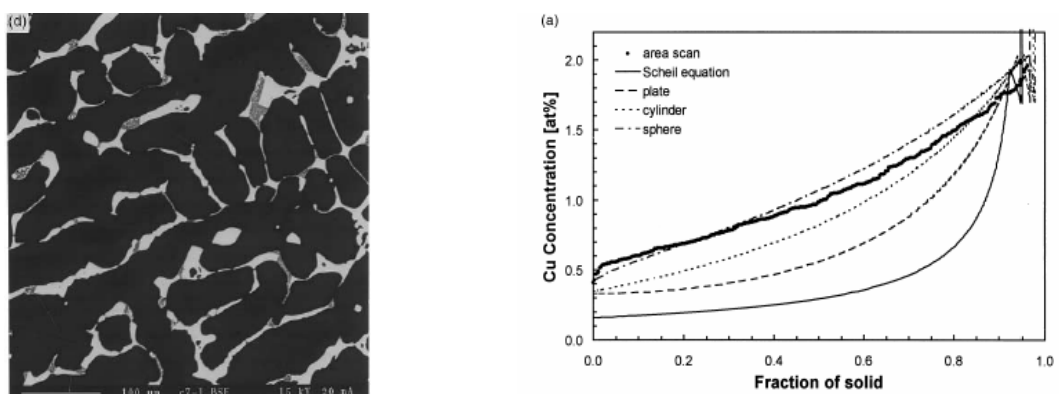


Figure 12 microstructure et courbes cumulées de microségrégation expérimentale et modélisées [31]

## Lignes d'isocontours

La microségrégation des solutés au cours de la solidification entraîne une répartition spatiale des éléments chimiques dans la structure au cours de la solidification, formant ainsi des lignes d'isocontours ou d'isovaleurs en concentration. Les premiers à populariser cette représentation furent Flemings et Col [Flemings et Col, 22]. Ils démontrèrent que les lignes isocontours de ces éléments doivent être homothétiques au cours de la solidification pour la plupart des éléments qui ne présentent pas de diffusion à l'état solide. De plus ces lignes d'isovaleurs représentent en fait les contours de la forme du front de solidification liquide / solide et donc la morphologie des dendrites ont deux directions privilégiées formant généralement un angle droit (Figure 13).

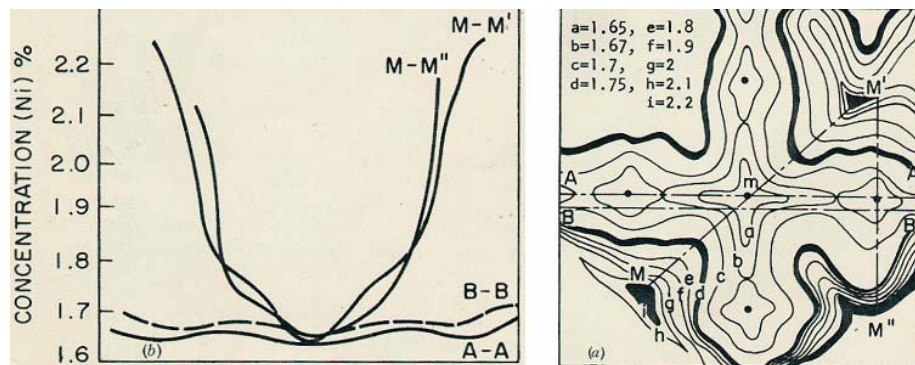


Figure 13 Courbes d'isoconcentrations du nickel dans alliage Fe-1.8% Ni et profils de concentration suivant différents chemins dans une dendrite [Flemings et Col, 22]

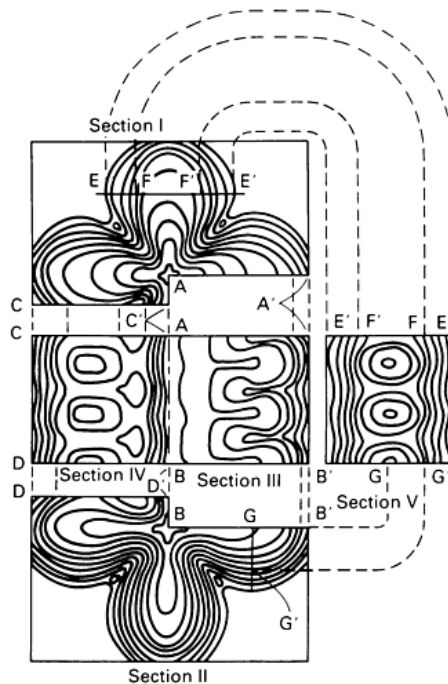
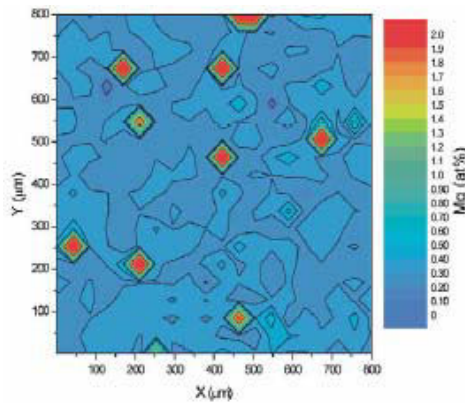


Figure 14 profils d'isoconcentrations dans une structure colonnaire dendritique d'un acier Fe-25Cr-20Ni [Rooy, 32]



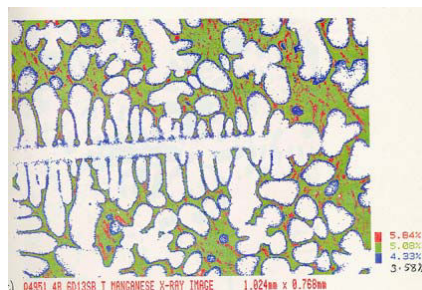
Cette méthode ne se trouvant pas aussi appropriée que les courbes de fractions cumulées expérimentales pour étudier de manière statistique et quantitative, elle ne fut pas utilisée aussi fréquemment, et ne trouva, que quelques applications pour caractériser la microségrégation tel que les précipités, et les eutectiques (Figure 15).



**Figure 15** Lignes d'isoconcentrations du Mg dans un alliage de type Al-Cu-Mg-Si solidifié unidirectionnellement avec une vitesse de 50 K/cm [Yan et Col, 31].

### Cartographie

Avec l'apparition des outils de calcul puissants et le perfectionnement des microsondes électroniques de Castaing, on a pu encore aller plus loin que les lignes de concentration. De véritables cartographies de concentration ont été établies. A partir d'une trame de points d'analyse en microsonde, soit en se basant sur l'interpolation des points à partir des points voisins ou bien en se basant sur des images en RX mais en calibrant chaque pixel avec le niveau de gris équivalent (Figure 16).



**Figure 16** Lignes d'isoconcentrations du Mg dans un alliage de type Al-Cu-Mg-Si solidifié unidirectionnellement avec une vitesse de 50 K/cm [Howe, 33].

## Courbes de corrélations

Une autre représentation, judicieuse des titres massiques mesurés à la microsonde électronique de Castaing, fut introduite par Grosdidier et Coll [\[Grosdidier, 34\]](#) puis fut appliquée par Lacaze et Lesoult [\[Lacaze et Lesoult, 28\]](#) pour l'étude des alliages d'aluminium puis reprise par Mazet [\[Mazet, 3\]](#) et Lacaze [\[Lacaze, 19\]](#) pour l'étude de l'acier austénitique 100C6. Elle consiste à représenter la variation des éléments en fonction de l'un deux, de plus, si ce dernier ne possède pas de diffusion à l'état solide, il représentera un bon témoin pour suivre de la microségrégation au cours de la solidification. Cette représentation a aussi le mérite de montrer l'étendue des valeurs prises par les solutés. De même on peut avec ce type de graphique tracer des courbes de corrélations entre les éléments et déceler aisément tout changement de composition au cours de la solidification. Enfin notons que cette représentation a le mérite de discerner entre la microségrégation à l'échelle de la matrice et celle à l'échelle de l'échantillon tout entier.

## II - 5. PRINCIPALES VARIABLES QUI INFLUENT SUR LA MICROSEGREGATION

La microségrégation dépend de plusieurs facteurs.

La texture des grains : zone équiaxe/zone colonnaire

Calyton et coll [\[Calyton et col 35\]](#) ont été parmi les premiers à observer que la microségrégation dans une zone équiaxe est plus intense que dans une zone colonnaire. Ces résultats furent confirmés par Doherty et Melford [\[Doherty et Col, 36\]](#) et par Doherty et Feest [\[Doherty et Col, 37\]](#). Par la suite Salvadori [\[Salvadori, 38\]](#) puis par Mazet [\[Mazet, 3\]](#) sur un lingot de 100C6, grâce à des courbes de fractions cumulées, ont aussi démontré cette affirmation.

La composition chimique

Philibert et Coll [\[Philibert et Col, 21\]](#) et Doherty et Melford [\[Doherty et Col,36\]](#) ont montré que l'addition de carbone influence la microségrégation de certains éléments chimiques et quelques impuretés tels que Mn, Ni, Si, Cr, Mo, Sn, P et S dans l'acier.

De même, la composition chimique, qui définit les phases qui apparaissent lors la solidification, influe directement sur l'intensité de la microségrégation.

Le coefficient de partage, qui est un élément caractéristique de la ségrégation chimique, varie d'un élément à un autre. Le phosphore par exemple ( $k^{\gamma/L}(\text{P}) = 0.13$ ) ségrège de façon plus intense que le nickel dans l'austénite. ( $k^{\gamma/L}(\text{Ni}) = 0.90$ ).

L'interaction entre les éléments chimiques

UESHIMA et Coll [Ueshima et Col, 18] ont établi la variation de la concentration du phosphore en fonction de la teneur nominale du carbone d'un acier au cours de la solidification et ceci pour plusieurs vitesses de solidification. On peut observer sur la figure 17 que la ségrégation du phosphore dépend de la composition du carbone. Pour une vitesse de solidification de 50 °C/min la concentration du phosphore est de 0.018% à 0.1% de carbone à alors quelle passe à 0.04 lorsque la concentration du carbone passe à 0.3% de carbone.

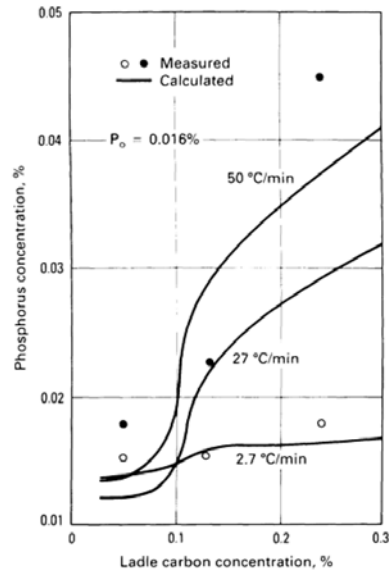


Figure 17 Effet du taux de carbone sur la ségrégation du phosphore [Ueshima et Col, 18]

L'interaction entre les éléments chimiques peut aussi se manifester par le changement du coefficient de partage. MORITA et TANAKA [Morita et Col, 39] ont tracé l'influence de la teneur nominale en carbone sur le coefficient de partage de l'élément X dans les alliages ternaires Fe-X-Cr riches en fer. Pour rappel on appelle coefficient de partage, généralement noté  $K$ , le rapport des activités d'un soluté entre deux phases. Dans le cas de la solidification le coefficient de partage est le rapport entre le titre du soluté dans le liquide et celui dans le solide.

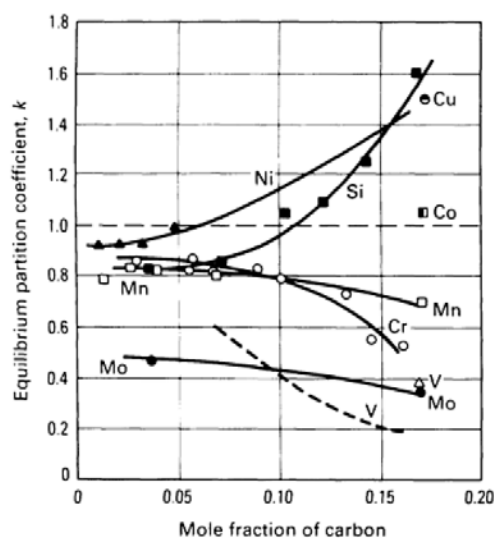


Figure 18 Influence du carbone sur le coefficient de partage [Morita et Col, 39]

## La vitesse de refroidissement

Doherty et Melford [Doherty et Col, 36] ont été les premiers à montrer l'effet de la vitesse de refroidissement sur la microségrégation. Sur différentes compositions d'aciers, ils ont montré que l'augmentation de 2 ou 3 ordres de grandeurs de la vitesse de refroidissement n'influence pas le coefficient de partage mais par contre diminue sensiblement l'indice de microségrégation (celui de la région interdendritique).

Une autre approche pour la mesure de l'effet de la vitesse de refroidissement consiste à mesurer la volume de la fraction des phases eutectiques dans les régions interdendritiques. Plusieurs études, notamment sur l'aluminium [Michael et Col, 40], [Bower et Col, 41] Drouzy et [Drouzy et Col, 42] et [Rossz et Col, 43]. Sarreal et Abbaschian [Sarreal et Col, 44] ont montré l'évolution de l'indice de la microségrégation en fonction de la vitesse de refroidissement. Leurs courbes, présente un maximum à 200 K/s. En dessous de cette valeur critique de vitesse de refroidissement l'évolution est contrôlée par la diffusion à l'état solide et au dessus de cette valeur par l'enrichissement du front de solidification. On peut observer par exemple que pour 0.2 % de carbone la concentration du phosphore passe de 0.16 % pour une vitesse de solidification de 2.7 C°/min à 0.35% pour une vitesse de refroidissement de 50 C°/min.

## La nature de la phase

La ségrégation des éléments chimiques dépend de la phase où se trouvent ces éléments chimiques. Le Nickel par exemple est un élément gammagène dont la solubilité est plus grande dans la phase gamma que la phase delta. A contrario, le chrome est un élément deltagène dont la solubilité est plus grande dans la phase delta que dans la phase gamma. Sur un acier inoxydable austénitique (figure 19a) de type 308 selon l'ASTM, DAVID et Coll [Kou, 45] ont caractérisé la microségrégation du chrome et du nickel dans la phase gamma et dans la phase delta (

Figure 19b). Le profil de concentration tracé sur une distance de l'ordre de 3  $\mu\text{m}$ , montre l'évolution de la concentration du titre du nickel et du chrome. Cette analyse fait apparaître clairement la forte ségrégation du chrome dans la phase delta et la forte ségrégation du nickel dans la phase gamma.

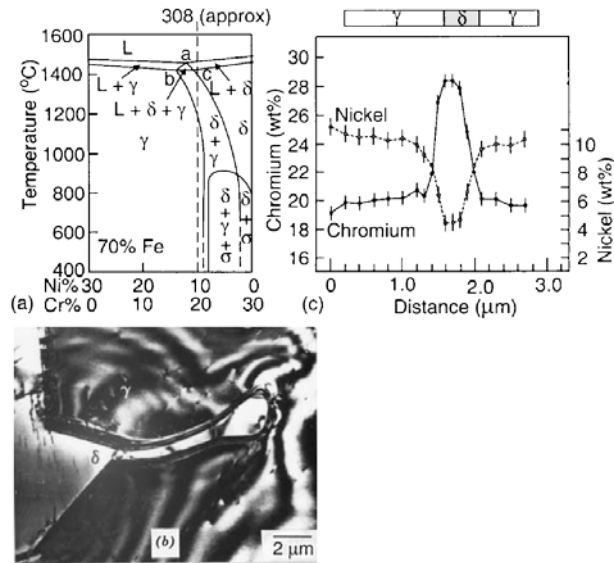


Figure 19 Effet de la nature de la phase sur la microségrégation dans un alliage ternaire Fe-10Ni-20Cr (a) coupe du diagramme ternaire Fe-Ni-Cr, (b) image MEB de la microstructure, (c) Profils de concentrations [Kou, 45].

#### La nature du premier solide déposé

La littérature est relativement pauvre sur l'effet de la nature du premier solide déposé sur la microségrégation. Il existe quelques études qui ont séparément étudiés la microségrégation dans les aciers ayant une solidification primaire en austénite [Mazet, 3], ou bien ceux ayant une solidification primaire en ferrite delta [BOETTINGER et Col, 28] et [Bobadilla, 20]. Il apparaît clairement la nécessité d'étudier de façon fine et de manière comparative l'effet du premier solide déposé (austénite ou ferrite) sur la microségrégation. Une partie de notre étude a pour objectif de caractériser expérimentalement l'effet du premier solide déposé sur la microségrégation.

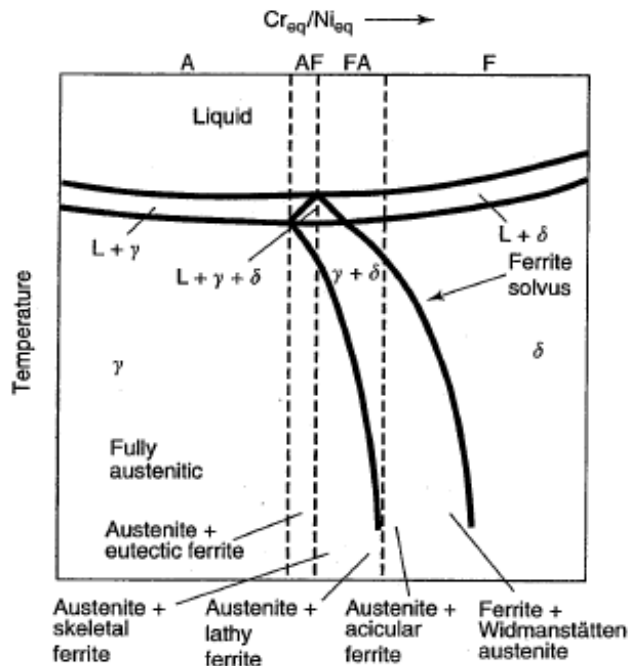
#### Les séquences de solidification

La prise en compte des séquences de solidification des aciers est, elle aussi, importante pour la prédiction fine de la microségrégation. Les séquences de solidification sont importantes par exemple dans le cas des aciers austénitiques inoxydables, en particulier dans les structures de solidification de soudage, où le ratio du Cr/Ni détermine la solidification primaire et les séquences de solidification. La figure 20, montre quatre types de solidification [Liplod et Col, 46] qui aboutissent tous à une structure austénitique. Seulement la séquence de solidification de chaque cas est différente.

On peut distinguer 4 types de séquences de solidification (Figure 20) :

Type A : Austénite

Type AF : Austénite/Ferrite  
 Type FA : Ferrite/Austénite  
 Type F : Ferrite

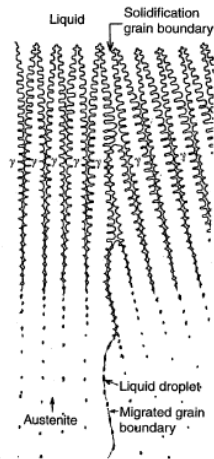


A	$L \rightarrow L + A \rightarrow A$
AF	$L \rightarrow L + A \rightarrow L + A + (A + F)_{eut} \rightarrow A + F_{eut}$
FA	$L \rightarrow L + F \rightarrow L + F + (F + A)_{per/eut} \rightarrow F + A$
F	$L \rightarrow L + F \rightarrow F \rightarrow F + A$

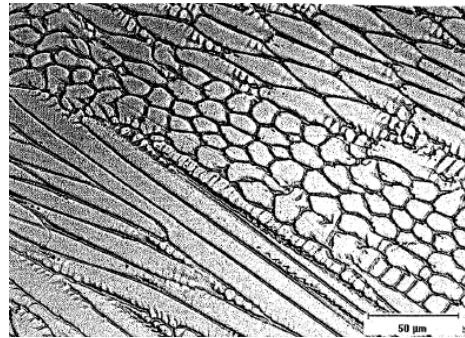
Figure 20 séquences de solidifications des aciers inoxydables austénitiques [Liplod et Col, 46].

### II - 5.1.1. Séquence de solidification de type A (Austénite)

Si la fin de la solidification présente une structure austénitique, la structure finale à la température ambiante est une structure austénitique. Ce type de solidification est illustré par la métallographie de la (Figure 21a et 22b). On pourra noter que ce type de microstructures est très facilement observable métallographiquement. Ceci est dû, à la ségrégation chimique des éléments d'alliages et des impuretés et à la relative faible diffusion de ces éléments aux hautes températures. Ceci préserve le profil de ségrégation qui se développe durant la solidification. La solidification des aciers Inoxydables 304 et 316 par exemple qui se solidifient selon le type A, présente une forte ségrégation du Cr et du Mo aux joints des cellules ou des dendrites. Il est à noter que les aciers inoxydables 304 et 316 ne solidifient en austénite qu'en présence de très fortes vitesses de solidification comme le cas du soudage. Ceci est dû au basculement de la solidification primaire vers une solidification primaire en austénite. [Liplod et Col, 47].



(a)

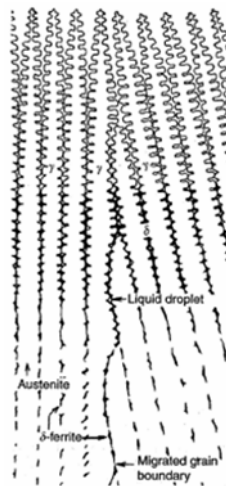


(b)

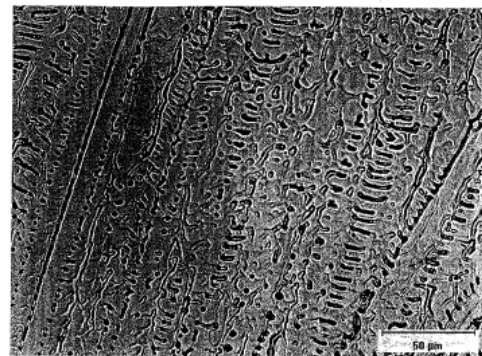
Figure 21 Séquence de solidification de type A [Liplod et Col, 47]

### II - 5.1.2. Séquence de solidification de type AF (Austénite-Ferrite)

Lorsque un peu de ferrite se forme à la fin d'une solidification primaire en austénite, via une réaction eutectique, ce type de solidification est notée AF (figure 22). Ceci se produit par la présence de quantités suffisantes d'éléments delta-gènes tel que le Cr et le Mo. La ferrite qui se forme le long des joints est relativement stable et résiste à la transformation en austénite lors du refroidissement [Katayama, 48].



(a)



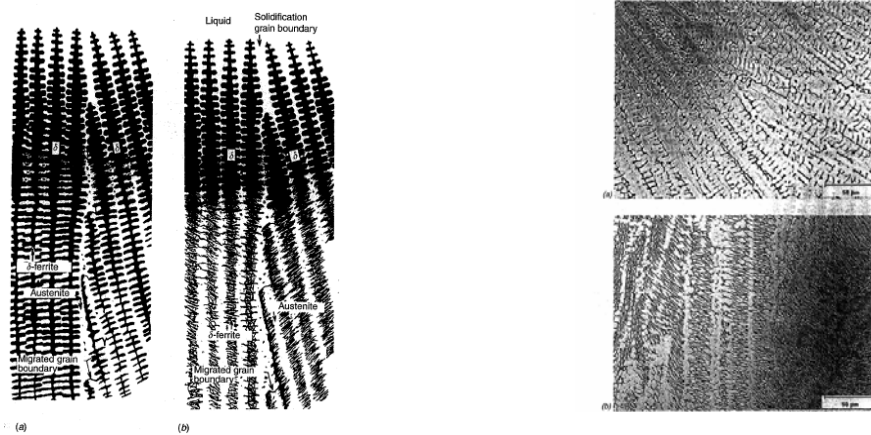
(b)

Figure 22 Séquence de solidification de type AF [Katayama, 48]

### II - 5.1.3. Séquence de solidification de type FA (Ferrite-Austénite)

Lorsque la solidification primaire produit de la ferrite et si la fin de la solidification, de l'austénite se forme cette séquence de solidification et dite de type FA (figure 23). Cette austénite se forme via une réaction péritectique-eutectique et se produit au joint de la ferrite à la fin de la solidification. Cette réaction fut étudiée par [David et Col, 49], [David, 50], [Liplod et Col, 51], [Brooks et Col, 52],

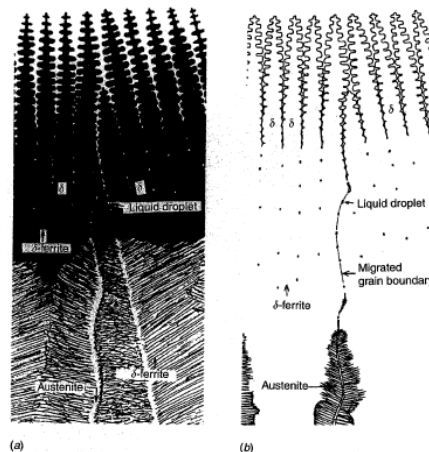
[Arata et Col, 53], [Katayama, 48], [Leone et Kerr, 54] et d'autres [Frederiksson, 55] et [Suutala, 56].



(I) (II)  
**Figure 23** Séquence de solidification de type FA (a) Ferrite fine, (b) ferrite "vermiculaire" [Katayama, 48]

#### II - 5.1.4. Séquence de solidification de type F (Ferrite)

Lorsque la solidification se déroule complètement avec une structure ferritique ce type de séquence est noté F. Dans ce cas la microstructure est complètement ferritique à la fin de la solidification (Figure 24). Cette ferrite peut être une ferrite sous forme de lattes ou bien de la ferrite avec de l'austénite de Windmanstatten. En général ce type de séquence est très marginal par rapport aux autres types de séquences A, AF, et FA [Katayama, 48].



**Figure 24** Séquence de solidification de type F, (a) Ferrite aciculaire, (b) ferrite avec de l'austénite de Windmanstatten [Katayama, 48]

#### La surfusion à la pointe

Le rayon de courbure des pointes des dendrites ou des cellules induit une surfusion appelée surfusion à la pointe. Brooks et Col [Brooks et Col, 52] ont étudié théoriquement l'effet de la surfusion aux pointes sur la microségrégation.



La figure 25 montre l'effet de la prise en compte ou non de la surfusion aux pointes sur la microségrégation. Les courbes de fractions cumulées calculées pour l'alliage Fe-3.3%Nb ont été tracées en prenant comme hypothèse une faible vitesse de solidification (

Figure 25a) et une forte vitesse de solidification (

Figure 25b). On notera que l'intensité de la microségrégation au cours de la solidification est moins importante dans le cas de la prise en compte de surfusion aux pointes.

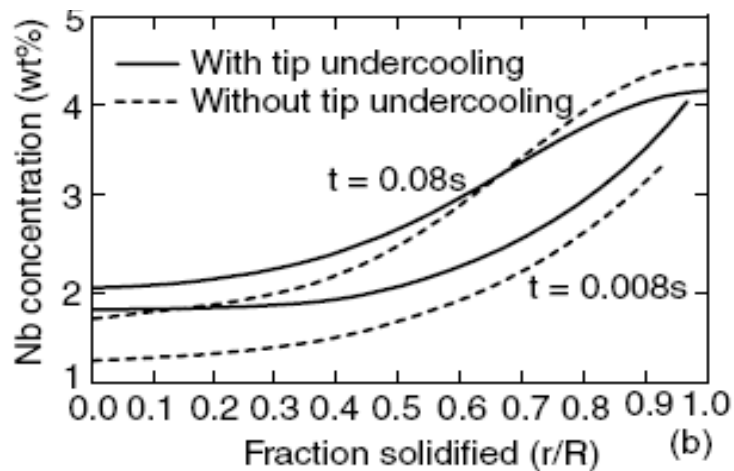
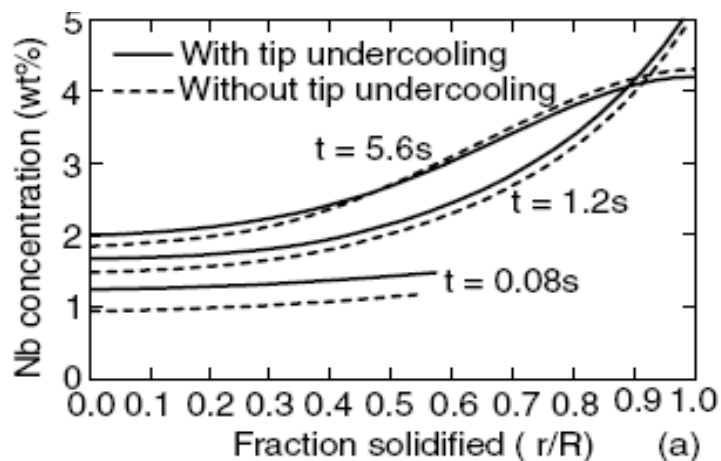


Figure 25 Effet de la prise en compte de la surfusion aux pointes sur la microségrégation du Niobium dans l'alliage Fe-3.3%Nb. (a) faible vitesse de refroidissement, (b) forte vitesse de solidification [Brooks et Col, 52].

## La réaction péritectique

Blanc et Tricot [Blanc et Tricot, 23] ont été parmi les premiers à s'intéresser expérimentalement à l'influence de la présence de ferrite sur la microségrégation dans les aciers inoxydables Fe-Ni-Cr. Leurs observations ont porté sur des alliages à l'état brut de coulée sous forme de lingots de 250 kg, avec 5 compositions nominales différentes de manière à obtenir un dépôt de ferrite primaire croissant. Ils ont analysé les ségrégations finales en distinguant trois grandes origines et utilisent donc la terminologie suivante :

La ségrégation dite dendritique qui se traduit par un enrichissement des espaces interdendritiques en chrome et nickel.

La ségrégation dite de partage correspondant à l'enrichissement de la ferrite en chrome et son appauvrissement en Ni (le nickel est gammagène et le chrome est alphagène). Ainsi, la présence de ferrite masque en partie la ségrégation dendritique.

La ségrégation dite de régression qui laisse subsister une ségrégation en sens inverse pour les éléments Ni et Cr. Les observations faites par Blanc et Tricot illustrent que le taux de ferrite résiduel qui s'est déposé en cours de solidification primaire est à l'origine des deux derniers types de ségrégation. Or, ce taux de ferrite évolue au cours de la réaction péritectique dont une description fine est requise pour prédire convenablement la ségrégation finale [Thuinet, 57, 58].

Frederiksson et Nylén [Frederiksson, 59] ont observé expérimentalement le déroulement de la réaction péritectique en solidification dirigée sur un alliage Cu-70wt%Sn. Dans les premiers stades de la solidification, les trois phases restent en contact à une jonction triple I, et la croissance de  $\beta$  s'accompagne de la dissolution et de la resolidification successives de la phase  $\alpha$ .

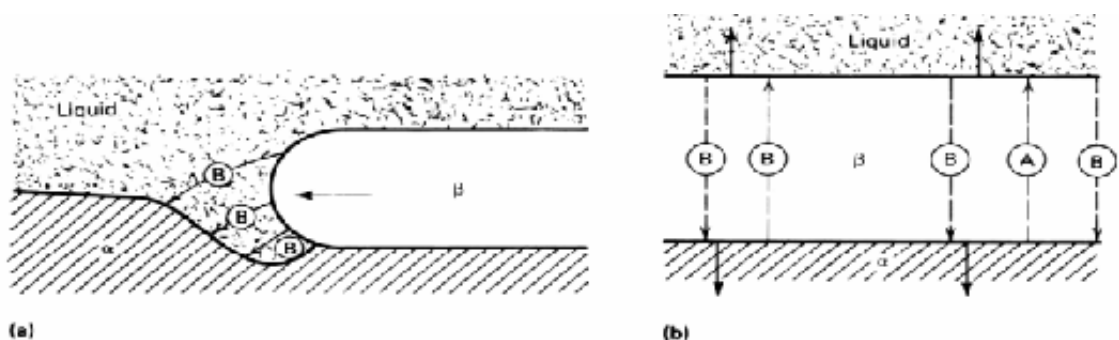


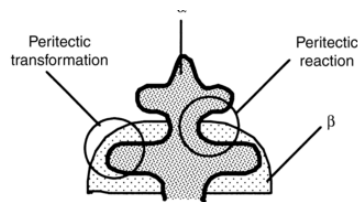
Figure 26 Mécanismes de la réaction péritectique. (a) Croissance latérale de la couche  $\beta$  le long de l'interface  $\alpha$ /liquide durant la réaction péritectique par une diffusion du liquide. (b) Epaissement de la couche  $\beta$  par une diffusion à travers le solide durant la réaction péritectique [Hillert, 60].

Ce premier stade de la croissance péritectique, que l'on nommera par la suite réaction péritectique, se termine lorsque la couche  $\beta$  entoure complètement la phase

primaire  $\alpha$ . Peut alors commencer le second stade de la croissance péritectique correspondant à l'épaississement de la couche  $\beta$  entre  $\alpha$  et le liquide et qui sera notée par la suite transformation péritectique. A ce stade, on comprend mieux pourquoi ce type de croissance a été qualifié de péritectique, qui étymologiquement provient du grec péri (autour) et tectos (fondre). Ainsi, la transformation péritectique peut être décrite comme la combinaison de deux transformations de phases à haute température :

- la régression de la phase solide primaire  $\alpha \rightarrow \beta$  ;
- la solidification directe de  $\beta \rightarrow l$ .

Il est expérimentalement difficile de distinguer la réaction de la transformation péritectique.



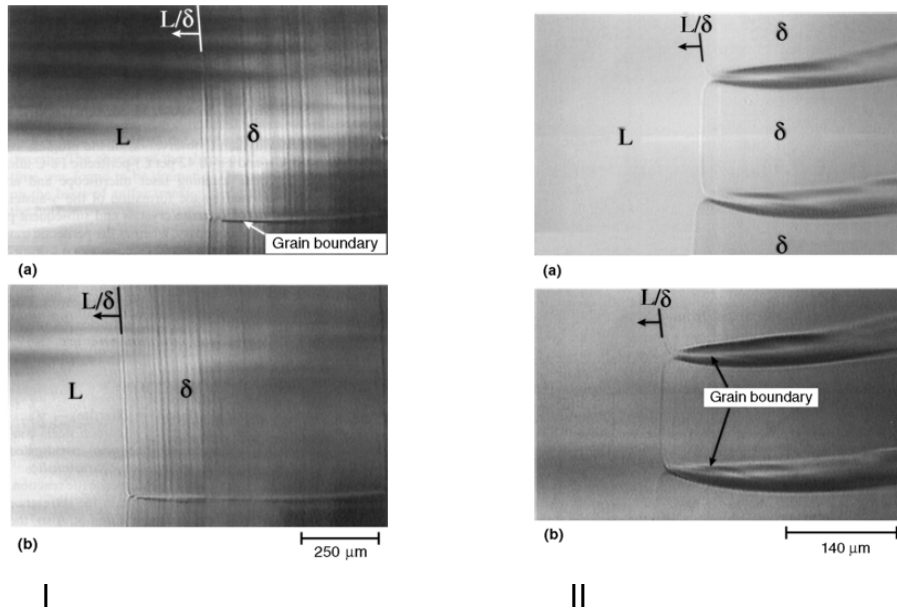
**Figure 27 Schématisation de la réaction péritectique et de la transformation péritectique [Stefanescu, 61].**

La transformation péritectique étant définie comme l'épaississement de la couche  $\beta$  entre la phase primaire  $\alpha$  et le liquide, elle s'opère donc par un mécanisme de diffusion à travers la couche  $\beta$ . Matsuura et coll. [Matsuura, 62] ont étudié la diffusion à travers la couche péritectique dans le système Fe-C au cours d'expériences avec couple de diffusion.

## II - 6. CARACTERISATION EXPERIMENTALE DE LA REACTION PERITECTIQUE

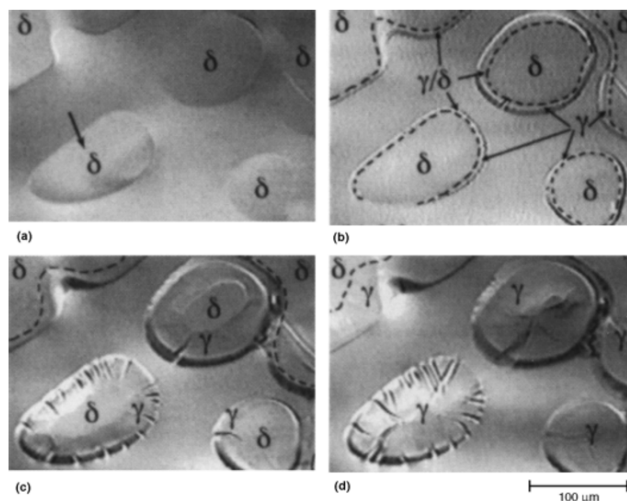
Caractérisation de la microstructure

H. Shibata, Arai et Emi [Shibata et Col, 63] ont pu suivre grâce un suivi insitu à l'aide de la microscopie confocale, la croissance plane (Figure 28I) et la croissance cellulaire (Figure 28II) de la phase  $\delta$  au cours début de la solidification d'un acier péritectique (Fe-0.14%C).



**Figure 28 Croissance plane d'un crystal de Ferrite  $\delta$  d'un alliage péritectique Fe-0.14%C.**  
**I-Croissance plane (essai de solidification dirigée GT = 22 K/mm,  $v = 4.3 \mu\text{m/s}$ ) (a) 0 s, (b) 60s.**  
**II-Croissance cellulaire (essai de solidification dirigée GT = 4.3 K/mm,  $v = 2.5 \mu\text{m/s}$ ) (a) 0 s, (b) 60s [Shibata et Col, 63]**

Cette même équipe a aussi montré sur un alliage Fe-0.42%C, le mécanisme de la réaction et de la transformation péritectique. La figure 29 montre l'évolution de la microstructure au cours d'un maintien isotherme à 1765 °K. La première phase solide à apparaitre est la ferrite  $\delta$  (a), l'austénite  $\gamma$  apparait tout autour de la ferrite et ceci grâce à la réaction péritectique (b). La phase  $\gamma$ , croit par la suite par le déplacement vers le centre de l'interface  $\delta/\gamma$  ceci est caractéristique de la transformation péritectique (c). Enfin, le dernier stade de ces transformations, se caractérise par la transformation totale de la ferrite en austénite (d).



**Figure 29 Réaction et transformation péritectique dans un acier Fe-0.42C durant un maintien isotherme à 1765 °K (a) 0 s, (b) 0.2 s, (c) 3s, (d) 7s [Shibata et Col, 63]**

Les travaux de Fredriksson furent parmi les premiers à montrer expérimentalement, le déroulement de la réaction péritectique [Fredriksson, 64]. La figure 30 montre les trois étapes de la réaction péritectique dans un essai de solidification dirigée sur acier rapide. Sur la figure 30(a) de la première étape on peut observer l'austénite en blanc, la ferrite en gris foncé et le liquide trempé. La figure 30(b) quant-à elle, montre la progression de la réaction péritectique. La figure 30(c), enfin, montre la réaction péritectique, à un stade très avancé. La phase en gris foncé au centre de la ferrite en blanc représente du liquide qui vient de se former.

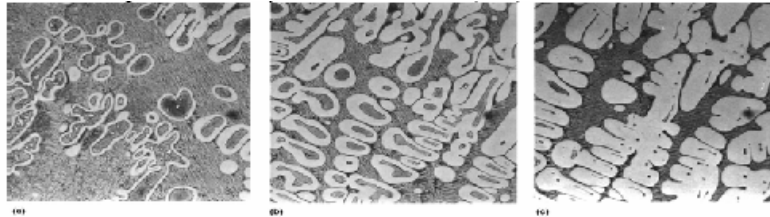


Figure 30 Déroulement de la réaction péritectique [Fredriksson, 64]

### Diagrammes de sélection des microstructures

De nombreux chercheurs ont essayé de produire des diagrammes de sélection de microstructure pour les alliages péritectiques. Hunziker et Coll [Hunziker, 65] ont proposé un critère pour déterminer la phase en fonction de la composition chimique et de la vitesse de solidification. La figure 31 montre le diagramme de sélection des microstructures pour l'alliage Fe-Ni pour des compositions qui sont autour du palier péritectique.

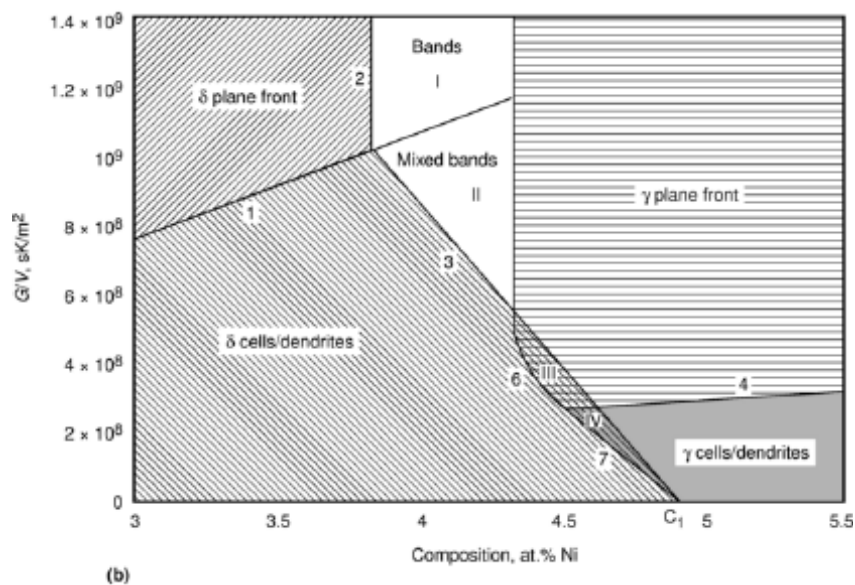


Figure 31 Diagramme de sélection de la microstructure (a) Diagramme binaire Fe-Ni (b) diagramme de sélection de la microstructure [Hunziker, 65]

### Evolution de la microségrégation au cours de la réaction peritectique

L'évolution de la microstructure au cours de la solidification des aciers présentant une réaction péritectique induit une évolution de la microségrégation suivant les

phases en présence et leurs proportions. Frederiksson a calculé pour un acier péritectique Fe-4%Ni l'évolution de la courbe de microségrégation au cours de la réaction péritectique avec un gradient de 60 K/cm, on peut noter l'évolution de la courbe de fractions cumulées entre le début de la solidification avec l'apparition de la ferrite  $\delta$  seulement et la fin de la solidification, après l'occurrence de la réaction péritectique.

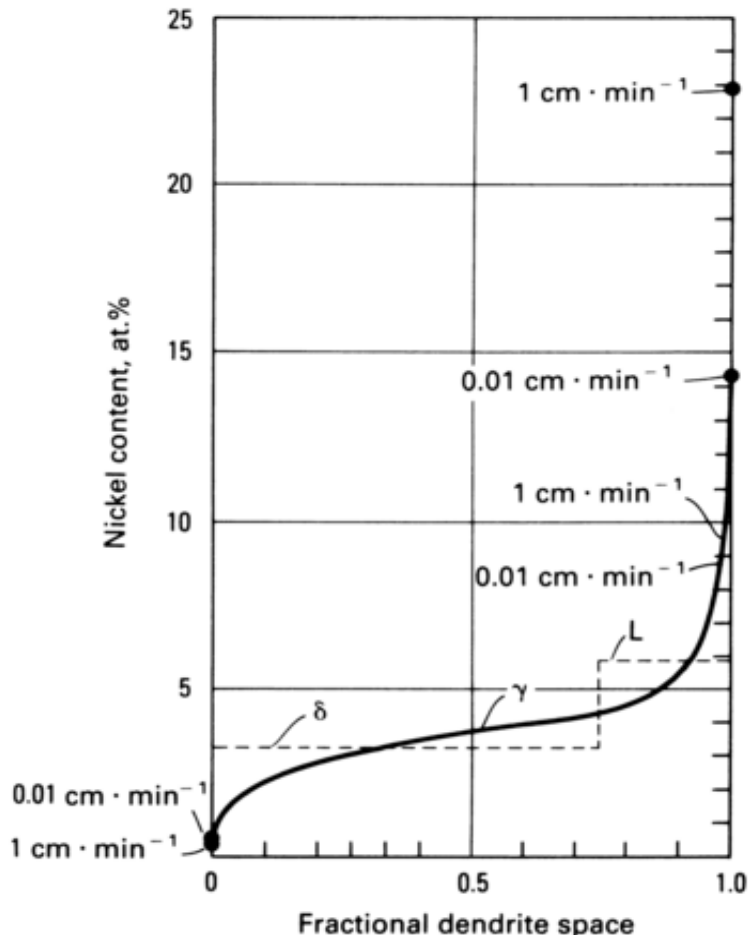


Figure 32 Evolution de la microségrégation du nickel dans un alliage Fe-Ni au cours de la solidification avec réaction péritectique [Fredriksson, 66]

## II - 7. APPROCHE THEORIQUE DE LA MICROSEGREGATION

Le début du siècle passé a connu les premiers travaux qui tentaient de modéliser la microségrégation. Les premiers travaux furent conduits presque simultanément par Gulliver (1913) et par Scheil (1942). Le modèle porte le nom de Gulliver-Scheil. Ce modèle était le premier à remettre en cause le modèle du bras de levier qui supposait un équilibre parfait, alors que le processus de solidification n'est toujours pas en équilibre. La solidification dans ce modèle est décrite dans un volume fermé où la diffusion dans le solide est négligée. Le liquide est complètement homogène.

Flemings montra par la suite (1974) que cette approche pouvait être utilisée pour déterminer la fraction eutectique. Cependant les résultats du modèle semblent

dans plusieurs cas s'éloigner des résultats expérimentaux. Des études ([Michael, 67] et [Bower, 68]) ont montré que la fraction eutectique mesurée est généralement plus petite que celle prédite. D'autres travaux [Drouzy et Col, 9] ont montré que la valeur mesurée du titre du soluté est supérieure à celle prédite par le modèle pour des valeurs élevées de fractions solides. Plusieurs éléments de réponses ont été émis pour comprendre ces déviations du modèle par rapport aux résultats expérimentaux. La prise en compte :

Des conditions initiales de germination  
De l'effet de la diffusion du soluté dans le solide  
De l'effet des hétérogénéités dans le liquide

## II - 8. EFFET DE LA DIFFUSION DANS SOLIDE SUR LA MICROSEGREGATION

Drouzy et Mascré (1961) [Drouzy et Col, 9], et par la suite Flemings (1966) [Flemings, 13], ont introduit le concept de rétrodiffusion dans le solide. Ceci a permis d'affiner le modèle de Gulliver-Scheil. Le modèle ainsi modifié nécessite à présent de connaître la forme de la géométrie. Le modèle fut popularisé par la suite par Brody et Flemings [Brody et Flemings, 69].

Le modèle de Flemings repose sur les suppositions suivantes :

Interface plate 1D

La cinétique de solidification est linéaire ou bien parabolique

La taille caractéristique est  $a/2$ , tel que  $a$  est soit la distance entre bras primaires ou bien la distance entre bras secondaires. D'autres améliorations du modèle furent établies par [Clyne et Kurz, 70], [Onahaka, 71], [Rappaz, 72].

D'autres variantes du modèle, qui tiennent compte de la réaction péritectique furent aussi énoncées par [Frederiksson et Sternjdahl, 73], [Cornelissen, 74], et [Lopez, 75].

## II - 9. FRONT DE SOLIDIFICATION

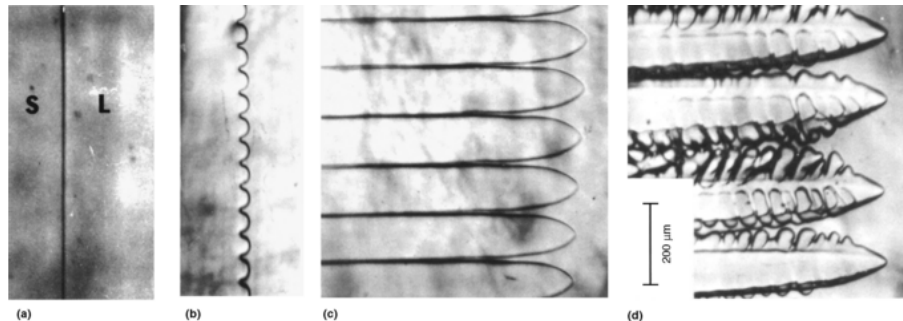
Dans un lingot, on observe souvent deux types de structure au cours de la solidification :

Une structure colonnaire qui se forme à partir de la zone de peau sur la paroi des moules et qui se caractérise par une forte anisotropie : la croissance s'effectue selon une direction privilégiée qui dépend du flux d'extraction de chaleur ;

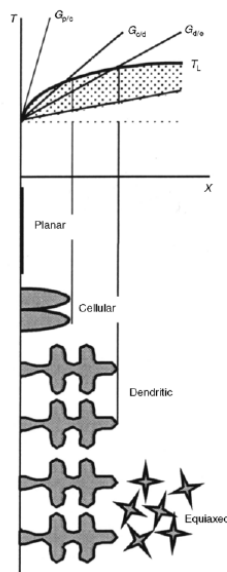
Une structure équiaxe qui se développe dans le bain liquide : dans ce type de croissance, l'évacuation de la chaleur n'a pas de direction privilégiée, il en est donc de même pour la croissance. Chacun de ces types de croissance peut présenter une structure bien différente suivant l'aspect de l'interface solide/liquide : une éventuelle déstabilisation de l'interface peut en effet donner naissance à des structures plus ou moins ramifiées appelées dendrites. Ainsi, en croissance colonnaire, on peut distinguer :

Une structure cellulaire qui provient de la déstabilisation d'une interface plane. Il est alors possible dans ce cas de caractériser cette structure par la donnée d'une seule distance caractéristique, la distance entre bras primaires de dendrites, notée  $\lambda_1$  ;

Une structure dendritique caractérisée par une ramification plus ou moins fine de l'interface solide/liquide. A ce stade, la donnée d'une seule distance n'est plus suffisante pour décrire la morphologie obtenue et une description plus précise de la structure exige l'introduction de la distance entre bras secondaires de dendrites, notée  $\lambda_2$ .



**Figure 33** Variation de la morphologie de l'interface solide/liquide en fonction de la vitesse dans un liquide organique transparent et un gradient de 2.98 K/mm : (a) Front plan 0.2  $\mu\text{m/s}$  (b) et (c) Front cellulaire 1  $\mu\text{m/s}$  (c) 3  $\mu\text{m/s}$  (d) front dendritique 7  $\mu\text{m/s}$  [Trivedi et Col, 76].



**Figure 34** : Corrélation entre le gradient thermique et la morphologie de l'interface liquide/solide [Stefanescu, 77].

## II - 10. DESCRIPTION DU MODELE DE MICROSEGREGATION

Le modèle numérique sur lequel est basée notre étude est celui développé par L.THUINET [Thuinet, 57]. La méthodologie de notre projet de recherche est basée sur une comparaison entre nos résultats expérimentaux et les résultats prédits par le modèle numérique [Thuinet, 57]

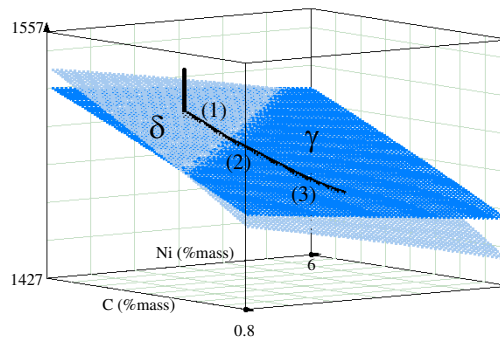
Description du modèle

La transformation péritectique a été largement étudiée dans les aciers [Kerr et Col, 15] : elle désigne l'épaississement d'une couche d'austénite entre une phase solide primaire ferritique et le liquide. Une description correcte de cette



transformation exige de traiter de manière précise **la diffusion à l'état solide**, dont l'étude bibliographique a mis en évidence plusieurs méthodes pour la modéliser : en plus des solutions analytiques proposées par Brody-Flemings et modifiées par Clyne-Kurz, des modèles numériques plus sophistiqués ont été testés, basés sur l'approximation du profil de soluté dans le solide par un polynôme ou sur la transformation de Landau [Doré, 78]. C'est cette dernière qui a été retenue puisque les approches polynomiales n'ont pas été capables de reproduire les forts gradients de solutés observés à l'interface  $\delta/\gamma$  pendant la transformation péritectique, [Thuinet, 79]. Une deuxième étape a permis le couplage du modèle de microségrégation avec le logiciel de calcul d'équilibres thermodynamiques Thermo-Calc, basé sur une généralisation de la méthode tabulaire exposée dans la référence [Doré, 78].

Un exemple de calcul mené avec ce nouveau module de microségrégation est présenté pour un alliage ternaire Fe-Ni-C dont les compositions nominales sont les suivantes :  $w_C^0=0,2\%$ mass et  $w_{Ni}^0=2\%$ mass. La figure 35 montre que la phase solide primaire qui se dépose est la ferrite.



**Figure 35 : Représentation 3D des nappes de liquidus  $\delta$  et  $\gamma$  du système Fe-Ni-C et du chemin de solidification : solidification primaire en ferrite ; transformation péritectique jusqu'à disparition de la ferrite ; Fin de solidification en austénite**

Le liquide s'enrichit en carbone et en nickel, ce qui conduit à une transition entre la solidification primaire et la transformation péritectique quand le chemin de solidification atteint la ligne monovariante, qui correspond à l'intersection des nappes de liquidus  $\delta$  et  $\gamma$ . Durant la transformation péritectique, l'austénite croît aux dépens de la ferrite et du liquide. Dans notre exemple, la phase limitante est la ferrite. Le dernier stade correspond donc à la solidification du liquide en austénite. Il est à noter que pendant la transformation péritectique, la régression de la ferrite consomme une quantité de carbone qui doit être compensée par un flux de carbone du liquide vers l'austénite. Par conséquent, la régression de la ferrite ralentit l'augmentation de la teneur en carbone dans le liquide au cours de la solidification [Thuinet, 80], ce qui tend à réduire le gradient de la densité du liquide dans la zone pâteuse, et donc l'intensité de la convection thermo-solutale.

Les échanges de matière aux interfaces sont bien sûr dépendants de la géométrie de celles-ci et donc de la morphologie de la structure de solidification. L'évaluation du terme de rétrodiffusion nécessite une bonne connaissance de la géométrie interfaciale ainsi que des tailles de structures mises en jeu.

Généralement, on distingue trois grandes catégories de modèles permettant la résolution couplée de la microségrégation et des microstructures en cours de solidification :

Les modèles déterministes ;

Les modèles de type « automates cellulaires » ;

Les modèles de champ de phases

Comme cela a déjà été mentionné dans l'introduction, l'objet de ce projet de recherche (OSC) vise la mise au point d'un modèle de microségrégation performant en terme de temps de calcul. Cela écarte donc d'emblée les deux derniers types de modèle. Dans un lingot, on observe souvent deux types de structure au cours de la solidification :

Une structure colonnaire qui se forme à partir de la zone de peau sur la paroi des moules et qui se caractérise par une forte anisotropie : la croissance s'effectue selon une direction privilégiée qui dépend du flux d'extraction de chaleur ;

Une structure équiaxe qui se développe dans le bain liquide : dans ce type de croissance, l'évacuation de la chaleur n'a pas de direction privilégiée, il en est donc de même pour la croissance.

Chacun de ces types de croissance peut présenter une structure bien différente suivant l'aspect de l'interface solide/liquide : une éventuelle déstabilisation de l'interface peut en effet donner naissance à des structures plus ou moins ramifiées appelées dendrites.

Ainsi, en croissance colonnaire, on peut distinguer :

une structure cellulaire qui provient de la déstabilisation d'une interface plane. Il est alors possible dans ce cas de caractériser cette structure par la donnée d'une seule distance caractéristique, la distance entre bras primaires de dendrites, notée  $\lambda_1$  ;

Une structure dendritique caractérisée par une ramification plus ou moins fine de l'interface solide/liquide. A ce stade, la donnée d'une seule distance n'est plus suffisante pour décrire la morphologie obtenue et une description plus précise de la structure exige l'introduction de la distance entre bras secondaires de dendrites, notée  $\lambda_2$ .

A ce stade, au vu de la multiplicité des distances caractéristiques mises en jeu dans le réseau dendritique, il devient difficile de savoir quelle est la grandeur pertinente sur laquelle s'effectue le transport par diffusion. Ainsi, **Kobayashi [81]** choisit successivement comme grandeur spatiale caractéristique l'espacement entre bras primaires de dendrite  $\lambda_1$ , l'espacement entre bras secondaires  $\lambda_2$ , et même  $(\lambda_1 + \lambda_2)/2$ .

Modèles de microségrégation 1D avec prise en compte de microstructures dendritiques complexes

Dans les modèles présentés précédemment, on supposait que la solidification commençait en  $x = 0$ . On peut cependant imaginer que la solidification commence en  $x = \lambda$ , c'est-à-dire sur le pourtour de la structure. Si ces deux possibilités sont équivalentes pour une géométrie plane (P), il n'en est pas de même pour une géométrie axisymétrique ou sphérique. Si la solidification commence en  $x = \lambda$ , on parlera de géométries *axisymétrique à solidification externe* (AE) et *sphérique à solidification externe* (SE). Pour chacune de ces géométries, **Xu [82]** calcule le paramètre  $\phi^G$  tel que :

$$\int_0^{f^s} \frac{\partial(\rho^s \omega^s)}{\partial t} d\eta = \phi^G f^s \frac{\partial(\rho^s \omega^s)^*}{\partial t} \quad (1.1)$$

où  $G = P, A, S, AE$  ou  $SE$ .

L'idée de Xu est de caractériser l'évolution morphologique colonnaire ou équiaxe à l'aide des cinq géométries de base citées précédemment. Il introduit donc la nouvelle grandeur :

$$\phi, \bar{G} = \xi_P(f_S)\phi_P + \xi_A(f_S)\phi_A + \xi_S(f_S)\phi_S + \xi_{AE}(f_S)\phi_{AE} + \xi_{SE}(f_S)\phi_{SE}$$

avec  $\xi_P(f_S) + \xi_A(f_S) + \xi_S(f_S) + \xi_{AE}(f_S) + \xi_{SE}(f_S) = 1$

Les coefficients  $\xi_G$  ( $G = P, A, S, AE$  ou  $SE$ ) permettent de quantifier en cours de solidification la part que chaque géométrie peut jouer dans la description de la structure dendritique.

La relation (1.55) est alors modifiée comme suit :

$$\int_0^{f^s} \frac{\partial(\rho^s \omega^s)}{\partial t} d\eta = \bar{\phi}^G f^s \frac{\partial(\rho^s \omega^s)^*}{\partial t} \quad (1.2)$$

La limite d'une telle approche est que le choix des fonctions  $\xi_G(f_S)$  est totalement arbitraire.

**Rappaz et Thévoz [83]** ont développé un modèle de microségrégation en croissance équiaxe dendritique pour un alliage binaire. A cet effet, ils ont divisé le milieu en trois parties : la fraction de solide  $g_S$  comprise dans une fraction de grain  $g_{env}$  contenant le solide et le liquide interdendritique, elle-même contenue dans une sphère de rayon  $R_{tot}$  contenant le liquide environnant extradendritique. Un modèle numérique et un modèle analytique ont été proposés. Dans les deux cas, le grain croît avec une composition du solide à l'interface en équilibre avec le liquide à la température, supposée uniforme, régnant dans le grain. Le liquide interdendritique est supposé homogène, à la composition d'équilibre notée  $w^{li}$  et la rétrodiffusion est négligée. Dans le modèle numérique, le profil de soluté est établi en résolvant l'équation de la diffusion entre la frontière du grain  $R_g$  et le rayon total  $R_{tot}$ . Dans le modèle analytique, qui est plus avantageux en terme de temps de calcul, une couche limite de diffusion a été déterminée (d'épaisseur  $\delta l = 2D/V$ ) dans laquelle on impose une loi linéaire de composition. La croissance du grain est régie par la cinétique des pointes de dendrites. La fraction interne de solide  $g_i$ , définie comme le rapport  $g_S/g_{env}$ , est déduite du bilan global de soluté. Pour un alliage binaire, les hypothèses du modèle conduisent à  $w^{pointe} = w^{li}$ . **Rappaz et Boettinger [84]** ont montré que l'extension de ce modèle aux alliages multiconstitués conduit à ce que  $w_i^{pointe}$  n'est pas

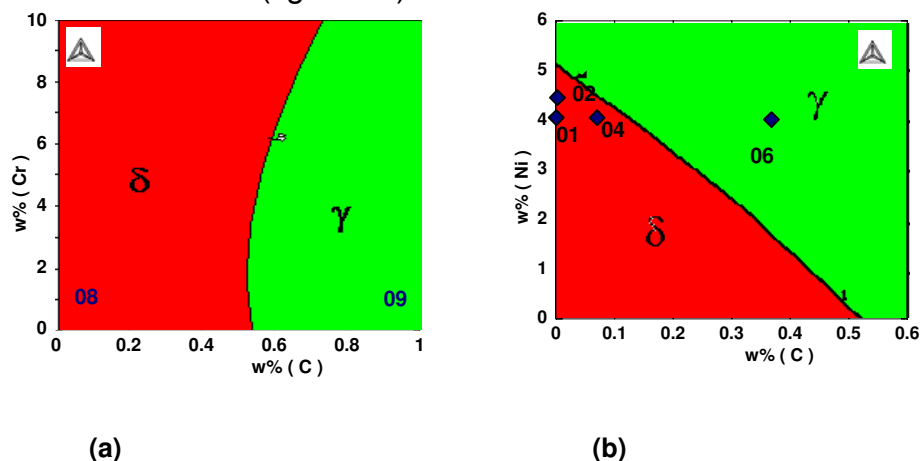
forcément égale à  $w_i^{li}$ . Wang et Beckermann [85, 86] ont généralisé cette approche à la croissance dendritique colonnaire et en prenant en compte la diffusion à l'état solide. Les profils de soluté sont supposés suivre une loi quadratique en géométrie cartésienne dans le solide et dans le liquide extradendritique : la relation (1.20) est alors valable et les distances  $\delta_S$  et  $\delta_l$  peuvent être calculées assez facilement. La prise en compte de la diffusion à l'état solide suppose la définition de la surface spécifique  $S_v,^{s/li}$ .

## II - 11. SYNTHÈSE

La synthèse des différents travaux effectués jusqu'à présent sur la microségrégation montre que certains aspects de la microségrégation sont encore mal connus. Il convient d'étudier plus en détails les points suivants :

- Effet de la réaction péritectique sur la microségrégation
- Effet de la nature du premier solide déposé sur la microségrégation
- Effet de la morphologie de la structure sur la microségrégation
- Effet de la microstructure sur la microségrégation

Notre travail de recherche dans le cadre de notre formation doctorale, vise à apporter des éléments de réponses de types expérimentaux sur ces aspects cités. Pour satisfaire le cahier des charges de cette étude. Un choix judicieux d'alliages d'aciers fut retenu. Il s'agissait de choisir des nuances d'aciers ayant une solidification primaire en Ferrite ( $\delta$ ) ou en austénite ( $\gamma$ ), possédant une réaction péritectique, ayant le moins de transformations à l'état solide et qui puissent s'apprêter aux investigations métallographiques. La recherche bibliographique nous a amené à sélectionner deux familles d'alliages d'aciers les systèmes Fe-Ni-C et Fe-Cr-C (figure 36).



**Figure 36 Choix de la composition des alliages en fonction de la nature du premier solide déposé**

Le tableau 2 regroupe la désignation des différentes nuances d'alliages réceptionnés et leurs compositions. Il montre aussi les séquences de solidification théorique à l'équilibre pour notre étude prédites par le module de Scheil implémenté dans le logiciel Thermo-Calc.

Désignation	Alliage	Phosphore (ppm)	Séquence de solidification (ThermoCalc)
1	Fe- 4% Ni		l → l+δ → l+δ+γ → l+γ → γ
2	Fe- 4,23% Ni	200	
3	Fe- 4% Ni – 0,069% C		
4	Fe- 4% Ni – 0,072 %C	200	l → l+γ → γ
5	Fe- 4%Ni – 0,4 % C		
6	Fe- 4%Ni – 0,4 % C	200	l → l+δ → l+δ+γ → l+γ → γ
7	Fe- 1,5%Cr – 0,16% C		
8	Fe- 1,5%Cr – 0,16% C	200	l → l+γ → γ
9	Fe- 1,5%Cr –1% C		

**Tableau 2 Séquences de solidification théorique**

## ***Chapitre III***

# ***Procédure et techniques expérimentales***



### III - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

#### III - 1. DEMARCHE EXPERIMENTALE

La diversité des compositions et des effets à étudier nous a amené à cerner nos investigations métallurgiques suivant le cahier des charges qui est résumé par le tableau 3 et qui montre la correspondance entre les effets à étudier et la nuance d'acier.

Effet à étudier	Fe-Ni-C			Fe-Cr-C	
	Fe-4%Ni	Fe-4%Ni-0,1%C	Fe-4%Ni-0,4%C	Fe-1.5%Cr-0,16%C	Fe-1.5%Cr-1%C
Composition chimique	*	*			
Nature du premier solide		*	*	*	*
Réaction péritectique		*		*	*
Effet de la morphologie des grains		*			
Texture des grains		*			*

**Tableau 3** Correspondances entre effet à étudier et la nuance d'acier.

L'étude de l'influence de la composition sur la microségrégation fut menée sur l'alliage binaire Fe-4%Ni et l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0,1%C. Ces deux alliages possèdent la même composition (4%Ni), une solidification primaire en ferrite et présentent une réaction péritectique. Ceci nous permet donc d'étudier l'effet de la composition du carbone sur la microségrégation. Nous avons aussi étudié sur le système Fe-Ni, l'effet de la composition du nickel sur deux alliages péritectiques. Les deux alliages qui ont respectivement 4% et 4,23% de Ni correspondent au début et au milieu du palier péritectique.

Pour étudier l'effet de la nature du premier solide déposé sur la microségrégation, nous avons sélectionné deux alliages du système Fe-Ni-C et deux alliages du système Fe-Cr-C. Pour le système Fe-Ni-C les nuances choisies furent : Fe-4%Ni-0,1%C et Fe-4%Ni-0,4%C. Ils présentent respectivement une solidification primaire en ferrite ( $\delta$ ) et en austénite ( $\gamma$ ). A titre de nickel constant, ceci nous permettra de caractériser l'influence de solidification primaire sur la ségrégation du nickel. La même démarche a été adoptée pour le système Fe-Cr-C. Dans ce dernier cas c'est l'influence de la solidification primaire sur la microségrégation du chrome qui a été étudiée sur les deux alliages suivants Fe-1.5%Cr-0.16%C ( $\delta$ ) et Fe-1.5%Cr-1%C ( $\gamma$ ).

La réaction péritectique et son interaction avec la microségrégation a été caractérisée sur un alliage binaire Fe-4,23%Ni et deux alliages ternaires Fe-4%Ni-0.1%C et Fe-1,5%Cr-0,16%C. Seulement notre effort s'est porté principalement sur les deux alliages à base de nickel. Ce dernier possède des coefficients de partage ( $\delta/\gamma$ ) et ( $\gamma/l$ ) nettement plus importants que ceux du chrome. Ceci permet métallographiquement de distinguer les différentes phases.



L'effet de la morphologie, essentiellement l'influence sur la microségrégation de la structure dendritique par rapport à la structure cellulaire, a été étudié sur l'alliage péritectique Fe-4Ni%.

Enfin, les investigations sur l'effet de la texture (colonnaire/équiaxe) furent menées sur un l'alliage ternaire péritectique et sur un lingot industriel 100C6 p0our étudier respectivement l'effet de la texture sur la microségrégation du nickel et du chrome respectivement.

### III - 2. DESIGNATION ET COMPOSITION DES ALLIAGES

La désignation et la composition de chaque alliage étudié sont reportées par le tableau.4

Nuance	Ni (%)	P (ppm)	C(%)	Cr(%)	Mn(%)	Si(%)
01	4,23	--	--	--	--	--
02	4,03	250	--	--	--	--
03	4,01	--	0,069	--	--	--
04	3,98	220	0,072	--	--	--
05	3,95	--	0,355	--	--	--
06	3,91	250	0,342	--	--	--
05 *	4,00	230	0,475	--	--	--
06 *	3,99	--	0,498	--	--	--
07	--	--	0,13	1,43	--	--
08	--	240	0,16	1,48	--	--
09	0,17	--	1,00	1,50	0,24	0,34

Tableau 4 alliages ternaires Fe-C-Cr

### III - 3. DISPOSITIF DE SOLIDIFICATION DIRIGEE (SD)

La compréhension et la maîtrise de la microségrégation dans le brut de coulée sont des facteurs importants pour le métallurgiste. De nombreuses études expérimentales et numériques ont traitées le phénomène de la microségrégation. La solidification dirigée (SD) nous permet de simuler à l'échelle du laboratoire des structures en fin de solidification. Ceci nous permet de caractériser au mieux la microstructure et la microségrégation des éléments chimiques dans des structures qui sont très proche des bruts de coulée. Le diamètre des barreaux de SD de nos essais fut fixé à 20 mm.

#### Principe

Le principe de l'essai de solidification dirigée consiste à appliquer un gradient de température  $G$  à un barreau en cours de translation avec une vitesse de solidification constante  $v$ . On peut contrôler ainsi le gradient de température et la vitesse de solidification, cette dernière étant assimilée à la vitesse d'extraction du barreau. Le contrôle de ces deux paramètres  $G$  et  $v$  permet de contrôler la nature de la microstructure (structure dendritique, structure cellulaire) et la taille caractéristique de cette microstructure ( $d_P$ ,  $d_S$ ,  $\eta_P$ ).

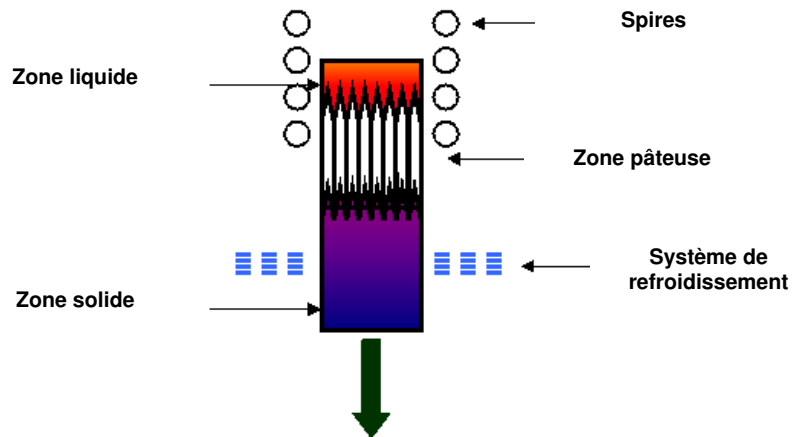


Figure 37 Schéma de principe de l'essai de solidification dirigée

Lors d'un essai de solidification dirigée (SD), l'échantillon est placé dans un dispositif vertical (appelé aussi four de Bridgman), comprenant dans sa partie haute un système de chauffage et dans sa partie basse un système de refroidissement (Figure 37).

Placé dans le système de chauffage, composé d'une bobine d'induction, l'échantillon est porté localement à une température  $T^0$  supérieure à la température du liquidus  $T_L$ , ce qui nous permet d'imposer le degré de surchauffe, définie par  $\Delta T = T^0 - T_L$ .

Le système de refroidissement assure la solidification dans la partie inférieure du dispositif. L'échantillon est translaté verticalement de la zone chaude vers la zone froide du dispositif à vitesse constante.

En régime stationnaire, la vitesse de translation du front de solidification par rapport au front de solidification est égale, en valeur absolue, à la vitesse de translation de l'échantillon par rapport au four. Grâce à un thermocouple de type B (Pt-Rh 30 %, et Pt-Rh 6 %) incrusté dans l'échantillon et se translatant avec lui à la même vitesse. Le gradient de température peut être mesuré à la pointe du thermocouple.

Le choix de la température maximale de la zone liquide et la position de l'inducteur par rapport à la boîte à eau et le nombre de spires permettent de jouer sur la valeur du gradient thermique, la vitesse de translation est choisie suivant le type de microstructure à obtenir (dendritique, colonnaire,.....).

#### Caracteristiques techniques

Tous nos essais de SD ont été effectués sur un dispositif de solidification dirigée qui appartient à l'équipe solidification (GT2) du LSG2M. Le dispositif (figure38) est constitué dans sa partie haute d'un four à induction qui permet de porter une partie de l'échantillon à la température de fusion. Dans sa partie basse, un système de refroidissement à l'eau permet de maintenir un gradient de température. Un dispositif de translation, monté sur le bâti du dispositif permet d'imposer des vitesses de translation. La gamme de vitesse disponible varie entre 0.2 et 20 mm/min.

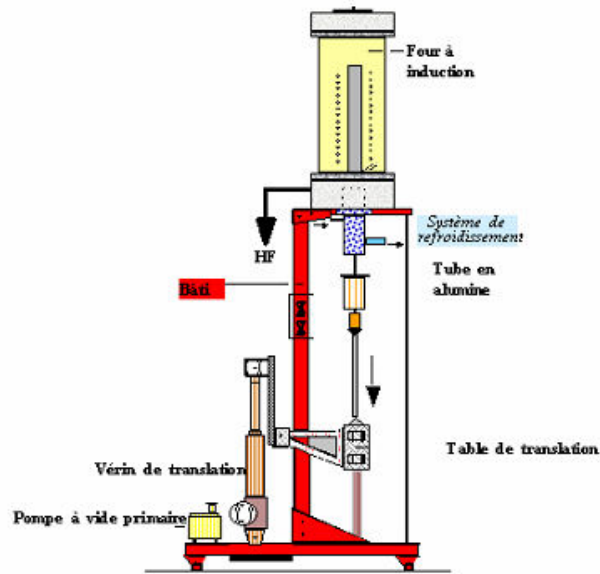


Figure 38 Dispositif de solidification dirigée

### III - 4. DISPOSITIF DE TREMPE EN SOLIDIFICATION DIRIGEE (TSD)

#### Principe

Le principe de l'essai de trempe au cours de la solidification dirigée, consiste à imposer un gradient thermique sur un barreau d'alliage. La partie haute qui se trouve dans l'inducteur est portée à une température supérieure au liquidus alors que la partie inférieure est soumise à un jet d'eau sous pression, ce qui permet de maintenir cette partie à une température qui avoisine les 20 °C. Le gradient thermique permet ainsi d'observer après trempe toutes les transformations de phases lors de la solidification. Le diamètre des barreaux de SD de nos essais fut fixé à 20 mm.

#### Caractéristiques techniques

Le dispositif de trempe en cours de solidification dirigée se compose principalement de quatre parties : Un système de chauffage, un système de refroidissement, un système de translation, et un dispositif de trempe (figure 39).

#### Le système de chauffage :

Il est un composé d'un four à induction à haute fréquence qui se compose d'un inducteur en cuivre et d'un suscepteur en graphite pour éviter toute perturbation électromagnétique due à l'induction au cours de la solidification. La pointe du thermocouple est placée au niveau du point le plus chaud dans le suscepteur. L'ensemble du four est placé dans une enceinte étanche sous balayage argon.

Le système de refroidissement :

Il se compose d'un système de projection d'eau sous pression, appelé boîte à eau. Ceci maintient le bas du barreau à une température qui avoisine le 20 °C. Par ce système, on peut donc imposer un gradient thermique tout au long du barreau.

Le système de translation :

Pour déplacer le tube d'échantillon de la partie chaude vers la partie froide, un moteur asynchrone avec un galet d'entraînement sont utilisés dans ce système de translation. Grâce à une tige en acier inoxydable et un variateur de vitesse le barreau est ainsi translaté à la vitesse voulue.

Le système de trempe :

Pour assurer la trempe du barreau, un vérin pneumatique est utilisé. Au cours de la translation le piston du vérin est tendu, mais au moment de la trempe ce piston se rétracte à l'aide d'une compression pneumatique ce qui permet au de translater rapidement le barreau vers la boîte à eau.

Le système d'acquisition :

Un système d'acquisition analogique est couplé au dispositif mécanique. Il s'agit d'une unité d'acquisition de marque AOIP® et d'un logiciel d'acquisition de marque LOGIDAT® qui permettent d'afficher les températures de l'échantillon et du four grâce à une conversion du signal électrique émis par les thermocouples en température. Ce dispositif d'acquisition permet d'enregistrer à chaque seconde l'évolution de la température. La visualisation de ces données et leurs sauvegardes se font sur un micro- ordinateur qui est associé au système d'acquisition.

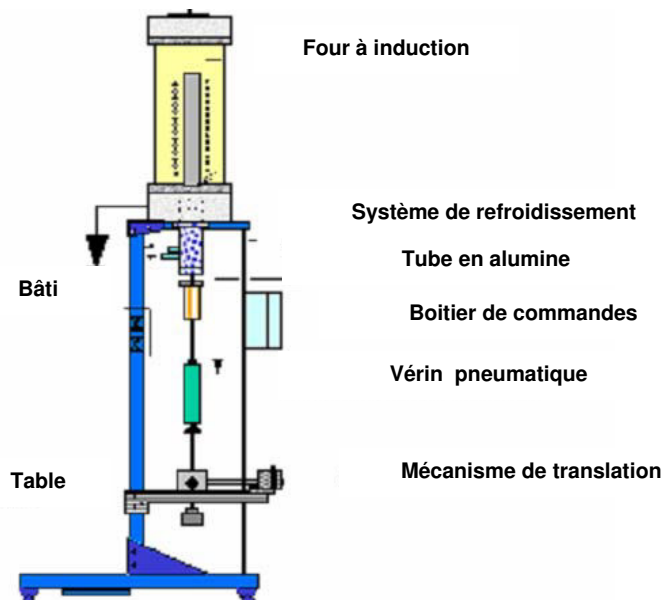


Figure 39 Dispositif de trempe au cours de la solidification dirigée

### III - 5. PARAMETRES DES ESSAIS DE SD ET DE TSD

Les essais de solidification dirigée (SD) et de trempe au cours de la solidification dirigée (TSD) qui ont été effectués avec des vitesses d'extraction  $v$  et des gradients de température  $G$  différents en fonction de la structure attendue et de l'étendue de zone pâteuse. Le tableau 5 résume ces valeurs expérimentales.

Alliage	Essai	Numéro	$v$ (mm/min)	$G$ (K/cm)
1	TSD	01	1,2	13
		02	1,2	13
	SD	01	1,2	15
		01	1,2	13
2	TSD	02	0	
		03		
	SD	01	1,2	15
		01	2,4	20
3	TSD	02		
		03	1,2	15
	SD	01	2,4	26
		02	7,5	
4	TSD	03	7,5	
		04	1,2	
	SD	01	1,2	15
		01	1,2	
5*				
6	TSD	01	1,2	20
	SD	01	1,2	15
5*				
6*				
7*				
8	TSD	01	1,2	12,5
		02	1,2	
		03	2,5	
		01	1,2	18
	SD	01	1,2	20
		02	2,4	25
		03	2,4	
		04	2,4	
9	TSD	05	7,5	
		06	7,5	10
		07	0,24	
		08	0,24	
	SD	01	1,2	10
		02	2,4	30
		03	4,5	30
		04	7,5	20

(\*) Essais non exploitables

Tableau 5 paramètres de l'étude de la microstructure et de la microségrégation

### III - 6. METHODES D'ETUDES :

A partir des fichiers d'acquisition, qui donnent la température en fonction du temps écoulé, et connaissant la vitesse d'extraction. On peut accéder aux graphes :

$T = f(t)$ (1)	$T$ : ( température °C ) , $t$ : (temps secondes)
$T = g(x)$ (2)	$T$ : ( température °C ) , $x$ : (distance millimètres)
$\frac{dT}{dt} = h(t)$ (3)	$T$ : ( température °C ) , $t$ : (temps secondes) $\frac{dT}{dt}$ (vitesse de refroidissement $\frac{°C}{min}$ )
$\frac{dT}{dx} = I(x)$ (4)	$T$ : ( température °C ) , $x$ : (distance millimètres) $\frac{dT}{dx}$ (gradient thermique $\frac{°C}{mm}$ )

**Tableau 6 Types de graphes obtenus lors d'un essai de SD**

Le graphe de l'équation (1), est le résultat brut de sortie issue de l'interface du capteur de la firme (AOIP ®), relié au dispositif et couplé au logiciel Logidat ® commercialisé par la même firme pour piloter ce capteur.

Le graphe de l'équation (2) peut être aisément déduit de l'équation (1), connaissant la vitesse d'extraction, qui est constante tel que  $v = \frac{x}{t}$  (mm/s).

En dérivant l'équation (1) et (2) respectivement on retrouve les équations (3) et (4) et par conséquent leurs graphes associés.

#### Métallographie

##### III - 6.1.1. Macrographie

Les barreaux solidifiés de manière directionnelle ou bien trempés en cours de solidification dirigée sont d'abord photographiés avec un objectif macrographique pour noter l'état général du barreau (porosités, retassures, freckles, torsion)

##### III - 6.1.2. Micrographie

La partie intéressante pour l'étude de notre barreau est découpée puis enrobée de façon longitudinale dans une résine. La coupe longitudinale (figure 40) sert à révéler l'évolution de la microstructure au cours de la solidification dans les essais de TSD. Chaque échantillon est ensuite poli aux papiers abrasifs de

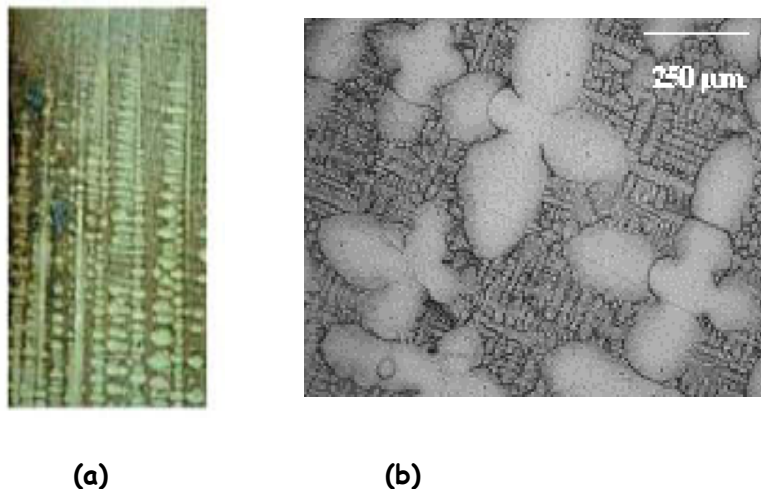
granulométrie croissante 80, 320, 600, 800, 1200, 2400, 4000, puis enfin poli avec un feutre et une solution diamantée (1/4  $\mu$ ).

Cette dernière étape nous permet d'avoir un polissage miroir. L'attaque chimique révèle ensuite la microstructure (figure 40b). Pour les alliages Fe-Ni-C le réactif d'OBERHOFFER a été utilisé. C'est un réactif très sensible à la ségrégation, il colorie en sombre les zones appauvri en soluté et en clair les zones très riches. Pour les alliages Fe-Cr-C le réactif utilisé fut celui de BECHET-BEAUJARD. Les zones ségréguées apparaissent en sombre et les zones appauvries en soluté apparaissent en clair. Le tableau 7 donne la composition des réactifs d'attaque chimique.

Réactif de OBERHOOFER	Réactif de BECHET-BEAUJARD
500 ml d'eau distillée 500 ml de méthanol 42 ml d'acide chlorhydrique 30 g de chlorure de fer (FeCl <sub>3</sub> ) 0,5 g de chlorure d'étain (SnCl <sub>2</sub> )	1000 ml d'eau distillée 50 ml d'éthanol acide picrique (solution sursaturée)
Attaque à froid pendant 8 à 10 secondes	Attaque à chaud (début d'ébullition) pendant 10 à 40 secondes en fonction de la concentration de la solution

**Tableau 7 Composition et mode d'attaque des deux réactifs utilisés**

L'étape suivante, consiste à faire des coupes transversales et donc isothermes sur des barreaux de TSD pour caractériser la microségrégation à une température donnée. Ceci est possible grâce à la connaissance du gradient thermique et la distance de la coupe par rapport à la pointe du thermocouple. Le même traitement de polissage que le précédent est appliqué aux coupes transversales. Les coupes isothermes permettent de quantifier la nature des phases, le taux de phase, la taille de la structure, les tailles caractéristiques ( $n_p$ ,  $d_p$ ,  $d_s$ ), la cartographie chimique, le profil de concentration, et les courbes de fractions cumulées.



**Figure 40 Essai de TSD sur un barreau de 100C6 (a) coupe longitudinale, (b) coupe transversale ( $v=1,2$  mm/min,  $G=10$  K/cm)**

## Analyse d'images

### III - 6.1.3. La segmentation

La segmentation est une des étapes critiques de l'analyse d'images qui conditionne la qualité des mesures effectuées ultérieurement. Elle permet d'isoler dans l'image les objets sur lesquels doit porter l'analyse, de séparer, dans une image, les régions d'intérêt du fond. Il existe plusieurs techniques, la plus simple étant le seuillage des valeurs de niveaux de gris des images. La segmentation peut être manuelle ou automatique.

Pour effectuer une segmentation manuelle, il faut avoir déterminé le seuil (la valeur de partition) à appliquer à l'image : le seuillage permet de sélectionner les parties de l'image qui intéressent l'opérateur. Pour sélectionner des objets, il faut donc choisir des limites entre lesquelles les pixels devront être pris en compte.

Prenons par exemple, l'image en niveaux de gris suivante (figure 41), et considérons un profil AB la traversant:

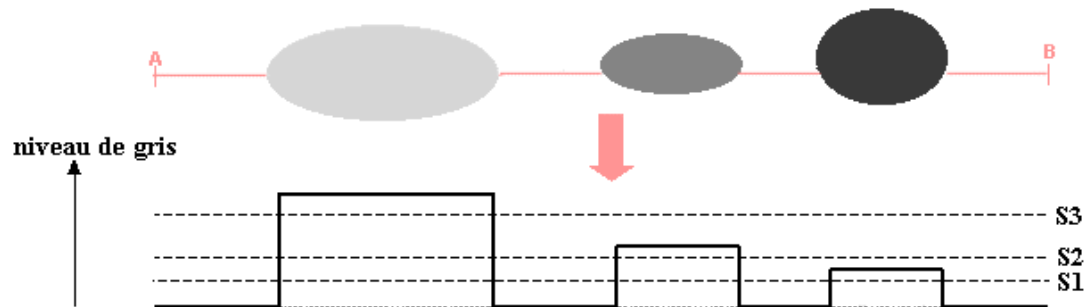


Figure 41 Profil de la variation du niveau de gris

Elle contient 3 objets : un noir, un gris foncé et un gris clair. Le seuil va correspondre à une valeur de niveau de gris susceptible de partitionner l'image en 2 composantes : les objets d'une part, le fond d'autre part. Le résultat est une simplification de l'image en une image binaire. Après seuillage, les parties de l'image qui auront été sélectionnées seront traduites en blanc (ou en rouge, selon le logiciel utilisé, codé à 1) et le reste de l'image en noir (codé à 0). Le seuillage n'est pas nécessairement une opération qui s'effectue manuellement : la valeur de seuil peut être obtenue de manière automatique. Le seuillage automatique est basé sur l'analyse de la distribution en fréquence histogramme des niveaux de gris ou cumulée associée à l'image figure 42(a) et 42(b). L'objectif des méthodes de recherche de seuillage automatique est de détecter 3 "populations" sur l'histogramme, et de proposer la valeur qui permet de les séparer au mieux.

#### Histogramme des niveaux de gris.

Dans le cas de la figure 42 (a), qui représente la distribution des niveaux de gris de la coupe métallographique, l'interface ferrite/austénite en sombre est déterminée par la ligne horizontale des faibles valeurs des niveaux de gris entre 0 et 50 (liseré noir autour de la ferrite). La ferrite par contre est représentée par la



première distribution des valeurs qui s'étendent de 50 à 130 (sombre). La deuxième distribution qui s'étend de 130 à 200 en niveaux de gris représente l'austénite (gris). La dernière partie de 200 à 255 représente le liquide résiduel qui est en clair sur l'image métallographique.

Histogramme des niveaux de gris cumulés.

Une autre approche consiste à construire la courbe cumulée des niveaux de gris (figure 42(b)). Dans cette approche la distinction entre phases est caractérisée par les différents points d'inflexions. La fraction de l'interface correspond aux valeurs nulles de l'histogramme cumulé. La ferrite est délimitée par le premier point d'inflexion. L'austénite est caractérisée par le second point d'inflexion alors que la fraction du liquide est caractérisée par le palier de fortes de valeurs de niveau de gris. Dans la dernière partie de la courbe. Il faut noter que quand l'histogramme correspondant à une image qui ne présente pas de populations distinctes, la valeur de seuil obtenue automatiquement peut ne pas être pertinente. L'automatisation de cette opération impose donc des contraintes. En particulier, il doit y avoir un contraste suffisant entre les objets pour distinguer chaque phase. Si tel n'est pas le cas, il faut prévoir une amélioration de l'image par augmentation du contraste ou utiliser des outils morphologiques de l'analyse d'images pour extraire les contours.

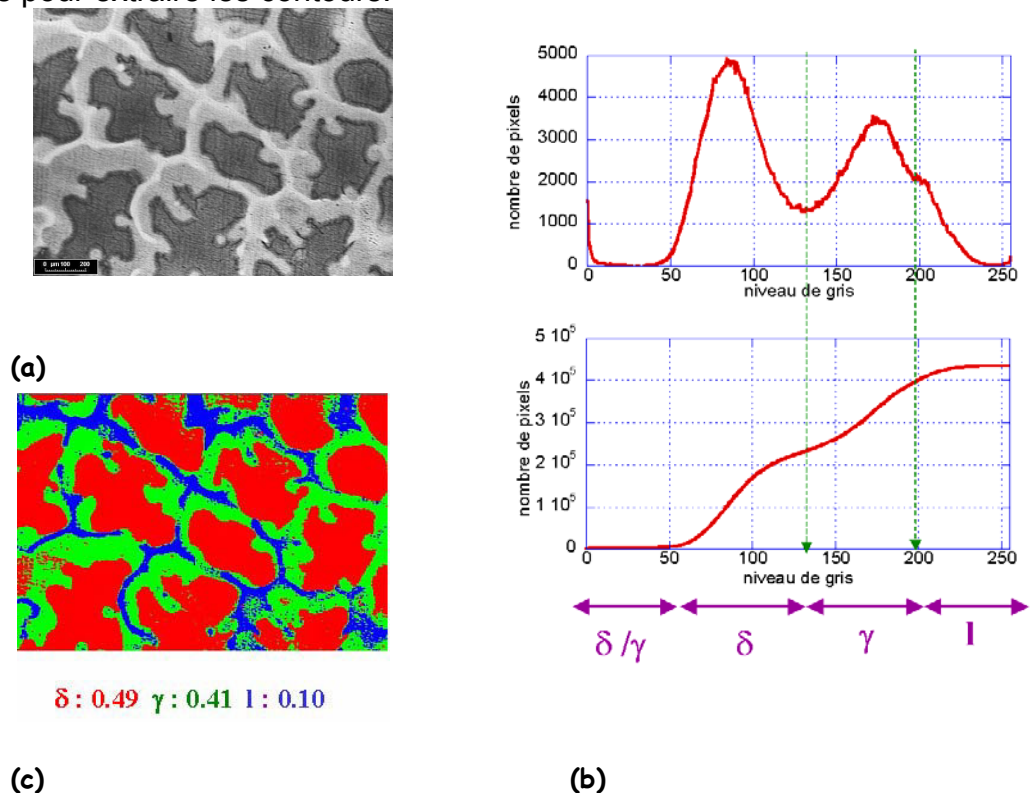
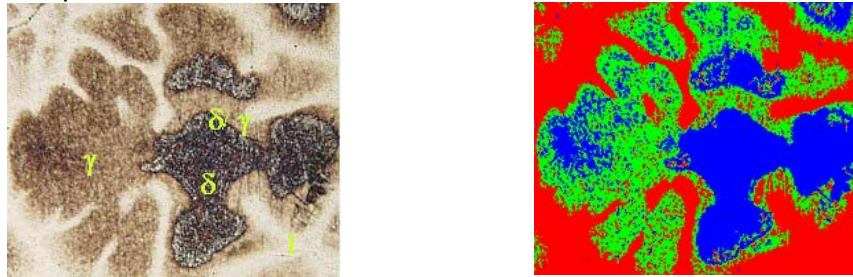


Figure 42 (a) image métallographique, (b) histogramme des niveaux de gris et courbe de fractions cumulées du niveau de gris (c) traitement de l'image par analyse d'images

La méthode de l'histogramme des niveaux de gris cumulés conforte et complète la première méthode de détermination des fractions de phases. L'analyse d'images fut utilisée principalement pour la détermination des taux de phases au cours de la solidification. En effet, le réactif métallographique utilisé permet de

dissocier les phases existantes en associant à chaque phase une plage de valeurs de niveaux de gris (figure 43 (a)). Toutes nos images en couleurs prises avec le microscope optique furent transformées en niveaux de gris puis traitées avec le logiciel d'analyse d'images *APHELION*® de la société *ADCIS*®. Le programme qui a été écrit, nous a permis de faire un seuillage différentiel et de quantifier le taux de phase surfacique que nous admettons être égal au taux de phase volumique.



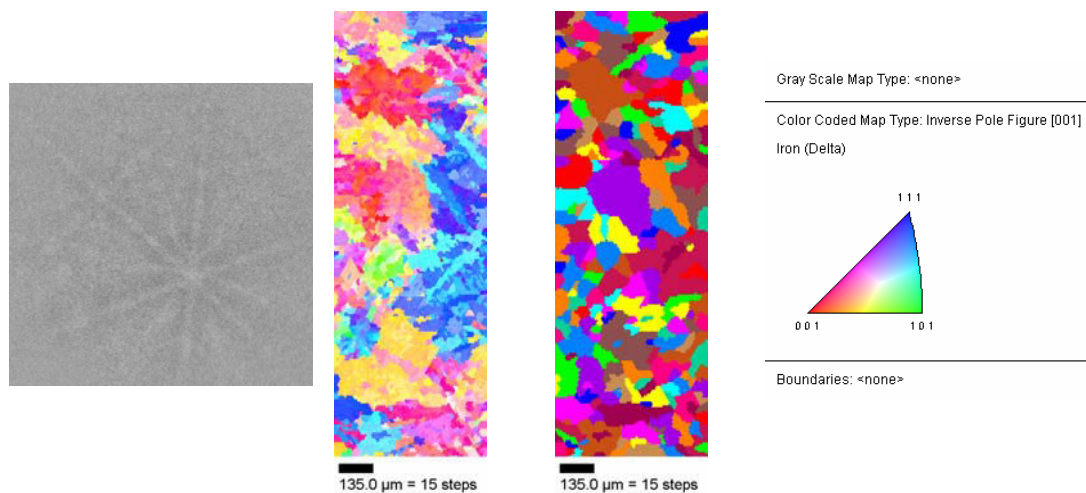
(a)

(b)

**Figure 43 (a) Image métallographique (réaction péritectique)  
(b) délimitation de chaque phase par analyse d'images (v=1,2 mm/min, G=10 K/cm)**

Cependant l'analyse critique de cette méthode nous amène à essayer de mieux discerner les différentes phases présentes. La microstructure (figure 44) est une zone d'une coupe transversale trempée en cours de solidification et donc par principe de structure ferritique suivant le diagramme d'équilibre. Le diagramme de diffraction des rayons X confirme la présence de ferrite uniquement. Une analyse à l'EBSD a abouti au même résultat.

Le seul témoin de la microstructure à la température de trempé reste la ségrégation chimique. Au moment de la trempé la diffusion des éléments chimiques est figée car c'est un phénomène activé par la température. Par la suite, la détermination des fractions surfaciques se fera sur la base des différences de niveaux de gris induites par la ségrégation chimique.



(a)

(b)

(c)

(d)

**Figure 44 EBSD : (a) Lignes de kukichi, (b) orientation, (c) interpolation des grains, (d) légende des directions**

## Incertitudes sur les mesures

La coupe longitudinale sur chaque barreau met en évidence la morphologie du front de solidification. Ce front doit être repéré par rapport à la pointe du thermocouple afin d'en estimer la température grâce au thermogramme enregistré pendant la TSD. Mais il existe de nombreuses incertitudes sur les différentes mesures :

Le thermocouple est placé dans une gaine en alumine dont l'extrémité est fermée et de forme approximativement hémisphérique. La soudure chaude est placée à la base de cette extrémité. Le repérage du front se fait par rapport à la pointe du capteur à l'aide d'une règle graduée en millimètre. L'erreur sur la position de la soudure chaude est estimée à  $\pm 150 \mu\text{m}$ .

Le liquide trempé se distingue du front de solidification par des fines structures formées lors de la trempe. Cependant, dans certains cas, l'interface solide/liquide n'est pas bien marquée. Il faut alors faire une estimation de la position du front de solidification (erreur selon le grossissement). De plus, la trempe nécessaire pour figer la croissance cristalline n'est pas instantanée (de l'ordre de 100 K/s). Il existe un transitoire entre la vitesse de tirage (égale à la vitesse de solidification en régime permanent) et la vitesse de trempe. Dans les premiers instants de ce transitoire, les microstructures vont continuer à croître sous d'autres conditions (variation de la vitesse et du gradient) que celles imposées au cours du tirage. La situation observée sur les coupes longitudinales n'est pas exactement celle qui existait avant la trempe. Le front se déplace donc légèrement et l'erreur réelle est estimée à  $50 \mu\text{m}$ .

De plus la coupe longitudinale a peu de chance de passer exactement à la pointe de microstructures cellulaires ou dendritiques. L'erreur introduite est d'autant plus grande que ces microstructures sont grosses et de l'ordre de grandeur du rayon de la pointe qui est de l'ordre de  $50 \mu\text{m}$ .

Pour observer le front de solidification, il est nécessaire de découper le barreau transversalement en petites lamelles circulaires de  $1500 \mu\text{m}$  d'épaisseur, la précision des mesures de longueurs sur ces morceaux est de  $80 \mu\text{m}$ .

Dans le domaine de température de travail (jusqu'à  $1600 \text{ }^\circ\text{C}$ ), la précision des thermocouples utilisés est estimée être de l'ordre de l'ordre de 1 à  $5 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Les coupes transversales sont toujours repérées par rapport au front de solidification par une distance qui correspond elle-même à une température donnée. L'erreur relative associée à cette distance d'autant plus faible que les coupes sont éloignées du front. L'intervalle entre les coupes est cependant connu avec une bien meilleure précision. Seules interviennent les incertitudes de découpes ( $\pm 50 \mu\text{m}$ ) et de polissage ( $\pm 50 \mu\text{m}$ ) pour chaque polissage miroir.

### III - 6.1.4. Taille caractéristique

Les coupes métallographiques montrent une forte variabilité de la distance entre branches primaires  $d_p$  sur même coupe transversale. Nos résultats ont pour but de fournir des valeurs d'entrée dans le modèle numérique afin de prédire la microségrégation. En modélisation, une valeur fixe de  $d_p$  est prise comme donnée. Cependant les résultats expérimentaux montrent une forte variabilité de la valeur du  $d_p$ . La figure 45 montre la valeur moyenne du  $d_p$  sur différentes zones d'analyse sur deux alliages le Fe-4%Ni-0,1%C et le Fe-4%Ni-0,4%C. On peut noter une large dispersion des valeurs de  $d_p$  sur l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C de 300  $\mu\text{m}$  à 800  $\mu\text{m}$  et de façon moindre sur le Fe-4%Ni-0,4%C de 500  $\mu\text{m}$  à 900  $\mu\text{m}$ .

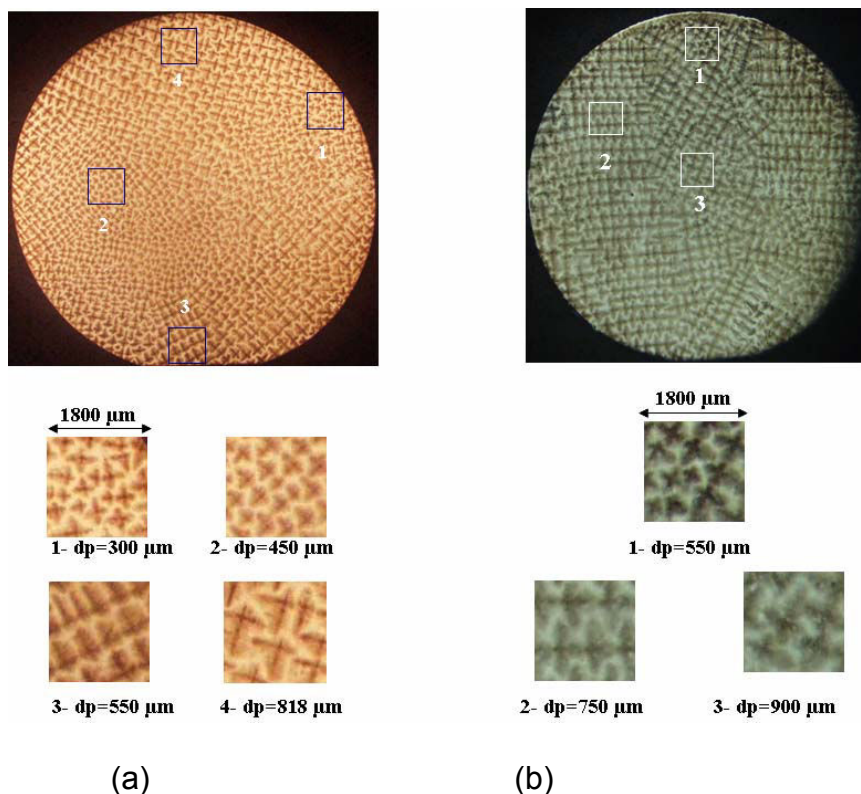


Figure 45 variabilité de la taille de la structure (a) Fe-4%Ni-0,1%C et (a) Fe-4%Ni-0,4%C

En plus de la détermination de la valeur moyenne de  $d_p$ , une distribution des valeurs de  $d_p$  a été construite. 49 mesures de  $d_p$  réparties sur tout l'échantillon ont été effectuées. La figure 46 montre la distribution des valeurs de  $d_p$  (figure 46). Là aussi, on note sur les deux histogrammes une large distribution des valeurs de  $d_p$ . On peut aussi observer une valeur moyenne de 522  $\mu\text{m}$  sur l'alliage à 0,1%C et 729  $\mu\text{m}$  pour le 0,4%C. Cependant les valeurs sont plus centrées autour de la valeur moyenne sur le deuxième alliage avec la présence de quelques valeurs extrêmes. Pour le premier alliage les valeurs sont aussi centrées autour de la valeur moyenne mais plus étalées, mais ne présentent pas de valeurs extrêmes.

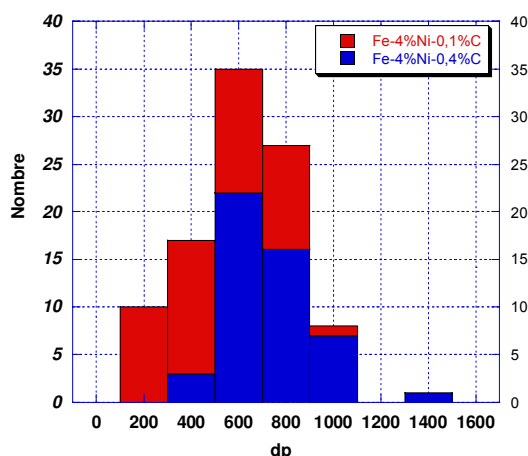


Figure 46 Histogramme des tailles des dp pour les deux nuances

La modélisation de la microségrégation, nécessite aussi dans certains cas de connaître la valeur de la distance entre branches secondaires  $d_s$ , qui est prise comme distance caractéristique. Expérimentalement, on trouve une large distribution des valeurs de  $d_s$ . La mesure de 49 valeurs de  $d_s$  faite sur une coupe longitudinale de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C a permis de tracer l'historgramme des  $d_s$ . Contrairement aux valeurs de  $d_p$ . Les valeurs de  $d$  ont une distribution du type normale et centrée autour de la valeur moyenne qui est de 93  $\mu\text{m}$  (figure 47).

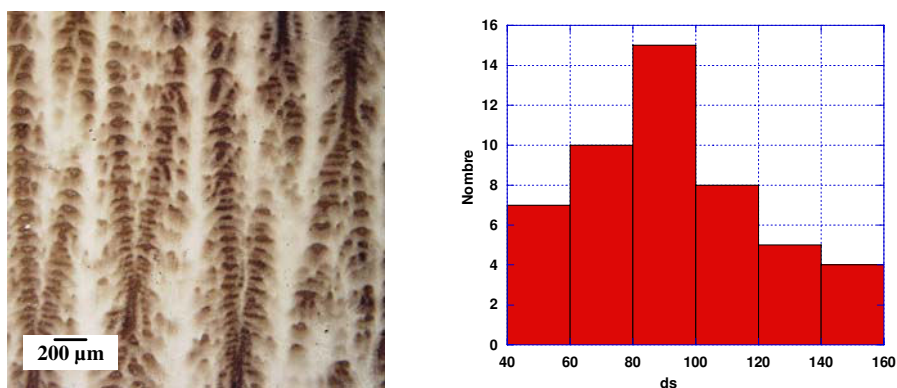


Figure 47 (a) coupe longitudinale (b) histogramme des  $d_s$

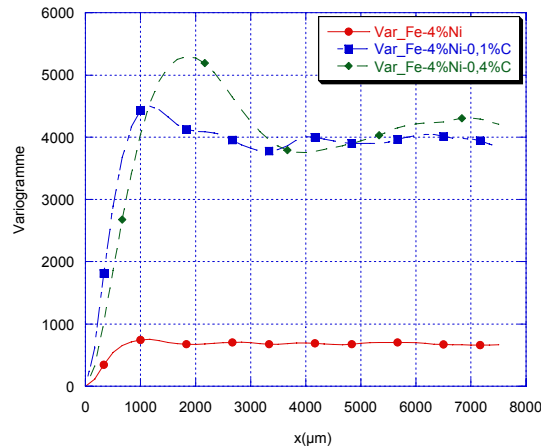
Cette variabilité des distances nous a amené à déterminer une distance caractéristique où les mesures de microségrégations seront représentatives.

### III - 6.1.5. Tailles caractéristiques des structures

La différence de la taille moyenne des structures de solidification dans nos essais pour chaque nuance et la forte variabilité de cette taille dans une coupe transversale, nous amènent à déterminer par des méthodes géostatistiques, une distance caractéristique représentative de nos mesures qui ne soient pas fonction de la zone de prélèvement.

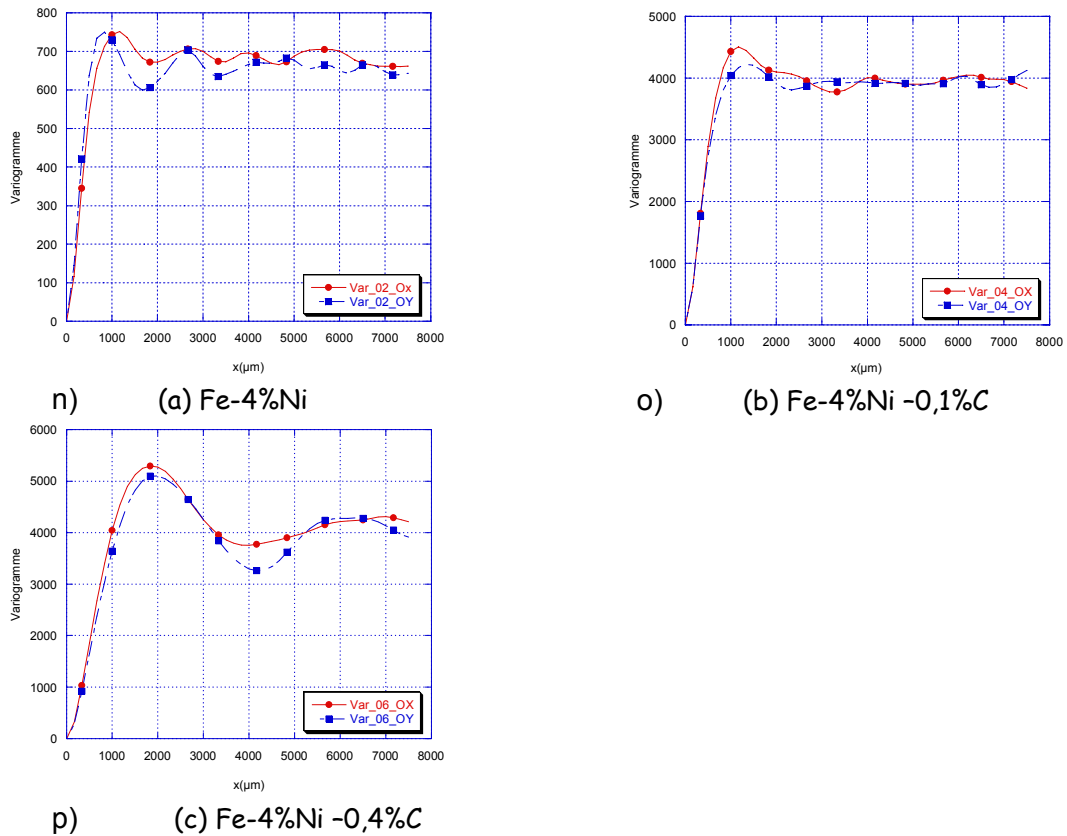
Pour ce faire nous avons établi le variogramme du niveau de gris, pour les trois nuances d'alliages, Fe-4%Ni, Fe-4%Ni-0,1%C et Fe-4%Ni-0,4%C, selon une direction OX. Le pas du variogramme était de l'ordre de 33  $\mu\text{m}$ . La mesure de la

portée, distance à laquelle le variogramme atteint un palier et où sa valeur vaut la variance nous permet de définir la distance caractéristique. Celle-ci s'avère très utile pour fixer l'intervalle optimal d'échantillonnage puisque les échantillons prélevés à une distance inférieure à la portée sont spatialement dépendants. Les valeurs ainsi obtenues sont 1600  $\mu\text{m}$  pour le Fe-4%Ni, 2600  $\mu\text{m}$  pour la Fe-4%Ni-0,1%C et 4200  $\mu\text{m}$  pour la Fe-4%Ni-0,4%C (figure 48) dans le cas de structures périodiques : le premier maxi =  $\frac{1}{2}$  période et le premier mini = période. Ces résultats montrent l'évolution de la taille caractéristique avec l'augmentation du taux de carbone. Ceci va dans le même sens que l'augmentation de la distance entre bras primaires  $d_p$  avec le taux de carbone constaté précédemment.



**Figure 48 Variogramme du niveau de gris suivant OX**

Pour observer la présence d'une éventuelle variation de la taille caractéristique de la zone d'analyse suivant les différentes directions, nous avons établi de nouveau, les variogrammes du niveau de gris pour les trois nuances suivant l'axe OY, à fin de les comparer aux variogrammes suivant l'axe OX. Les Figures 49(a), 49(b), et 49(c) montrent une relative stabilité de ces tailles caractéristiques.



**Figure 49 Variogrammes du niveau de gris suivant OX et OY**

Le Tableau 8 résume les valeurs de la portée du variogramme suivant l'axe OX et l'axe Oy. La plus grande valeur de la portée suivant les deux axes sera prise par la suite pour l'établissement des courbes de fractions cumulées.

Nuance	Taille caractéristique (μm) suivant (OX)	Taille caractéristique (μm) suivant (OY)
Fe-4%Ni	1600	1600
Fe-4%Ni-0,1%C	2400	2800
Fe-4%Ni-0,4%C	4200	4200

**Tableau 8 Taille caractéristique de la zone d'analyse suivant les axes OX et OY**

### Profil de concentration

Le profil de concentration malgré son manque de représentativité peut révéler dans certains cas des informations pertinentes, que les courbes cumulées ne peuvent laisser apparaître. En effet, certaines faibles valeurs de concentration mesurées sont dues à un appauvrissement à l'interface lors de la réaction péritectique. Ces valeurs sont assimilées parfois aux concentrations des cœurs des dendrites à cause du reclassement de ces valeurs. Nous avons à chaque fois que cela était nécessaire tracer de profils de concentrations avec des pas de mesures très serrés (5 à 10 μm).

### Cartographie chimique

Pour caractériser la microségrégation, on détermine à chaque fois une distance caractéristique, généralement 2mm \* 2mm (4 à 5 distances interdendritiques) sur la quelle on fait une mesure d'une trame d'au moins 1000 points à chaque fois. Ce maillage de points servira en premier lieu à dresser des cartographies par interpolation linéaire de la répartition spatiale des éléments chimiques. L'utilisation d'une échelle tricolore (bleu, blanc, rouge) permet de montrer facilement les zones ségréguées positivement (rouge), les zones ségréguées négativement (bleu) et les zones qui ont la composition nominale. Cette approche permet aussi de comparer de façon qualitative le niveau de ségrégation d'un élément d'une analyse à une autre (figure 50).

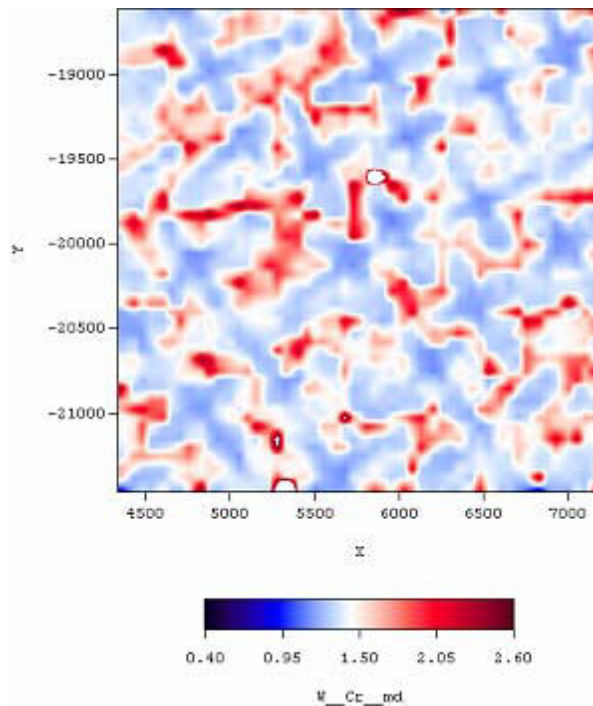


Figure 50 Cartographie du chrome dans une coupe transversale d'un barreau de SD





# ***Chapitre IV***

## ***Microstructures et microségrégation dans le métal solidifié***



# IV - MICROSTRUCTURES ET MICROSEGREGATION DANS LE METAL SOLIDIFIE

## IV - 1. ECHANTILLONS DES ESSAIS DE SD ET DU LINGOT


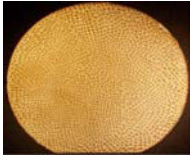
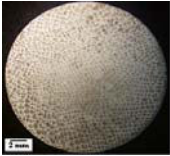
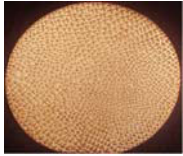

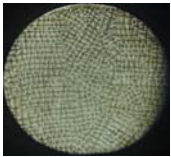
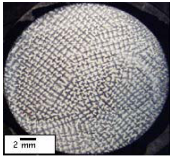
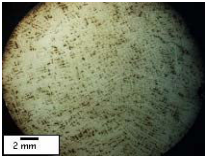
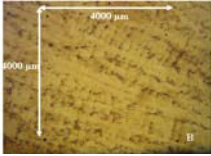
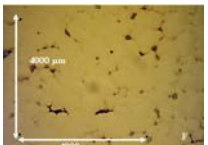
Essai	Alliage	Coupes transversales	Nuance & Objectif de l'étude	Observations ou mesures	Conditions de solidification		
	Fe-Ni-C		Fe-4%Ni (1) Effet de la composition chimique (2) Effet de la taille de la structure	Microstructure Taille de la structure Distance caractéristique Courbes de fractions cumulées	G = 15 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-4.23%Ni (2) Effet de la taille de la structure	Microstructure Taille de la structure Courbes de fractions cumulées	G = 15 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-4%Ni-0.1%C (1) Effet de la composition chimique (2) Effet de la taille de la structure	Microstructure Distribution des dp Distribution des ds Distance caractéristique Courbes de fractions cumulées	G = 20 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-4%Ni-0.1%C (3) Effet de la texture	Texture Courbes de fractions cumulées	G = 15 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-4%Ni-0.4%C (1) Effet de la composition chimique (2) Effet de la taille de la structure	Microstructure Distribution des dp Distribution des ds Distance caractéristique Courbes de fractions cumulées	G = 15 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-1.5%Cr-1%C (1) Effet de la composition chimique	Courbes de fractions cumulées Cartographie chimique	G = 18 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-1.5%Cr-0.16%C (1) Effet de la composition chimique	Courbes de fractions cumulées Cartographie chimique	G = 10 K/cm V=1,2 mm/min		
			Fe-1.5%Cr-1%C (3) effet de la texture	Texture Courbes de fractions cumulées Indice de microségrégation Cartographie chimique	Lingot instrumenté non		
			Fe-1.5%Cr-1%C (3) Effet de la texture	Texture Courbes de fractions cumulées Indice de microségrégation Cartographie chimique	Lingot instrumenté non		
		Lingot	Fe-Cr-C				

Tableau.9 Echantillons issus des essais de SD et du lingot

## IV - 2. NATURE DES MICROSTRUCTURES EN SD

Influence de la composition, G et V sur la nature de la microstructure

Grâce aux essais de SD et de TSD avec des vitesses et des gradients différents, nous avons pu obtenir plusieurs microstructures (dendritique, cellulaire, et plan) avec une solidification primaire en ferrite ou en austénite pour le système Fe-Ni-C. La figure 51(a), montre pour deux alliages binaires, les microstructures et la nature du premier solide obtenues. Nos résultats expérimentaux sur les deux alliages péritectiques Fe-3.8at%Ni et Fe-4at%Ni sont en concordance avec la carte de microstructure établie par Kurz et coll.

Pour nos différents essais sur les alliages ternaires, nous avons tracé une carte de microstructure à composition fixe en nickel (4%Ni) et nous avons noté sur le graphique G/V en fonction de la composition du carbone la nature de la microstructure et la nature du premier solide déposé.

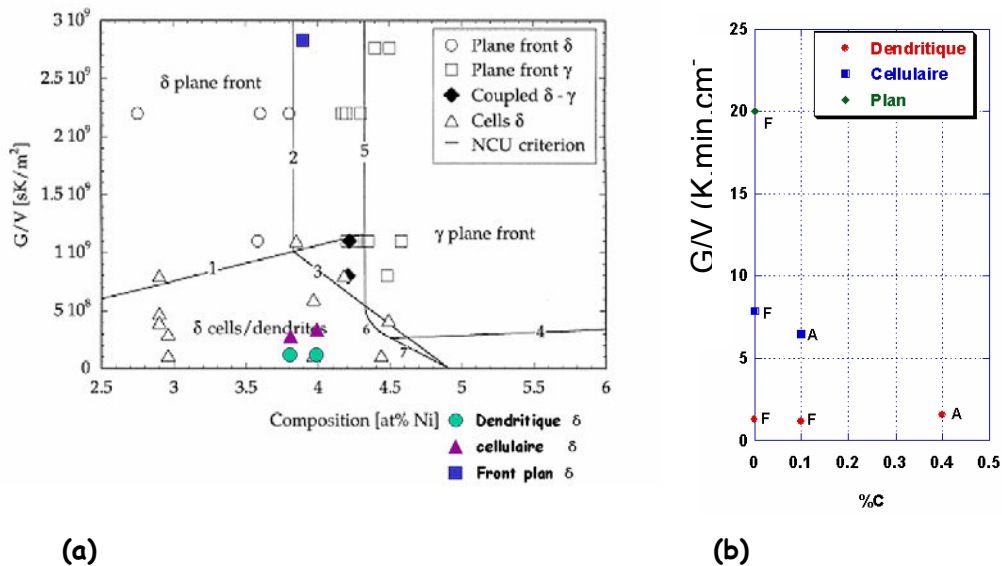


Figure 51 Carte des microstructures pour le système Fe-Ni (a) et le système Fe-Ni-C (b)

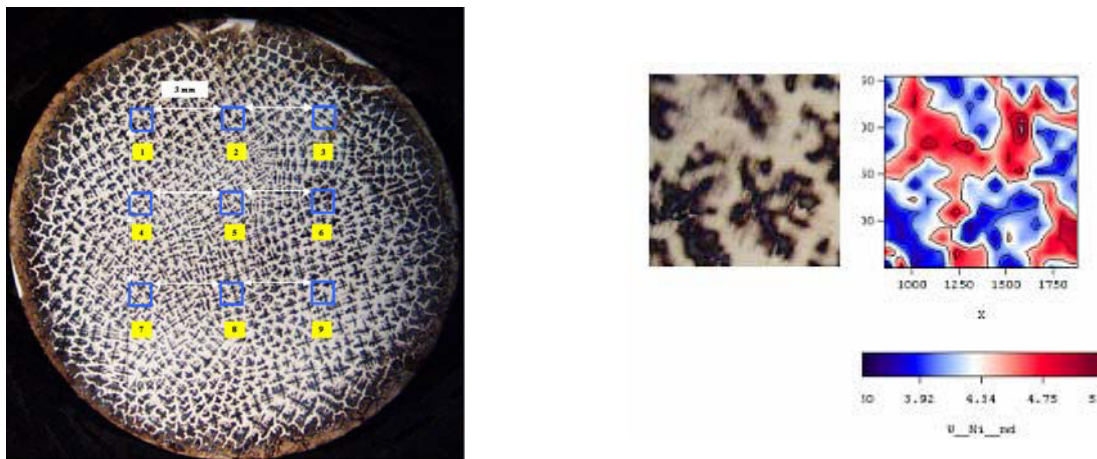
On peut observer sur la figure 51(b) pour la composition à 0,1% de C, le basculement de la microstructure et du premier solide déposé. En effet pour cette composition avec un rapport de  $G/v = 1,2$  le premier solide déposé est la ferrite avec microstructure dendritique. Pour une valeur de  $G/v = 6.5$  le premier solide déposé est de l'austénite avec une microstructure cellulaire. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'à 0,1% de C on est à composition très proche de la ligne monovariante. Cette dernière sépare une solidification primaire en ferrite  $\delta$  et une solidification primaire en austénite  $\gamma$ . On peut donc noter l'effet du rapport  $G/v$  sur le basculement de la nature du premier solide déposé pour un acier proche de la ligne monovariante.

### IV - 3. MICROSEGREGATION

Influence des tailles

#### IV - 3.1.1. Stabilité de la composition chimique moyenne

Les coupes métallographiques montrent bien une variabilité de la distance entre bras primaires sur des barreaux de SD. Mais est ce le cas pour la composition chimique moyenne sur une coupe transversale ? Pour étudier une éventuelle variation de la composition chimique nous avons sélectionné sur chaque coupe transversale 9 zones d'analyses de 1 mm \* 1 mm réparties de façon homogène sur la coupe transversale de manière à balayer toute la surface.



(a) (b)  
**Figure 52 Evolution de la composition chimique (a) position des zones d'analyse (b) exemple d'une zone d'analyse (G = 15 K/cm V=1,2 mm/min)**

Le tableau ci –dessous montre une homogénéité du titre du nickel sur une coupe transversal et donc une absence de macroségrégation à l'échelle de l'échantillon.

zone	01	02	03	04	05	06	07	08	09
%Ni	4.30	4.26	4.32	4.23	4.34	4.26	4.28	4.32	4.33

**Tableau 9 Composition du nickel pour chaque zone analysée**

#### IV - 3.1.2. Stabilité des courbes de fractions cumulées

L'établissement des courbes de fractions cumulées pour les différentes zones d'analyse montre une insensibilité de position de la zone d'analyse sur l'allure des courbes de fractions cumulées et sur l'intensité de la microségrégation. La figure 53 représente la superposition des courbes de cinq zones d'analyse 01, 02, 03, 08 et 09. On peut observer clairement la superposition de ces courbes. On peut donc caractériser la microségrégation sur une seule zone d'analyse. Cette dernière sera représentative de toute la section. On tout cas dans cet alliage où la variabilité de la taille de la structure n'est pas importante.

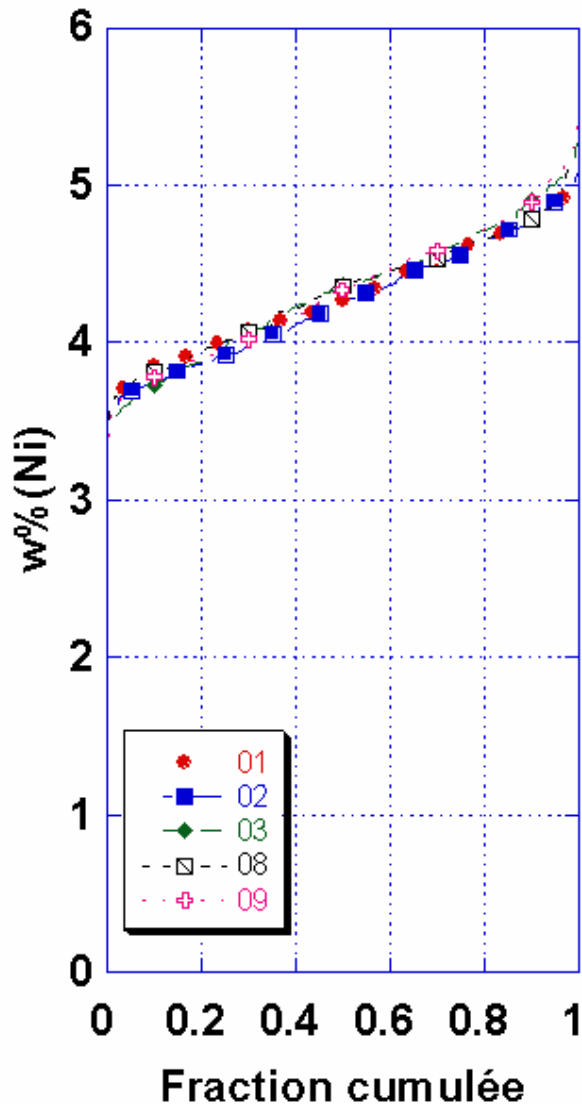
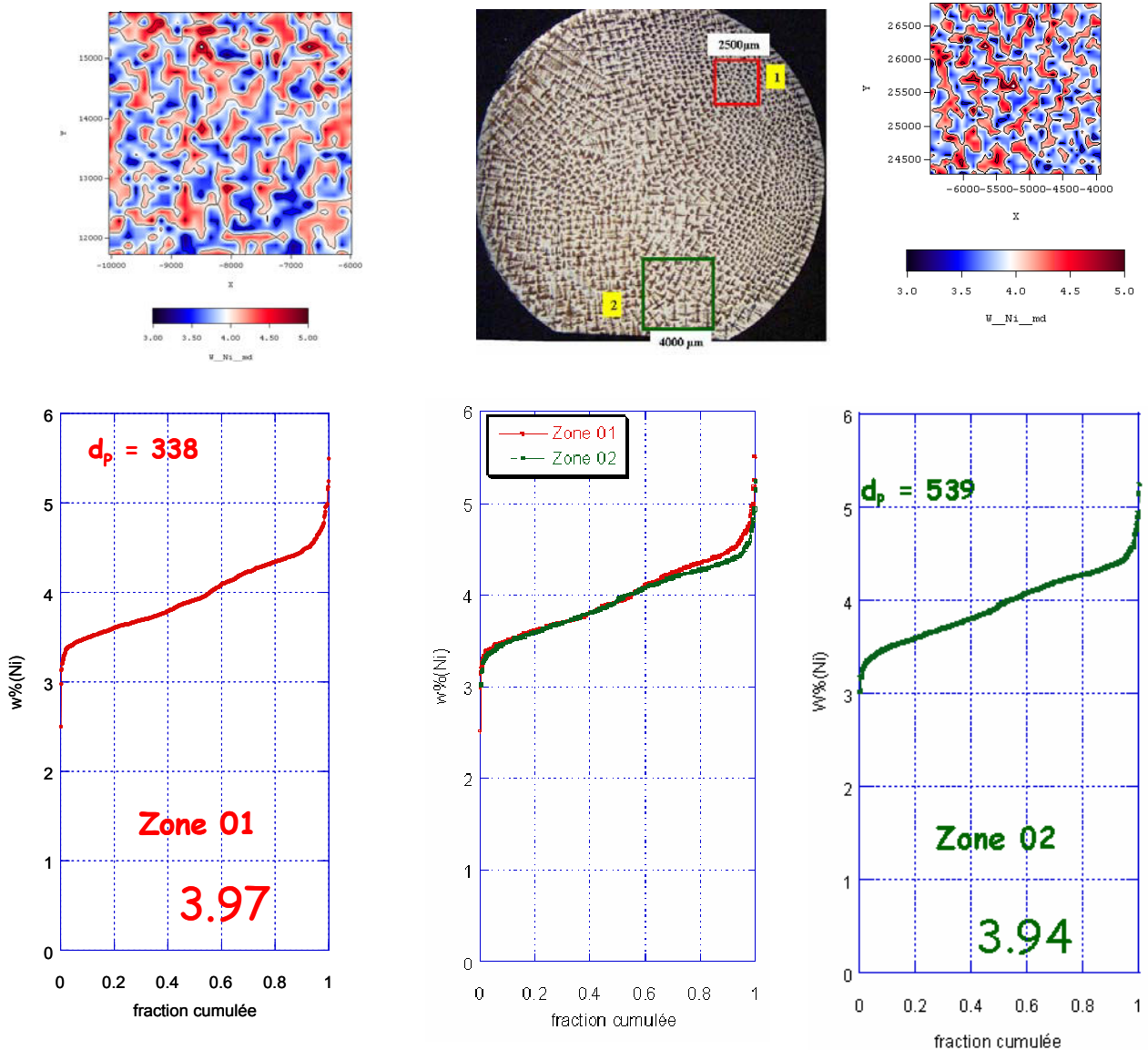


Figure 53 Effet de la position de la zone d'analyse sur la courbe de fractions cumulées

#### IV - 3.1.3. Effet de la distance entre branches primaires

La forte variabilité de taille de la structure, nous a amenés à étudier expérimentalement l'effet de la distance entre branches primaires  $d_p$  sur la microségrégation. Pour ce faire, nous avons sélectionné sur une coupe transversale d'un essai de SD de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C deux zones d'analyses (figure 54) qui correspondent à 7 fois la distance moyenne entre branches primaires pour chaque zone. La taille des deux zones d'analyse est respectivement de 2500  $\mu\text{m}$  et 4000  $\mu\text{m}$  tandis que la valeur de  $d_p$  est de 338 et 539  $\mu\text{m}$  respectivement. La composition moyenne du nickel mesurée sur les deux zones est de 3.97 et 3.94 ce qui permet une comparaison non biaisée de l'intensité de microségrégation entre les deux zones. La comparaison des cartographies chimiques du nickel nous permet d'observer que qualitativement le niveau de ségrégation des deux zones n'est pas affecté par la taille de la structure.

Les deux courbes de fractions cumulées possèdent la même allure et sont quasiment superposables. Notons toutefois, pour la zone 1, de faibles valeurs de composition en nickel au début de la courbe cumulée et des valeurs légèrement supérieures à la fin de la courbe. Étant donné que deux zones ont subi les mêmes conditions expérimentales de vitesse et de gradient thermique, on peut donc affirmer que dans ces conditions expérimentales et dans la plage de valeur de 338 à 539  $\mu\text{m}$ , la courbe de fractions cumulées du nickel est indépendante de taille de la structure, en l'occurrence  $d_p$ .



**Figure 54 effet de la taille de la structure sur la microségrégation (Fe-4%Ni-0,1%C)  
(G = 15 K/cm V=1,2 mm/min)**

La même démarche a été par la suite appliquée pour l'alliage binaire Fe-4%Ni. Là aussi, les courbes de fractions cumulées sont insensibles à la taille de la structure et les courbes se superposent parfaitement.



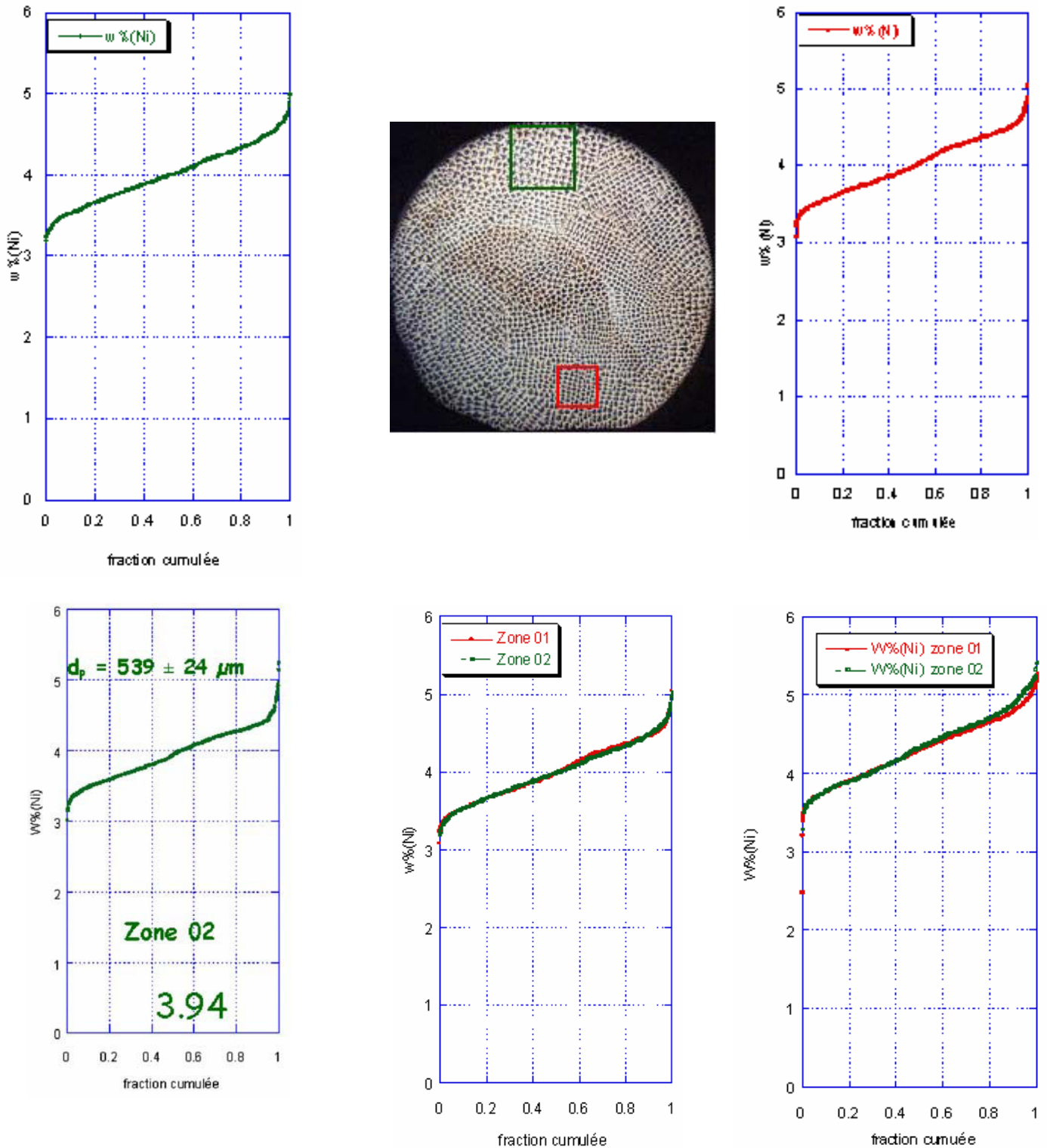


Figure 55 Effet de la taille de la structure sur la microségrégation (Fe-4,23%Ni)  
(G = 15 K/cm V=1,2 mm/min)

L'amplitude de rétrodiffusion dépend du coefficient de rétrodiffusion  $\alpha$  défini selon le modèle de Brody-Flemings comme suit :

$$\alpha = \frac{D t_f}{L^2}$$

Ceci nous amène à penser que la taille de la structure influe sur la microségrégation. Ce qui a comme corollaire une influence de la taille de la structure sur la microségrégation. Seulement les analyses faites sur des tailles de structures entre 338 à 539  $\mu\text{m}$  ne montrent pas d'effets notables sur la microségrégation. Mais est ce que l'effet de la taille n'apparaît pas à de plus grandes distances ? Pour répondre à cette question, nous avons sélectionné une zone dendritique où le  $d_p$  moyen vaut 900  $\mu\text{m}$  sur un autre essai de SD. Ce dernier fut effectué avec la même vitesse de solidification à savoir 2.4 mm/min. La figure 56 montre les courbes de fractions cumulées du nickel pour les trois compositions. Seulement n'ayant pas les mêmes compositions moyennes (3.94, 3.97, et 4,00), nous avons opté pour les courbes relatives de fractions cumulées (figure 56b).

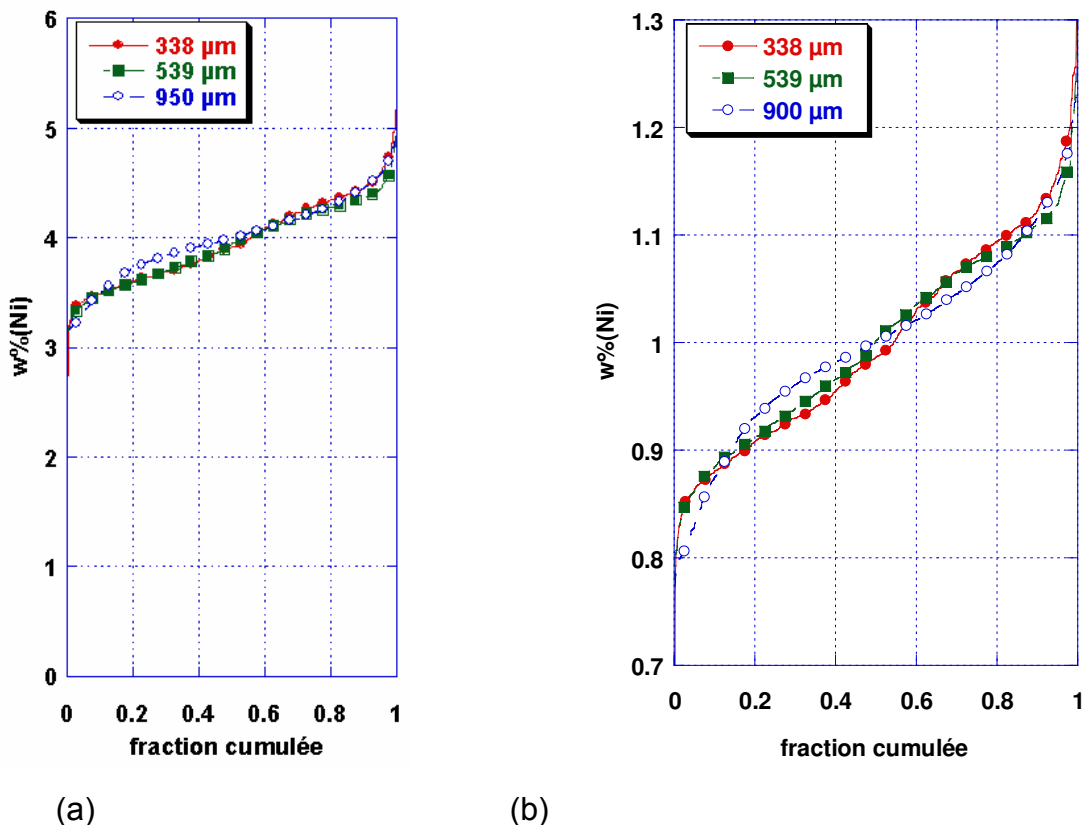


Figure 56 Effet de la taille sur les : (a) courbes de fraction cumulée (b) courbes relatives de fractions cumulées

On peut observer sur la figure 56(b) que la taille de la structure a un net effet sur la forme de la courbe de fractions cumulées entre 539  $\mu\text{m}$  et 900  $\mu\text{m}$  alors qu'on n'observait aucun effet sensible entre 338 et 539  $\mu\text{m}$ . Ce qui laisse à penser qu'il existerait une taille critique  $d_p^*$  à partir de laquelle l'effet de la taille peut jouer sur la forme des courbes de fractions cumulées. Cette valeur critique de  $d_p$  se situe entre 539  $\mu\text{m}$  et 900  $\mu\text{m}$ .

#### IV - 3.1.4. Effet de la nature du premier solide sur la taille de la structure

L'étude de l'influence du premier solide déposé  $\delta$  ou  $\gamma$  sur la microségrégation du nickel a été menée sur deux nuances d'alliages. Les ternaires Fe-4%Ni-0,1%C et

Fe-4%Ni-0,4%C, qui ont respectivement une solidification primaire en ferrite  $\delta$  et austénite  $\gamma$ . Les mêmes conditions expérimentales ont été menées sur les deux nuances d'acier. Le gradient thermique au niveau du liquidus était de l'ordre de 15 K/cm et la vitesse d'extraction de 1,2 mm/min. Les coupes transversales des alliages Fe-4%Ni-0,1%C et Fe-4%Ni-0,4%C sont représentées par les figures 57(a) et 57(b). La coupe transversale de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C a été déjà présentée. L'attaque chimique pour les coupes transversales révèle une structure dendritique très nette. Cependant la nuance à plus fort taux de carbone, celle à 0,4% C possède une taille moyenne  $d_p=840 \mu\text{m}$  supérieure à celle de 0,1%C dont la distance moyenne entre bras primaires vaut  $555 \mu\text{m}$ . L'élévation du taux de carbone semble augmenter la taille de la structure dendritique. Toutefois, en passant de 0,1 %C à 0,4%C on change aussi la nature de la solidification primaire.

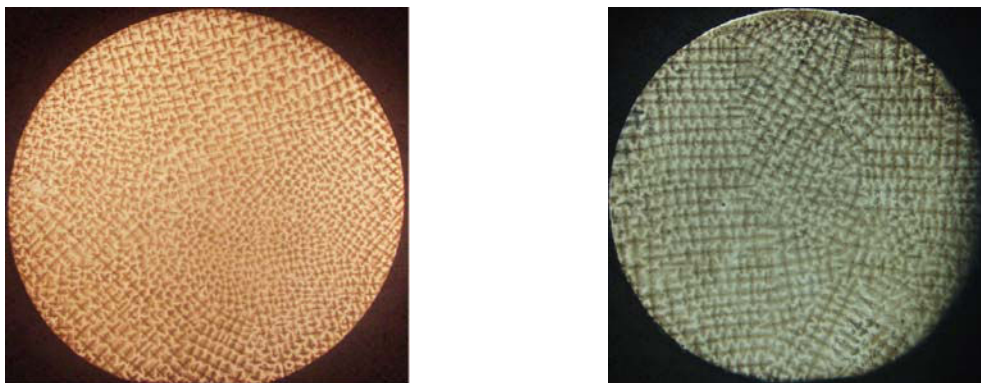


Figure 57 Coupes transversales (a) Fe-4%Ni-0,1%C, (b) Fe-4%Ni-0,4%C  
(G = 15 K/cm V=1,2 mm/min)

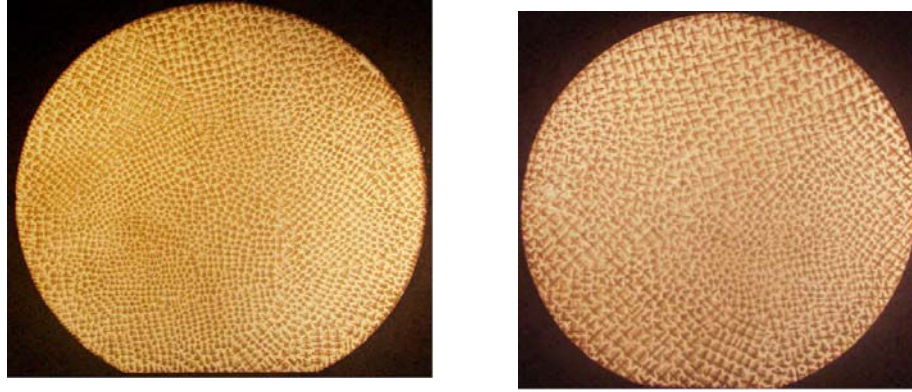
L'effet de pourcentage massique du carbone sur la taille de la structure pour ces deux nuances semble être combiné à la nature du premier solide déposé. La dispersion de la taille caractéristique  $d_p$  observée dans le Fe-4%Ni-0,1%C est moins prononcée avec l'alliage Fe-4Ni-0,4%C.

Influence de la composition

#### IV - 3.1.5. Le système ternaire Fe-Ni-C

##### IV - 3.1.5.1. Effet de la teneur en carbone

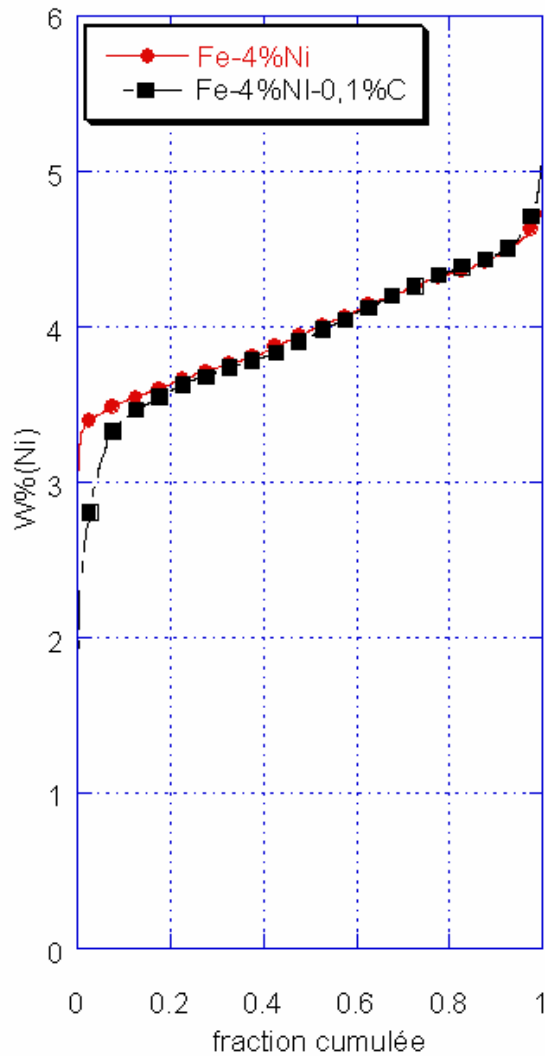
Pour étudier l'effet de la composition chimique sur la microségrégation nous avons d'abord choisi de comparer les courbes cumulées de deux alliages péritectiques. L'alliage binaire Fe-4%Ni et l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0,1%C, Les essais de SD sur les barreaux de ces alliages avaient comme caractéristique technique, un gradient thermique  $G=15 \text{ K/cm}$  et une vitesse de solidification de 1,2 mm/min. les figures 58(a) et 58(b) représentent une coupe transversale de ces barreaux.



bb) (a) cc) (b)

**Figure 58 (a) Coupe transversale (Fe-4%Ni), (b) Coupe transversale (Fe-4%Ni-0,1%C).  
(G = 15 K/cm V=1,2 mm/min)**

Il apparaît clairement, une structure dendritique pour les deux nuances. Toutefois la distance moyenne entre bras dendritique primaire  $d_p$  est de 465  $\mu\text{m}$  pour l'alliage binaire et de 555  $\mu\text{m}$  pour le ternaire. Ce qui laissera penser que le carbone a tendance à augmenter la distance caractéristique  $d_p$ . Notons aussi la dispersion de cette taille sur une section de 20 mm de diamètre pour les deux nuances. Pour pallier le problème d'échantillonnage et de représentativité des mesures. Nous avons analysé à chaque fois 9 zones d'analyse de dimension 1  $\text{mm}^2$  et espacées de 3 mm entre elles, ce qui nous a permis de balayer une zone de 81  $\text{mm}^2$ . Les courbes cumulées du titre du nickel des coupes transversales (figure 58bis) montrent en premier lieu deux courbes de fractions cumulées qui semblent différées de celles prédites par le modèle de GULLIVER-SCHEIL. On observe aussi une ségrégation plus intense pour l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0,1%C au début de la courbe et un peu moins à la fin de la courbe. Ceci laisserait penser que la déplétion du nickel à l'interface ferrite/austénite est plus intense pour l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0,1%C que l'alliage binaire Fe-4%Ni. Mais les deux courbes se superposent entre ces deux extrêmes.



**Figure 58 bis Courbes de fractions cumulées**

#### IV - 3.1.5.2. Effet de la teneur en nickel (à nature de solide primaire identique)

Les alliages binaires, péritectiques, dont nous disposons Fe-4%Ni et Fe-4.23%Ni nous ont permis de voir l'effet de la composition du nickel sur la microségrégation d'un acier péritectique. La figure 59(a) montre la microstructure d'une coupe transversale de l'alliage binaire Fe-4,23%Ni. La taille moyenne de la distance entre bras primaires mesurée vaut 550  $\mu\text{m}$ . Ce qui est du même ordre de grandeur que l'alliage binaire Fe-4%Ni. La figure. La figure 59(b) montre les courbes de fractions cumulées pour les deux alliages péritectiques Fe-4%Ni et Fe-4.23%Ni. On peut remarquer en premier lieu que les deux courbes ont la même allure et l'effet de l'augmentation du titre du nickel n'a fait que traduire la courbe vers le haut. Ceci étant, comme l'aire inscrite sous la courbe de fractions cumulées représente le titre moyen. La translation de la courbe cumulée vers le haut est parfaitement justifiée. Pour étayer notre affirmation précédente, nous avons tracé les deux courbes mais en valeurs relatives. En divisant à chaque fois le titre massique par la valeur moyenne du titre moyen. Cette approche, permet de s'affranchir de la différence de composition moyenne entre les deux nuances. La figure 59(c) montre sans ambiguïté la concordance parfaite entre les courbes

relatives de fractions cumulées. On peut donc affirmer que la variation du titre du nickel entre 4 et 4,23 quoi que minime, n'a pas eu d'effet sur la microségrégation pour cette nuance d'alliage péritectique.

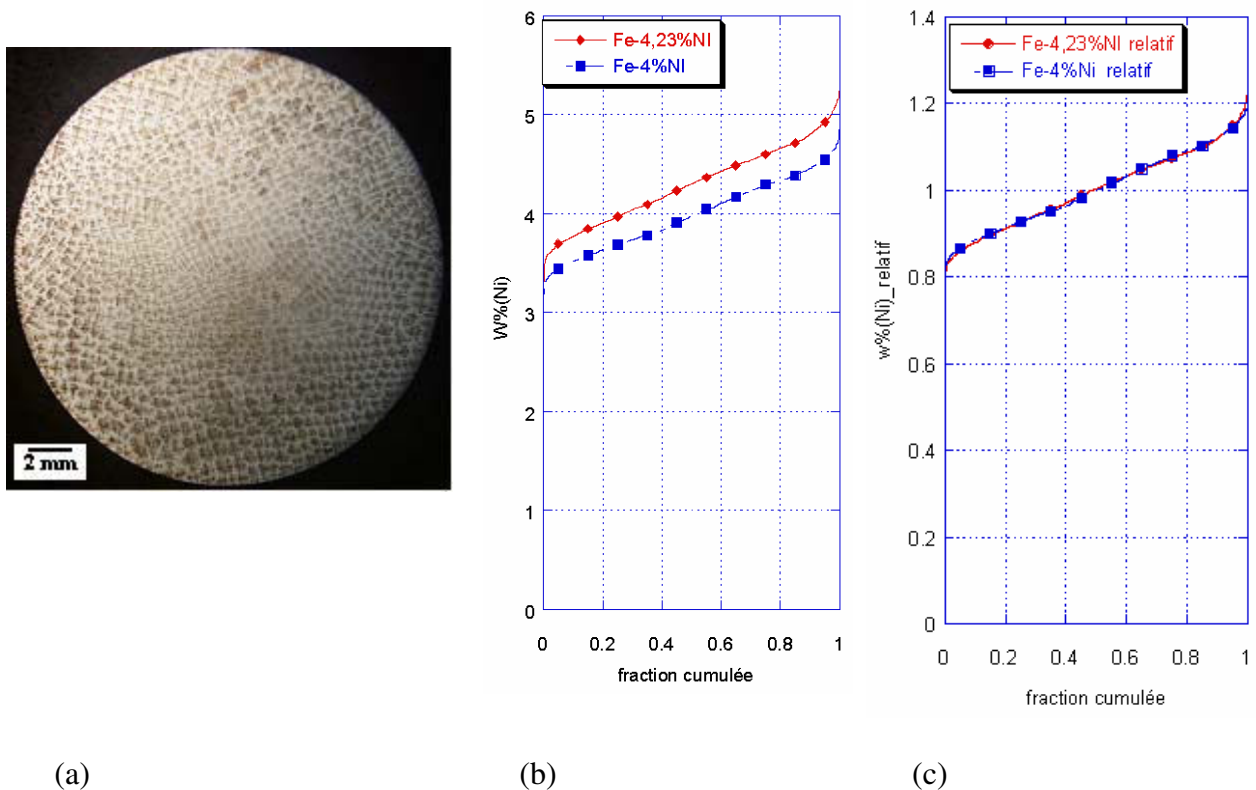


Figure 59(a) coupe transversale, (b) courbes de fractions cumulées et (c) courbe relative des fractions cumulées ( $G = 15 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )

#### Influence de la nature de la solidification

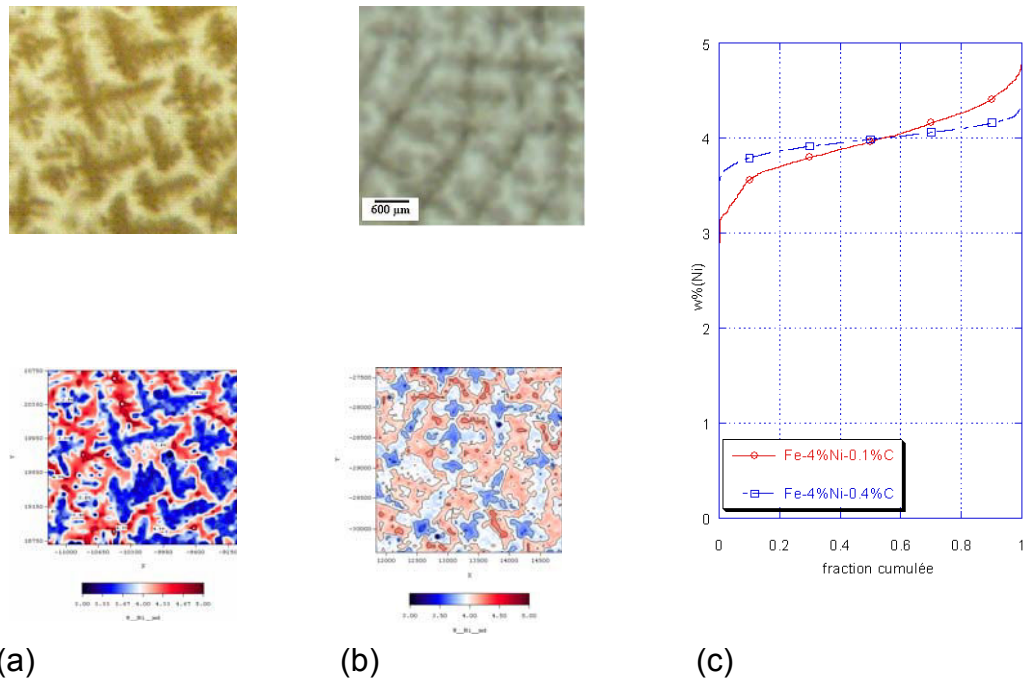
L'effet de la nature de la solidification primaire, semble jouer un rôle important dans la microségrégation du produit final de solidification. Pour ce faire nous avons entamé une série d'essai de solidification dirigée sur des alliages du type Fe-Ni-C pour caractériser la microségrégation du nickel et les Fe-Cr-C pour caractériser la microségrégation du chrome. Ceci étant les nuances ont été choisies de façon à obtenir des solidifications primaires en ferrite  $\delta$  ou en austénite  $\gamma$ .

#### IV - 3.1.6. Effet de la nature du premier solide sur la microségrégation

##### IV - 3.1.6.1. Le système Fe-Ni-C

Pour caractériser la microségrégation chimique du nickel, nous avons sélectionné sur la coupe transversale de chaque nuance une zone représentative dont la dimension est de l'ordre de  $4 d_p$ . Une grille de points d'analyse chimique sur cette zone fut analysée à la microsonde de Castaing avec un pas de mesure de  $50 \mu\text{m}$  entre chaque point d'analyse. La figure 60 montre la cartographie chimique du titre du nickel, établie par interpolation linéaire des points d'analyse de la grille de mesure à l'aide du logiciel Transform®. Sur les deux cartographies chimiques, on

observe une ségrégation du nickel plus intense pour l'alliage ayant une solidification primaire en ferrite  $\delta$  (Fe-4%Ni-0,1%C) (figure 60a) par rapport à celui ayant une solidification primaire en austénite  $\gamma$  (figure 60b). En effet ayant adopté les mêmes échelles (3 à 5%) et le même jeu de couleurs. Bleu (ségrégation négative), blanc (composition nominale), rouge (ségrégation positive), on peut constater aisément la différence de ségrégation entre les deux zones d'analyses. Etant donné que les couleurs sont plus vives pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C et plus douces pour l'alliage Fe-4%Ni-0,4%C.



(a) (b) (c)  
**Figure 60 (a) Cartographie chimique du nickel Fe-4%Ni-0,1%C, ( $G = 15 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ ). (b) Cartographie chimique du Nickel Fe-4%Ni-0,4%C, (c) Courbes de fractions cumulées.**

Pour comparer de manière quantitative l'intensité de la ségrégation dans les deux nuances d'alliages, nous avons tracé les courbes de fractions cumulées à partir des mesures faites à la microsonde. La figure 60(c) montre clairement que les deux courbes de fractions cumulées ont des allures différentes. En effet la ségrégation de l'alliage à 0,4 % de C est nettement plus intense. Ceci peut s'observer facilement sur la figure 60a précédente ou en voit que le cœur des dendrites est plus pauvre et la fin de solidification plus riche pour le Fe-4%Ni-0,4%C par rapport à l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. la pente de l'alliage à 0.4% de C est aussi plus abrupte. Notons enfin que l'allure de ces deux courbes est sensiblement différente de l'allure des courbes prédites par les modèles classiques de microségrégation de type GULLIVER-SCHEIL. On observera aussi un décrochement de la courbe de fraction cumulée pour l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C. On montrera par la suite, grâce aux profils de concentrations sur des coupes transversales que ce décrochement est dû à l'appauvrissement du titre du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$ . De ces deux courbes de fractions cumulées, on peut constater qu'a priori la ségrégation du nickel est plus intense pour l'alliage ayant une solidification primaire en ferrite  $\delta$ .

#### IV - 3.1.6.2. Le système Fe-Cr-C

Dans le système ternaire Fe-Cr-C, les nuances d'acier Fe-1%C-1.5%Cr et Fe-0.16%C-1.5%Cr ont été choisies afin d'étudier l'influence du premier solide déposé. En effet, à composition égale en chrome, l'alliage Fe-1%C-1.5%Cr possède à l'équilibre une solidification primaire en Ferrite ( $\delta$ ) tandis que l'alliage Fe-0.16%C-1.5%Cr possède une solidification primaire en austénite ( $\gamma$ ) à l'état d'équilibre. Deux essais de solidification dirigée avec les mêmes conditions expérimentales ont été réalisées avec les deux nuances précédentes. La vitesse d'extraction a été réglée à 1,2 mm/min et le gradient moyen dans la zone pâteuse estimé à 15 K/cm. Une coupe transversale à une distance de 27 mm du haut du barreau a été faite sur chaque barreau. Les figures 61(a) et 61(b) montrent, après la phase de polissage, des microstructures dendritiques.

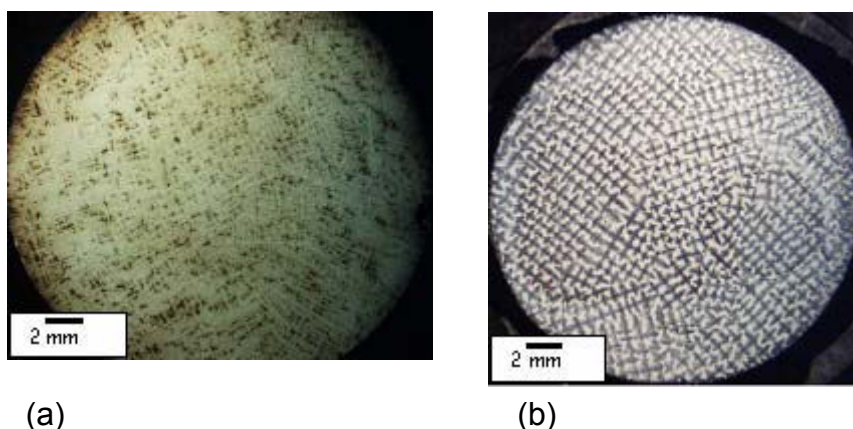


Figure 61 Coupes transversales (a) Fe-1,5%Cr-1%C ((G = 10 K/cm V=1,2 mm/min)  
b) Fe-1,5%Cr-0,16%C (G = 18 K/cm V=1,2 mm/min)

Cependant la structure dendritique est plus nette sur la coupe de l'alliage ternaire Fe-1.5%Cr-0.16%C que celle de l'alliage Fe-1.5%Cr-1%C.

En fait, l'alliage Fe-1.5%Cr-1%C n'est pas vraiment un alliage ternaire, mais contient aussi 0,24% de manganèse et 0.32% de silicium (100C6), de plus les solutions d'attaques sont différentes. Les solutions de OBERHOFFER et de BECHET-BEAUJARD ont été utilisées respectivement pour le Fe-1.5%Cr-0,16%C et le Fe-1.5%Cr-1%C.

Pour comparer l'intensité de la microségrégation sur les deux alliages, nous avons établi les courbes de fractions cumulées et construit les cartographies appropriées pour les deux zones d'analyse.



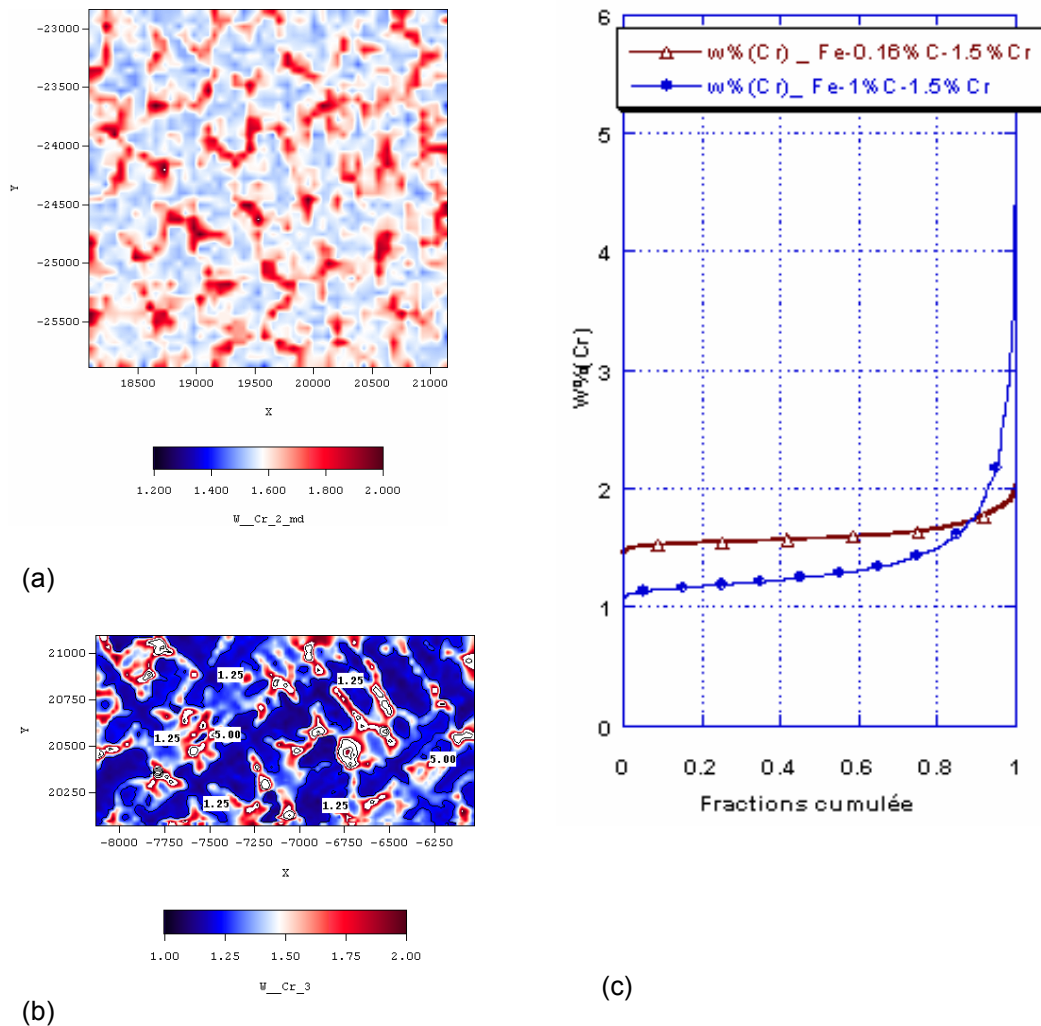


Figure 62 (a) Cartographie du chrome du Fe-1,5%Cr-0,16%C, (b) Cartographie du chrome du Fe-1,5%Cr-1%C, (c) Courbes de fractions cumulées

L'utilisation d'une échelle commune et d'un même jeu de couleurs pour les deux cartographies (figure 62(a) et (b)), nous a permis de voir que l'intensité de la microségrégation en chrome dans les alliages ayant une solidification primaire en  $\delta$  (Fe-1,5%Cr-0,16%C) est moins intense que celle qui possède une solidification primaire en  $\gamma$  (Fe-1,5%Cr-1%C). Cette comparaison étant révélatrice sur la microségrégation mais reste néanmoins qualitative. Pour avoir une information qualitative, nous avons porté sur le graphique de la figure 62(c) les courbes de fractions cumulées à partir de mesures faites sur la microsonde de CASTAING. Là aussi face à une courbe quasi-plate (1,4% à 2%) pour l'alliage ayant une solidification primaire en  $\delta$  (Fe-1,5%Cr-0,16%C), on observe une nette ségrégation pour l'alliage ayant une solidification primaire en  $\gamma$  (1,1% à 4,3%). En effet on observe une nette ségrégation du chrome en fin de solidification et un appauvrissement très marqué du titre du chrome dans le cœur des dendrites par rapport à la composition nominale. Il est à noter que l'allure des courbes, est elle aussi, différente. La solidification primaire en  $\gamma$  induit une courbe de fractions cumulées de type Gulliver-Scheil, alors que celle en  $\delta$  diffère de celle prédite par Gulliver-Scheil. Ceci étant, la solidification primaire en ferrite dans notre cas passe par une réaction péritectique, ce qui pourrait expliquer que la courbe de fractions cumulées associée n'est pas de type Gulliver-Scheil. Pour l'alliage Fe-

1,5%Cr-1%C qui possède une solidification primaire en  $\gamma$ , la forte ségrégation du chrome en fin de solidification est due au fait que cet alliage n'est autre que le 100C6, et la présence d'autres éléments tel que le silicium (0,34%) et le manganèse (0,24%) provoquent la précipitation de carbures et une forte ségrégation en fin de solidification.

Influence de la texture des grains

#### IV - 3.1.7. Fe-Cr-C

Cette partie de notre étude vise à étudier l'effet de la texture sur la microségrégation. Dans un premier temps nous allons comparer la microségrégation du chrome entre une zone colonnaire dendritique et une zone équiaxe globulaire dans un lingot industriel (100C6). Nous allons par la suite comparer, à l'échelle du laboratoire, la microségrégation du nickel dans le cas d'une transition colonnaire/équiaxe.

Sur un lingot industriel de type 100C6, à mi-hauteur du lingot, nous avons sélectionné une bande longitudinale de 30 cm de longueur de façon transversale de manière à mettre en évidence les différentes microstructures qui partent de la paroi vers le cœur du lingot. Cette bande a été ensuite sectionnée en 8 parties que l'on nommera (A, B, C, D, E, F, G, H, I).

Chaque partie fut ensuite polie, puis attaquée métallographiquement par le réactif de "Beachet-Beaujard". La figure (90) montre l'évolution de la structure du bord du lingot vers le cœur. On peut observer l'évolution de la microstructure qui est colonnaire dendritique au bord du lingot et qui évolue par la suite vers une structure globulaire en allant vers la partie centrale du lingot. La taille de la structure varie de  $80\ \mu\text{m}$  entre axe primaire pour la structure colonnaire, et une taille de  $300\ \mu\text{m}$  pour la structure globulaire. Il apparaît aussi hormis la transition colonnaire équiaxe, la présence de carbures et des précipités dans les espaces interdendritiques et qui sont apparus à la fin de la solidification.

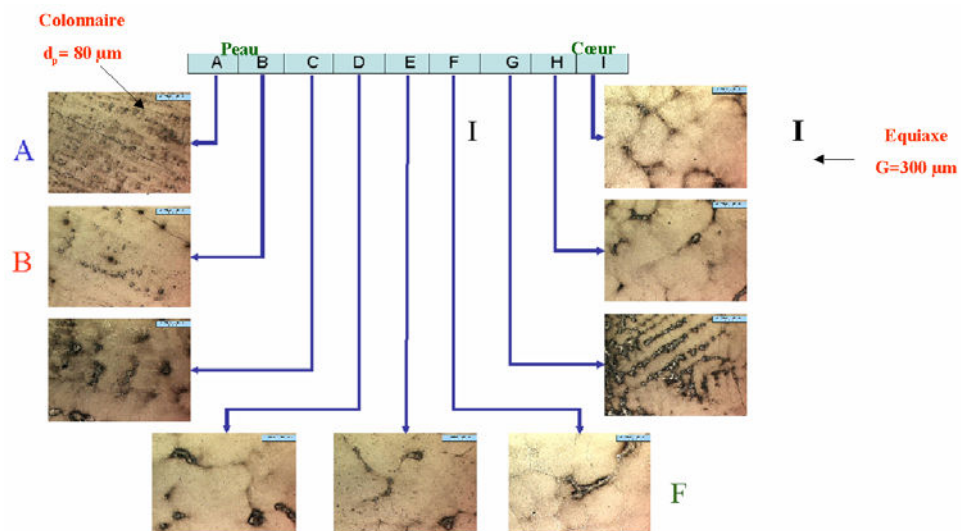
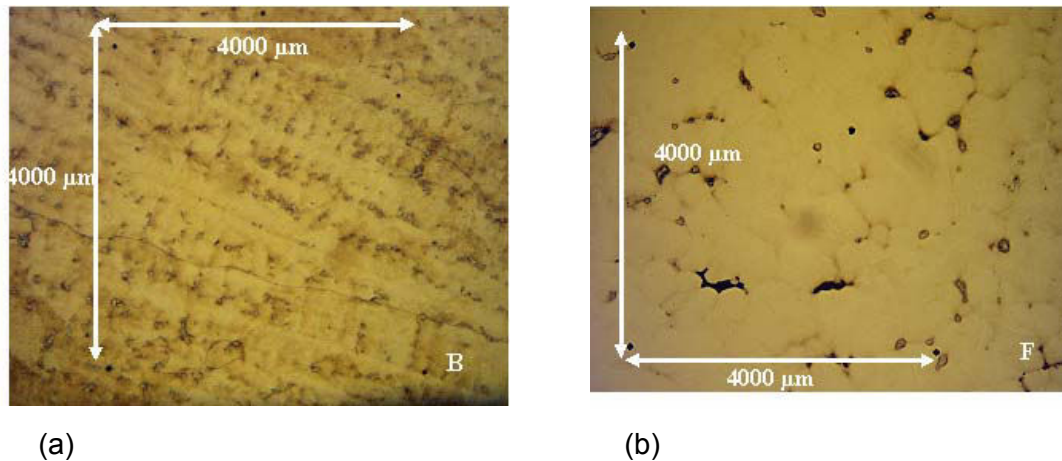


Figure 63 Evolution de la microstructure du bord vers le cœur du lingot.

#### IV - 3.1.7.1. Effet de la texture sur la microségrégation

Pour étudier l'évolution de la microségrégation en fonction de la texture sur les parties sélectionnées précédemment, deux d'entre elles ont été choisies. Ce sont la zone B au bord du lingot et la zone F dans le cœur du lingot (figure 64). Sur ces deux zones B et F, deux zones représentatives de 4 mm \* 4 mm furent sélectionnées, pour les investigations chimiques à la microsonde.



**Figure 64 (a) microstructure colonnaire (b) microstructure globulaire**

#### IV - 3.1.7.2. Cartographie chimique de la teneur en chrome.

Le tableau 10 résume les caractéristiques techniques de mesures effectuées à la microsonde.

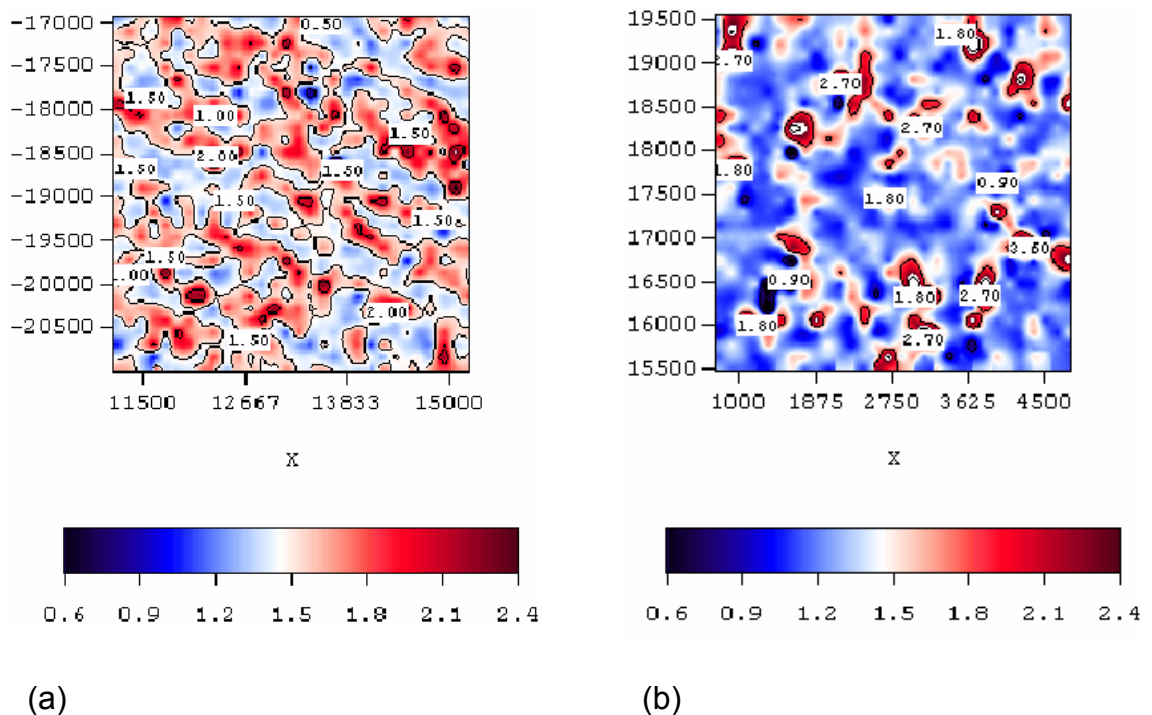
Echantillon	Zone d'analyse (mm)	Surface analysée (mm <sup>2</sup> )	Points	Pas (μm)
B	4 * 4	16	900 (30 * 30)	138 * 138
F	4 * 4	16	900 (30 * 30)	138 * 138

**Tableau 10. Dimension et caractéristiques de la trame des zones analysées**

La figure 65 montre la cartographie du titre du chrome dans les deux zones B et F. la même échelle fut utilisée pour les deux représentations. Pour la structure dendritique colonnaire la cartographie chimique reproduit l'orientation de la structure colonnaire. On notera aussi une ségrégation négative dans le squelette de la structure dendritique et une ségrégation positive à l'intérieur du réseau dendritique. Pour la structure équiaxe globulaire, la cartographie chimique retrace aussi la forme globulaire. On notera dans ce cas une forte ségrégation dans l'espace intergranulaire, qu'on peut observer après attaque chimique.

Cette forte ségrégation dans l'espace intergranulaire est due à une forte ségrégation due à la fin de la solidification et la précipitation de carbures de chrome et de sulfures de manganèse. Idem pour l'espace intragranulaire où on observe une forte ségrégation négative. On peut noter à partir des cartographies chimiques du chrome, l'effet de la texture sur la microségrégation. En effet on

peut observer nettement une ségrégation plus intense au cœur du lingot à structure équiaxe globulaire que celle au bord du lingot à structure dendritique colonnaire.



(a) (b)  
**Figure 65 Cartographie du chrome (a) structure colonnaire, (b) structure équiaxe**

Notons enfin que la composition moyenne du chrome mesurée à la microsonde est de 1,55 % dans la partie B de la zone colonnaire et 1,37% dans la partie F de la zone globulaire. Ceci est nettement visible sur les cartographies chimiques, où on peut observer une prédominance de la couleur rouge pour la partie colonnaire et de la couleur bleu pour la partie globulaire.

#### IV - 3.1.7.3. Courbes de fractions cumulées du chrome

Pour étudier de façon plus fine la microségrégation, les courbes de fractions cumulées ont été établies à partir des mesures ponctuelles faites à la microsonde. La figure 66 montre la superposition de la courbe des fractions cumulées du chrome de la zone B, de structure dendritique et celle de la zone F, de structure équiaxe/globulaire. Malgré une différence entre la composition moyenne du chrome entre les deux courbes 1,55% pour la zone B et 1,37% pour la zone F, on notera une ségrégation plus intense au début et à la fin de la courbe des courbes de fractions cumulées que nous assimilerons au début et à la fin de la solidification où on peut noter des valeurs très fortes entre 3 et 5,5% en fin de solidification et de faibles valeurs au début de la solidification entre 0,5 et 1% de chrome. Pour s'affranchir de la différence entre la composition moyenne des deux parties analysées dans la structure colonnaire et celle qui est globulaire, chaque composition du chrome a été divisée par la composition moyenne de chaque zone dans le but d'établir des courbes relatives de fractions de fractions cumulées. Les deux courbes ainsi établies confirment les observations précédentes sur la forte ségrégation du chrome observée dans la structure

globulaire par rapport à la structure colonnaire. Les fortes valeurs du chrome observées en fin de solidification dans la zone F peuvent être expliquées par une fin de solidification qui présente une précipitation de carbures de chrome et de sulfures de manganèse. Il faut aussi se rappeler que les conditions thermiques de gradient thermique, de vitesse de solidification ou de flux convectif de la matière au cours de la solidification ne sont pas identiques entre les deux zones analysées.

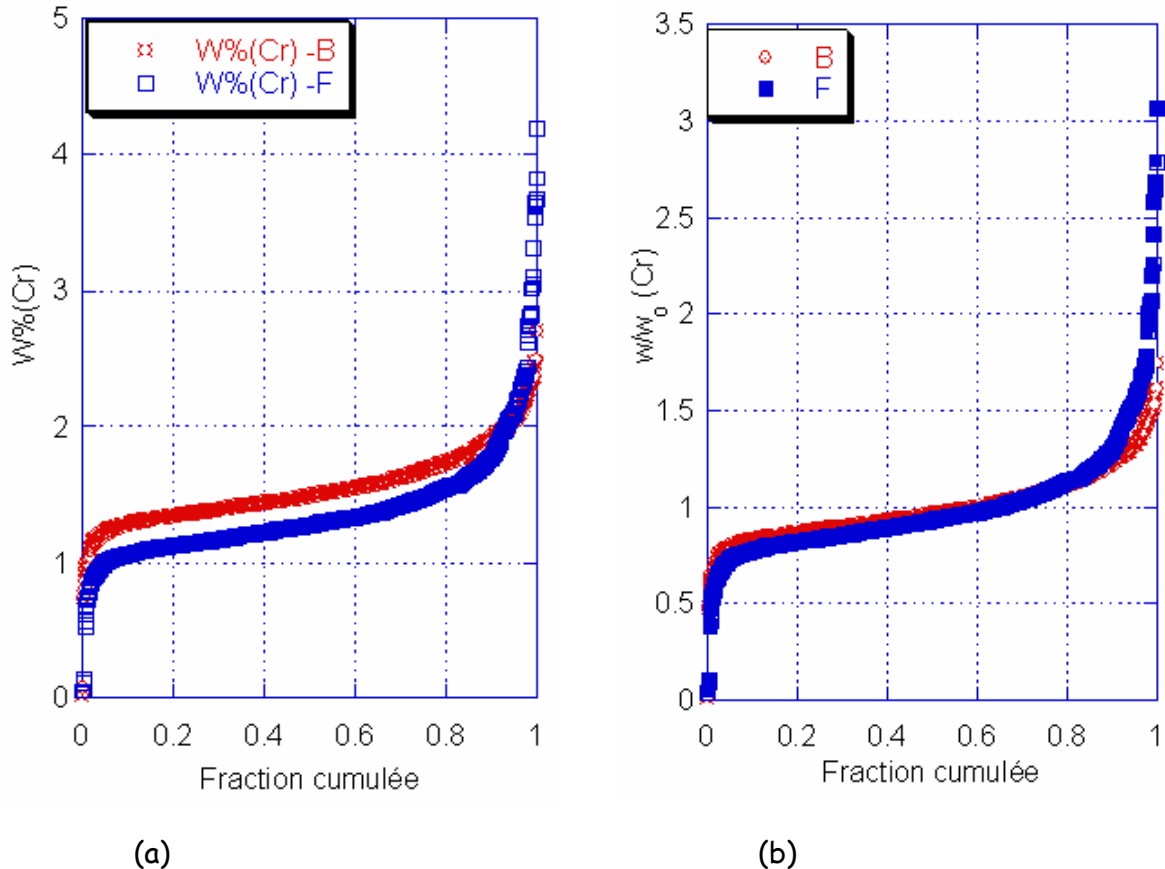


Figure 66 (a) Courbes de fractions cumulées du chrome (b) courbes de fractions cumulées relatives du chrome.

#### IV - 3.1.7.4. Indice de microségrégation

On peut aussi estimer l'intensité de la microségrégation par l'indice de microségrégation. Ce dernier est le rapport du titre maximal sur le titre minimal. Le tableau 11 résume l'intensité de la microségrégation sur nos deux zones d'analyses : colonnaire (B) et globulaire (F).

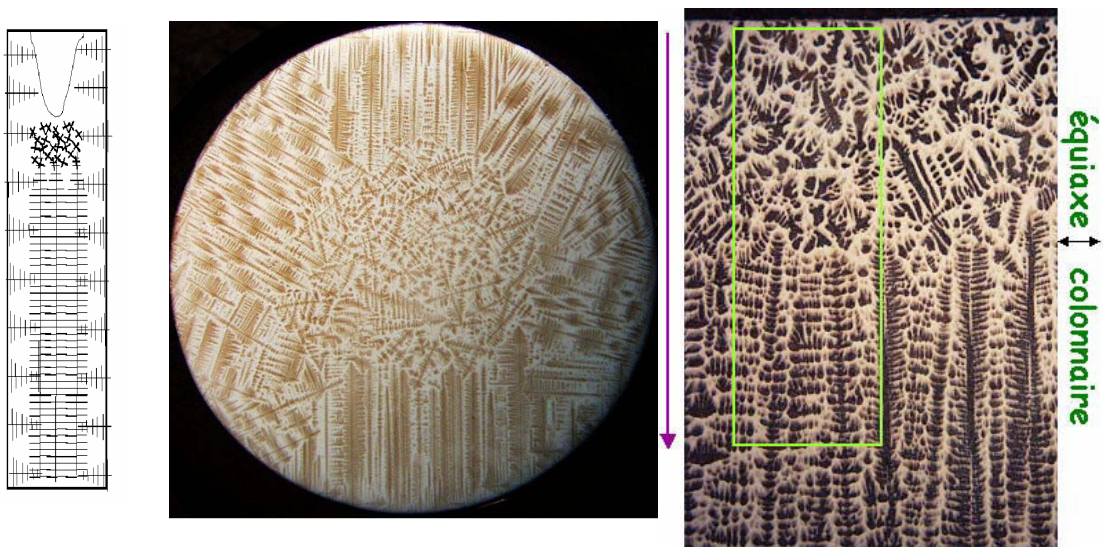
Echantillon	w% max	w% min	Indice de ségrégation
B (Cr)	2,06	1,34	1,54
F (Cr)	2,30	1,05	2,19

Tableau 11 Indice de microségrégation

Ces résultats montrent quantitativement, d'une façon claire, que la structure équiaxe globulaire est nettement plus ségrégée que la structure dendritique colonnaire.

#### IV - 3.1.8. Fe-Ni-C

L'alliage étudié est le Fe-4%Ni-0.1%C. C'est un alliage ternaire péritectique. Pour étudier à l'échelle du laboratoire l'influence de la texture sur la microségrégation, nous avons mené un essai de solidification dirigée sur des barreaux de 20 mm de diamètre. Pour reproduire à l'échelle du laboratoire la transition colonnaire/équiaxe, le processus de chauffage par induction a été interrompu à la moitié de l'extraction du barreau. La (figure 67) montre le schéma de la structure du barreau à la fin de l'expérimentation. En haut du barreau, on peut observer une zone dendritique équiaxe au centre du barreau et en dessous de la retassure. On notera aussi deux vues différentes de la transition équiaxe/colonnaire et ceci sur deux coupes. Une coupe transversale et une autre longitudinale.



**Figure 67 transition colonnaire/équiaxe (a) schéma de la microstructure (b) coupe transversale (c) coupe longitudinale ( $G = 10 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )**

Pour étudier la microségrégation au cours de la transition colonnaire/équiaxe, nous nous intéresserons à la coupe longitudinale. Le profil de composition moyenne du nickel établi sur une coupe longitudinale montre une composition moyenne de l'ordre de 3,8% dans la zone équiaxe dendritique. Dans la zone dendritique colonnaire elle avoisine les 4.2%. On notera donc que la zone colonnaire à une composition moyenne plus élevée que la zone équiaxe. Ce dernier résultat confirme aussi celui trouvé pour le chrome dans le lingot du 100C6 où on a observé aussi une composition moyenne plus riche dans la zone colonnaire que dans la zone équiaxe. Qualitativement la cartographie chimique montre aussi la même tendance sur la coupe longitudinale.

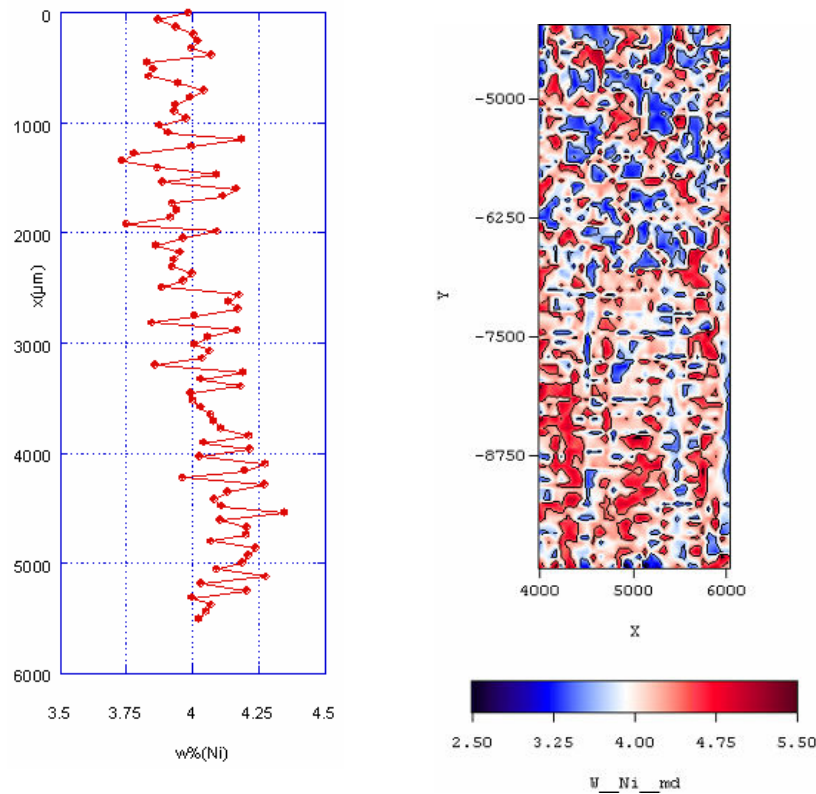
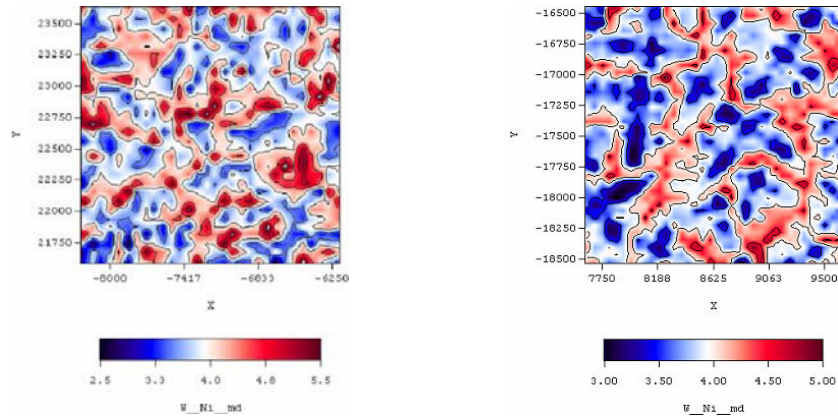


Figure 68 (a) évolution de la composition moyenne du nickel (b) cartographie du nickel

#### IV - 3.1.8.1. Cartographie chimique

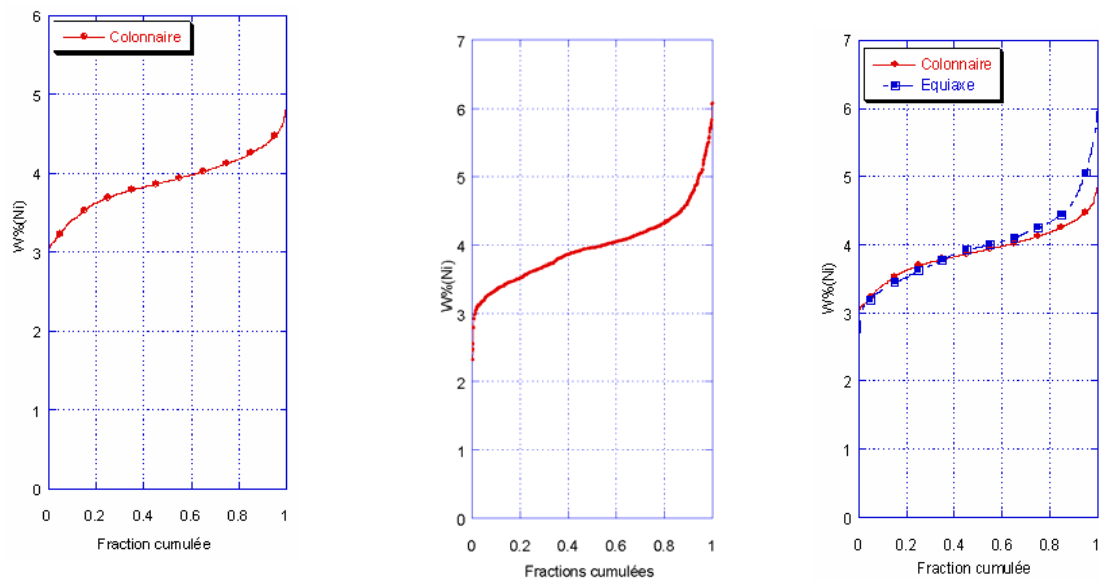
Pour établir l'effet de la texture sur la microségrégation, nous avons sélectionné deux coupes transversales. L'une dans la zone colonnaire/équiaxe et l'autre dans la zone équiaxe/dendritique. Sur ces deux coupes transversales, deux fenêtres d'analyse de 2 mm \*2 mm furent choisies. Avec les deux trames des points d'analyse de la composition du titre du nickel, nous avons reproduit la cartographie du titre du nickel dans les deux structures. La cartographie chimique reproduit la texture des microstructures. On peut observer une structure équiaxe (figure 69a) et une très nette structure dendritique sur la deuxième cartographie (figure 69b). On peut aussi observer de manière qualitative sur la structure colonnaire dendritique des zones ségrégées négativement qui se retrouvent au centre des axes primaires et sur les branches secondaires, tandis que les zones ségrégées négativement dans la structure équiaxe possèdent une composition relativement plus forte bien que la composition moyenne du nickel dans la structure équiaxe (3.8%) soit légèrement inférieure que celle de la structure colonnaire (4.2%), la structure équiaxe a une ségrégation négative plus intense que la structure colonnaire.



(a) (b)  
**Figure 69 Cartographie du nickel (a) structure colonnaire (b) structure équiaxe**

#### IV - 3.1.8.2. Courbes de fractions cumulées du nickel

Toujours dans la même démarche expérimentale et pour quantifier de façon plus fine la microségrégation, nous avons construit pour chaque zone d'analyse la courbe de fraction cumulée (figure 70). Pour la structure colonnaire, la courbe de fractions cumulées montre un changement de pente au niveau de 0,2 de fraction cumulée et la fin de solidification ne montre pas une forte ségrégation. La courbe de la structure équiaxe dendritique par contre présente un changement de pente moins marqué qui se situe à 0,4 en fractions cumulées. La fin de solidification présente une nette ségrégation par rapport à la structure colonnaire et la forme de la courbe se rapproche d'une courbe de type Gulliver-Scheil. Le début de la courbe aussi présente de très faibles valeurs, sans doute dues à une rémanence de l'appauvrissement du nickel à l'interface ferrite/austénite au cours de la réaction péritectique.



**Figure 70 courbes de fractions cumulées (a) structure colonnaire, (b) structure équiaxe, (c) superposition des deux courbes**



De notre investigation sur le rôle de la texture sur la microségrégation à l'échelle du laboratoire, on peut noter les quelques remarques suivantes:

La composition moyenne du nickel est légèrement supérieure dans la zone colonnaire par rapport à la zone équiaxe

La microségrégation du nickel est plus intense dans la structure équiaxe que dans la structure colonnaire.

La réaction péritectique favorise la ségrégation du nickel dans la structure dendritique colonnaire et semble être sans effet sur la ségrégation du nickel dans le cas de structure équiaxe.

La fin de solidification engendre de fortes ségrégations du nickel dans une structure équiaxe dendritique dans le cas de l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C.

#### **IV - 4. SYNTHÈSE**

Les principaux résultats présentés dans ce chapitre sont résumés ci-dessous :

En établissant la cartographie de la microstructure qui représente la variation de la microstructure en fonction de  $G$ ,  $V$  et la composition chimique, on a pu montrer que la nature du front de solidification dépendait des paramètres  $G, V$  et de la composition chimique. Nous avons aussi montré que la nature du premier solide déposé peut changer avec la vitesse de solidification. Dans le cas de l'alliage Fe-4%Ni-0.1%C, on a pu voir se déposer de l'austénite au lieu de la ferrite en augmentant la vitesse d'extraction lors de l'essai de TSD.

Grâce aux coupes transversales et longitudinales, nous avons montré la forte variabilité des valeurs de  $d_p$  et  $d_s$ , et ceci sur des échantillons de 20 mm de diamètre. Ceci conforte notre approche de déterminer d'abord une distance caractéristique. L'utilisation de la technique des variogrammes sur les images en niveaux de gris des microstructures nous a permis de déterminer une distance caractéristique pour chaque nuance d'acier. La stabilité des courbes de fractions cumulées sur différentes zones analysées qui ont cette taille caractéristique montre l'utilité de cette approche.

Nous avons aussi montré expérimentalement que la taille de la microstructure influe à partir d'une taille caractéristique sur la forme de la courbe de fractions cumulées. Ceci s'explique par l'influence de la taille caractéristique sur le coefficient de rétrodiffusion.

Nos analyses sur des barreaux de SD nous ont permis de montrer l'influence du carbone sur la ségrégation du nickel. En effet, l'addition de 0.1% de carbone à un alliage Fe-4%Ni augmente la ségrégation du nickel en accentuant la déplétion du nickel lors de la transformation péritectique. Pour la ségrégation du nickel, nous avons mis en évidence que le passage d'une nuance de Fe-0.16%C-1.5%Cr à une nuance de Fe-1%C-1.5%Cr, non seulement change radicalement la forme de la courbe des fractions cumulées, mais augmente sensiblement la ségrégation du

chrome. La présence de la réaction péritectique dans l'acier à 0.16 % de carbone a fortement atténué la ségrégation du chrome.

Sur 2 alliages, Fe-4%Ni-0.1%C et Fe-4%Ni-0.4%C, et à partir d'essais sur des barreaux de SD, nous avons pu montrer l'influence de la nature du premier solide déposé. Nous avons pu établir qu'une solidification primaire en ferrite induit une plus forte ségrégation du nickel qu'une solidification primaire en austénite.

L'effet de la texture des grains sur la microségrégation a été aussi exploré. Nous avons pu montrer que la ségrégation du chrome est plus intense au cœur du lingot à structure équiaxe globulaire que celle au bord du lingot à structure dendritique colonnaire. Nous avons aussi confirmé ce résultat, en constatant aussi, sur des barreaux de SD, que la ségrégation du nickel est plus intense dans une structure équiaxe que dans une structure colonnaire.



# ***Chapitre V***

## ***Formation de la microségrégation***



## V - FORMATION DE LA MICROSEGREGATION

### V - 1. FORMATION DE LA MICROSEGREGATION DU NICKEL

Solidification primaire en  $\delta$

#### V - 1.1.1. Alliage Fe-4%Ni

L'alliage binaire Fe-Ni a la particularité de présenter un palier péricectique, et d'être dénué de transformations à l'état solide à haute température.

Ce qui aurait pu occulter les phénomènes à étudier. Les alliages binaires étudiés avaient la composition suivante : Fe-4.23 %Ni (alliage 01) et Fe-4%Ni (alliage 02)

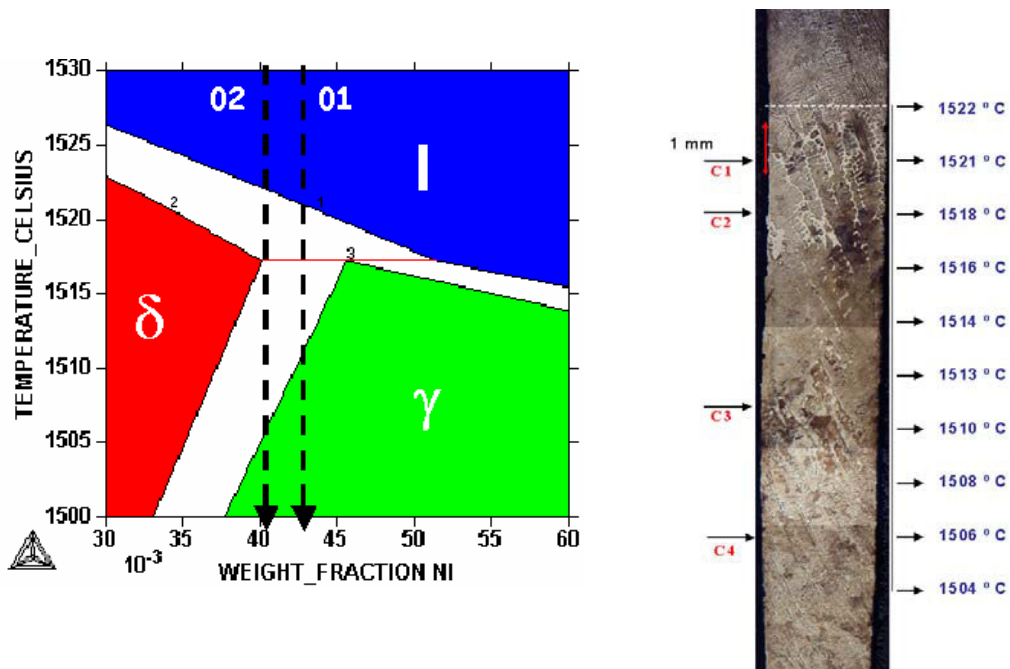


Figure 71 (a) Diagramme d'équilibre Fe-Ni (b) Coupe longitudinale d'un barreau de Fe-4%Ni après un essai de TSD (G = 13 K/cm V=1,2 mm/min)

Pour d'expliquer la genèse de la formation des courbes de fractions cumulées nous avons effectué un essai de trempe en cours de solidification (TSD) sur un barreau de l'alliage Fe-4%Ni. Ceci permet de voir l'évolution de la microstructure et de la microsegrégation au cours de la solidification. Pour ce faire, nous avons effectué un essai de TSD avec une vitesse d'extraction de 1.2 mm/min et un gradient moyen au niveau du liquidus de l'ordre de 15 K/cm.

#### V - 1.1.1.1. Evolution de la microstructure

Le barreau est d'abord poli sur une coupe longitudinale puis attaqué chimiquement (figure 71b). Le champ de température est ensuite identifié sur notre barreau et ceci grâce à notre courbe de refroidissement  $T = f(x)$ . Par la suite nous avons entamé une série de coupes transversales sur notre barreau à différentes étapes de la solidification. Sur les coupes transversales nous avons d'abord quantifié par analyse d'images le taux de chaque phase sur chaque coupe et ceci en se basant sur un seuillage différentiel du niveau de gris. Pour caractériser la microsegrégation, nous avons sélectionné une zone d'analyse de

2 \*2 mm, sur laquelle nous avons mesuré la composition de 1600 points répartis sur une grille de 40 \*40 points, soit un point de mesure chaque 50 µm environ. Une cartographie de la répartition spatiale du nickel et une courbe de fractions cumulées ont été ensuite établies sur chaque coupe. La figure 72 représente 4 coupes transversales :

(C1) à 1521° C : A cette température on est dans le domaine biphasé (l + δ). La micrographie laisse apparaître une structure dendritique ferritique et du liquide interdendritique en clair. Cette distinction nette entre les deux phases est due au réactif chimique d'Oberhoffer. En effet ce réactif colorie en clair les zones riches en soluté et les zones pauvres en sombre. Notre alliage qui a 4% de Ni contient aussi 250 ppm de phosphore. Le phosphore est un élément alphagène alors que le nickel est lui un élément gammagène. Seulement le phosphore est un excellent marqueur ses coefficients de partage sont plus faibles que ceux du nickel comme le montre le tableau ci- dessous :

	$k^{\delta/L}$	$k^{\gamma/L}$	$k^{\gamma/\delta}$
Ni	0,80	0.90	1,23
P	0,23	0,13	0,57

**Tableau 12 Coefficients de partage du nickel et du phosphore**

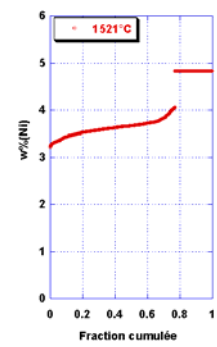
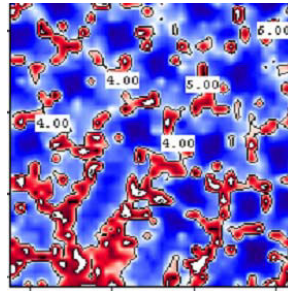
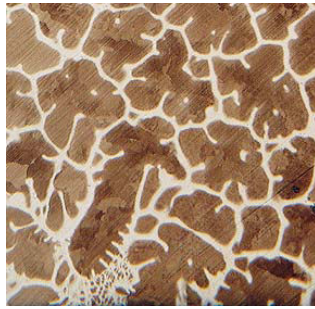
De ce fait l'attaque métallographique montre dans ce cas la ségrégation du phosphore et occulte celle du nickel. Cependant contrairement au phosphore, le nickel peut être mesuré plus facilement à la microsonde et la ségrégation du nickel peut être mise en évidence par la cartographie chimique.

(C2) à 1518° C : A cette température la réaction péritectique est mise en évidence sur cette coupe transversale. On peut observer la présence de trois phases le liquide, la ferrite et l'austénite. On peut aussi voir sur cette coupe métallographique que l'austénite est moins riche en soluté que la ferrite. Ceci prouve que cette attaque a mis en évidence la ségrégation du phosphore. La cartographie associée du nickel montre par contre un enrichissement du nickel dans l'austénite par rapport à la ferrite. Ceci est prévisible vu le coefficient de partage du nickel entre la ferrite et l'austénite. La courbe de fractions cumulées par contre prend une forme caractéristique et change radicalement de forme et présente un net changement de pente à environ 0,5 en fraction cumulée ce qui correspond à la valeur du taux surfacique de ferrite mesurée par analyse d'images.

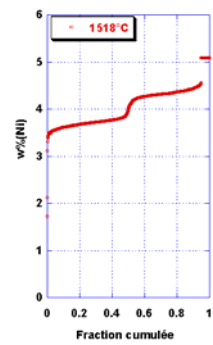
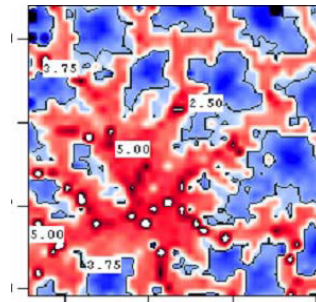
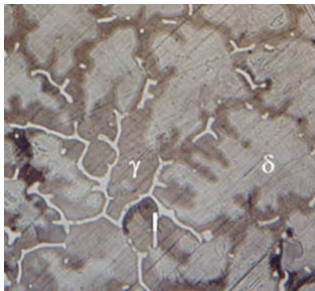
(C3) à 1512° C : On observe à cette température une auréole blanche autour de la ferrite, signe d'un enrichissement de la ferrite à l'interface ferrite/austénite. Cet enrichissement est dû au phosphore qui est alphagène. Le nickel par contre est gammagène, il induit donc un effet inverse à savoir un appauvrissement du nickel dans la ferrite à l'interface ferrite/austénite. La ségrégation du nickel est occultée métallographiquement par celle du phosphore qui est un très fort marqueur. La courbe de fraction cumulée associée à cette température prend une forme rectiligne à la fin de la solidification. On notera aussi une légère accentuation des faibles valeurs de nickel au début de la courbe.

(C3) à 1506° C : Cette dernière coupe montre l'évolution de l'enrichissement de la ferrite en phosphore à l'interface. En fait, cette interface tout en s'enrichissant se déplace vers le cœur de la dendrite alors que l'austénite qui provient de la transformation solide ferrite/austénite s'appauvrit en nickel. La cartographie chimique du nickel montre sans surprise un effet inverse pour le nickel. On peut voir un enrichissement de l'austénite qui croit aux dépens de la ferrite et un appauvrissement de la ferrite résiduelle. En fait, cette ferrite qu'on voit n'est que la rétraction de la ferrite qui se contracte vers le cœur de la

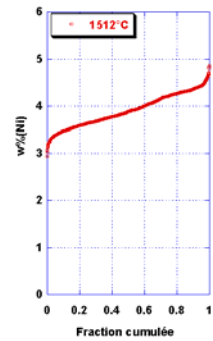
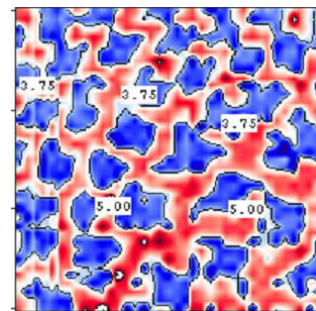
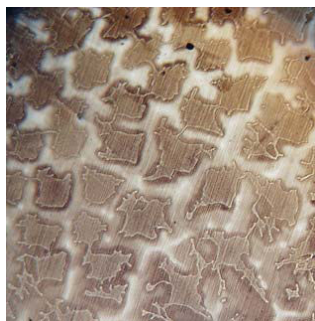
dendrite. Seulement le maillage n'est pas assez fin pour montrer cela. La courbe cumulée tracée dans cette analyse semble identique à la précédente.



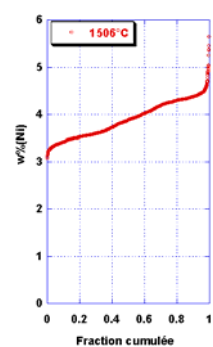
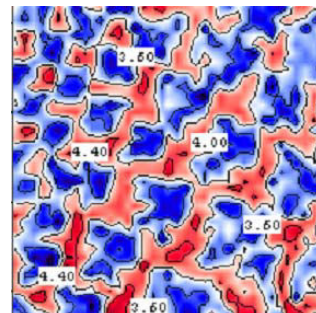
1521°C



1518°C



1512°C



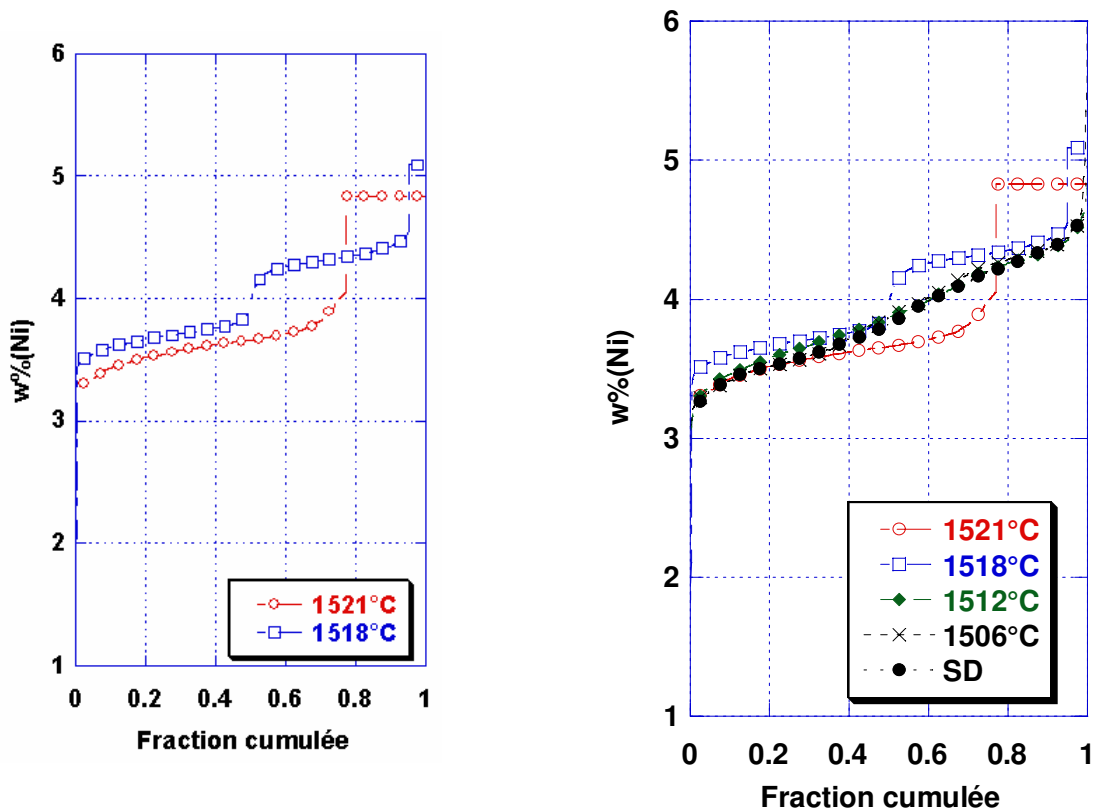
1506°C

Figure 72 Evolutions au cours de la solidification de la microstructure, de la répartition du nickel et de la courbe de fractions cumulées.



### V - 1.1.1.2. Evolution de la microségrégation du nickel

Les courbes de fractions cumulées établies sur les coupes C1 et C2 montrent une allure différente. En effet avant la réaction péritectique (C1) la courbe de fractions cumulées montre deux zones distinctes qui correspondent bien à la ferrite et au liquide. Les valeurs du titre du nickel de la partie de la courbe de fractions cumulées correspondant à la partie liquide ont été moyennées, ceci pour éviter de comptabiliser la ségrégation du nickel dans le liquide trempé. Le liquide par contre est le plus riche en soluté. Ceci est observé sur la coupe métallographique et sur la cartographie chimique. On notera aussi l'apparition de faibles valeurs de nickel au début de la courbe.



(a)

(b)

Figure 73 (a) évolution de la microségrégation (a) au cours de la réaction péritectique, (b) au cours de la solidification

La courbe de fractions cumulées au cours de la réaction péritectique (C2) montre clairement trois zones. Les taux de phase de la ferrite, de l'austénite et du liquide mesurés sur la coupe C2 ont été reportés sur la courbe de fractions cumulées. On peut constater que les valeurs de ces taux de phases correspondent aux valeurs des fractions cumulées. On notera aussi un enrichissement de la ferrite au cours de la réaction péritectique et l'apparition d'une portion très pauvre en soluté au début de la courbe. On essaiera par la suite, en traçant des profils de concentration d'expliquer cet appauvrissement en nickel.

L'établissement des courbes cumulées au cours de la solidification montre bien l'utilité des essais de TSD pour expliquer les courbes cumulées établies sur des bruts de solidification. En effet on constate une superposition de la courbe des

fractions cumulées issue de la solidification dirigée avec celle de la fin de solidification pour les essais de TSD. On notera aussi qu'à partir de la fin de la solidification, les courbes cumulées ne changent pas de forme et gardent les mêmes valeurs. Ceci conduit à penser que la ségrégation est induite au cours de la solidification et que les transformations de phase à l'état solide ne participent pas à la microségrégation.

V - 1.1.2. Alliage Fe-4%Ni-0,1%C

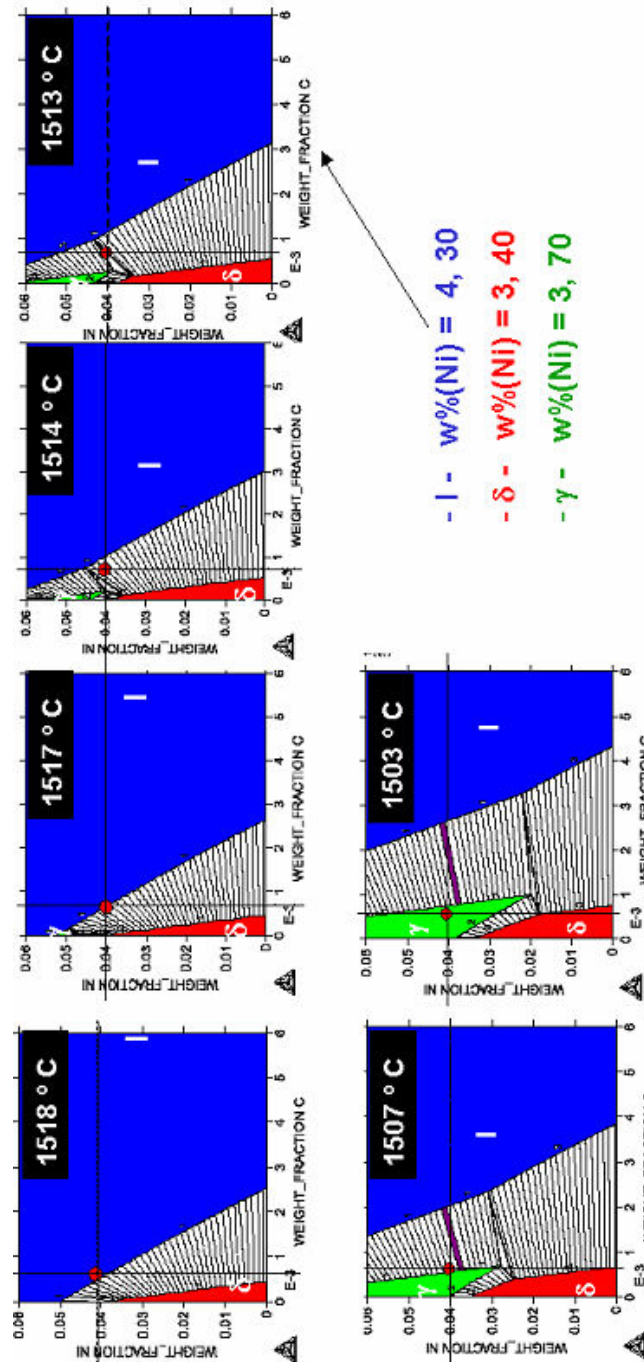


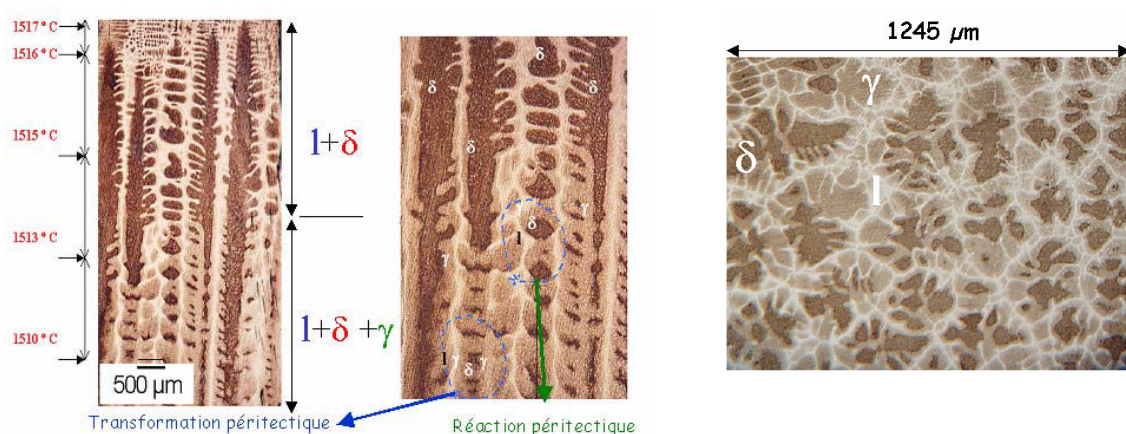
Figure 74 Coupes isothermes du diagramme ternaire Fe-Ni-C au cours de la solidification

Après avoir effectué des essais sur un alliage binaire péritectique Fe-4%Ni, nous avons entamé l'étude d'alliages ternaires péritectiques de composition Fe-4%Ni-

0.069%C (P) (alliage 03) et Fe-4%Ni-0.072%C (alliage 04). Nous avons représenté grâce à la base de donnée FEDAT du logiciel Thermo-Calc des coupes isothermes du diagramme ternaires Fe-Ni-C (figure 74) où nous avons superposé notre composition initiale, le titre massique de carbone allant de 0 à 0.6 % et celui du nickel de 0 à 6 %. Le chemin théorique de solidification ainsi établi permet d'avoir en premier lieu l'évolution de la composition du titre du nickel à l'équilibre dans chaque phase au cours de la solidification. On peut aussi vérifier que la composition de nos alliages ternaires présente bien une réaction péritectique à 1513 °C où coexistent trois phases en équilibre (liquide, ferrite, austénite).

#### V - 1.1.2.1. Essai de TSD

Un premier essai de TSD sur l'alliage a été effectué sur l'alliage 03, avec une vitesse de 1.2 mm/min et un gradient moyen au niveau du liquidus de 13 K/mm. La figure 75 (a) montre après polissage et attaque chimique une coupe longitudinale de notre barreau. Nous pouvons observer tout d'abord un front de solidification dendritique. Cette figure montre clairement la séquence de solidification, à savoir une solidification primaire en (Liquide + Ferrite) suivie d'une réaction péritectique (Liquide + Ferrite + Austénite). On peut observer aussi la formation d'une couche d'austénite autour de la ferrite formant ainsi une barrière entre le liquide et la ferrite. L'austénite continue après de croître simultanément aux dépens de la ferrite et du liquide (transformation péritectique). L'appauvrissement de l'interface  $\delta/\gamma$  est aussi mis en évidence le long de la coupe longitudinale où on observe une bande noire à l'interface  $\delta/\gamma$ . La coupe transversale figure 75 (b) au niveau de la température de 1515°C montre clairement la présence de la réaction péritectique. Une quantification du taux de phase sur chaque coupe nous a permis de tracer la courbe température en fonction du taux de phases. Cet alliage péritectique présente un faible intervalle de solidification (10 °C) ce qui rend difficile d'avoir une très grande précision sur la température. L'incertitude sur la température a été estimée à  $\pm 3$  °C. Pour le calcul du taux de phase, l'incertitude a été estimée à  $\pm 5$  %, ceci est dû aux artefacts de l'attaque chimique et au seuillage manuel.



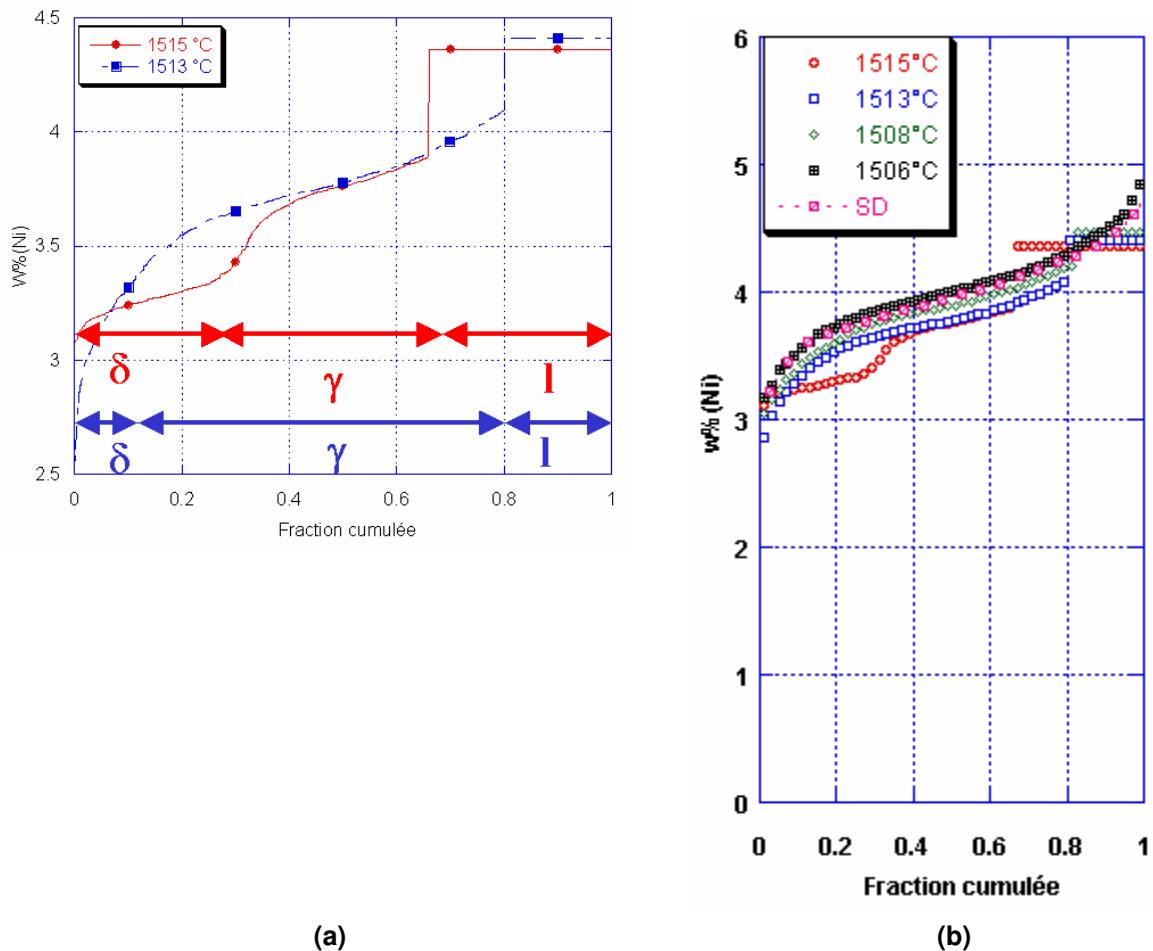
(a)

(b)

**Figure 75 (a) Coupe longitudinale, (b) Coupe transversale, (c) Courbes de fractions cumulées, (d) Evolution des fractions de phases (G = 13 K/cm V=1,2 mm/min)**

### V - 1.1.2.2. Courbes de fraction cumulée

Grâce à cet essai de TSD nous avons pu établir les courbes de fractions cumulée sur deux coupes transversales au début (1515°C) et au cours (1513°C) de la réaction péritectique. La figure 76 (a) montre ces deux courbes auxquelles nous avons superposé les valeurs des taux de phases quantifiées par analyse d'images. La courbe de fractions cumulée correspondant au début de la réaction péritectique présente au début une courbure avec des valeurs entre 3.1 et 3.2. Ceci est dû à l'appauvrissement de la ferrite en nickel à l'interface  $\delta/\gamma$ . On peut observer ensuite que cette courbe présente un point d'inflexion qui sépare la courbe dans la partie solide en deux zones. Il reste cependant ardu de délimiter la frontière  $\delta/\gamma$  car le classement des valeurs du titre de nickel pour établir la courbe de fraction cumulée déplace les valeurs de l'interface  $\delta/\gamma$  vers le début de la courbe. En comparant la courbe précédente à celle (1513°C) où la réaction péritectique a eu le temps de progresser, on constate en premier lieu un enrichissement du liquide, un élargissement du domaine austénitique aux dépens de la ferrite et du liquide. Néanmoins on ne constate pas une inflexion franche comme celle observée au début de la réaction péritectique ni deux paliers distincts comme dans l'alliage péritectique binaire Fe-4%Ni.



**Figure 76 courbes de fractions cumulée**

On note aussi la diminution des valeurs du début de la courbe avec une valeur minimale 3.1 au début de la réaction péritectique et qui passe à 2.5. Comme expliqué précédemment ces faibles valeurs ne reflètent pas le titre massique du cœur des dendrites, mais les valeurs de l'interface  $\delta/\gamma$  inversées par le

classement. Notons enfin qu'en observant ces deux courbes on peut voir un enrichissement du nickel dans la ferrite.

Pour suivre l'évolution de la microségrégation après que la réaction péritectique eu pris place, nous avons établi les courbes de fractions cumulée du nickel à des températures plus basses à savoir à 1508 °C et 1506° C et enfin celle de l'essai SD qui se rapproche le plus des bruts de coulée. On peut voir qu'à des températures de fin de solidification la courbe ne change plus de forme et la ségrégation finale n'est induite qu'au cours des premiers stades de la solidification. La superposition de ces courbes montre la genèse de la courbe de fractions cumulée qu'on observe dans l'essai de SD et montre aussi qu'un essai de TSD est complémentaire d'un essai de SD pour comprendre le mode de formation de la microségrégation.

### V - 1.1.2.3. Evolution du taux de phases

Pour suivre l'évolution de taux de phases au cours de la solidification de l'alliage péritectique Fe-4%Ni-0,1C% nous avons mesuré sur chaque coupe longitudinale le taux de phases associé à chaque température. La figure 77 montre l'évolution du taux de phases du liquide, de la ferrite et de l'austénite. La température est mesurée avec une incertitude de  $\pm 5$  °C. Les taux de phases sont mesurés avec une incertitude de 0.5.

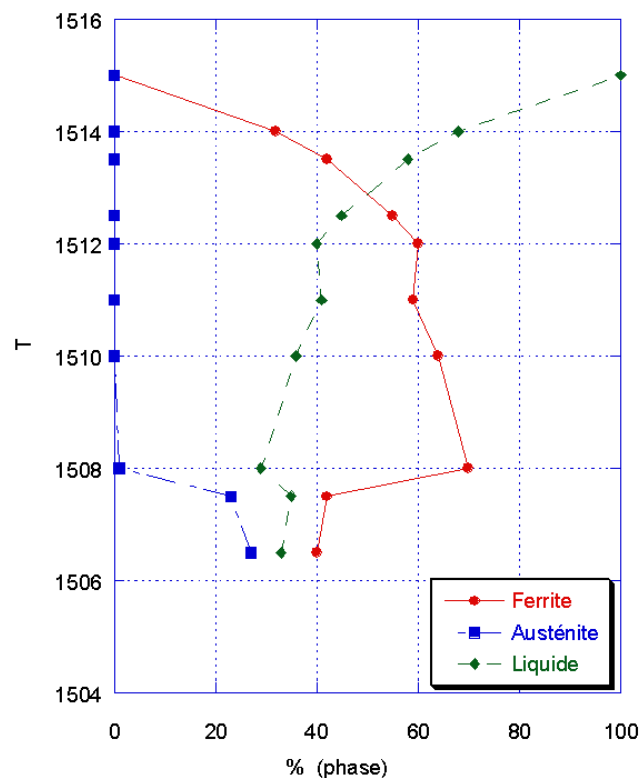
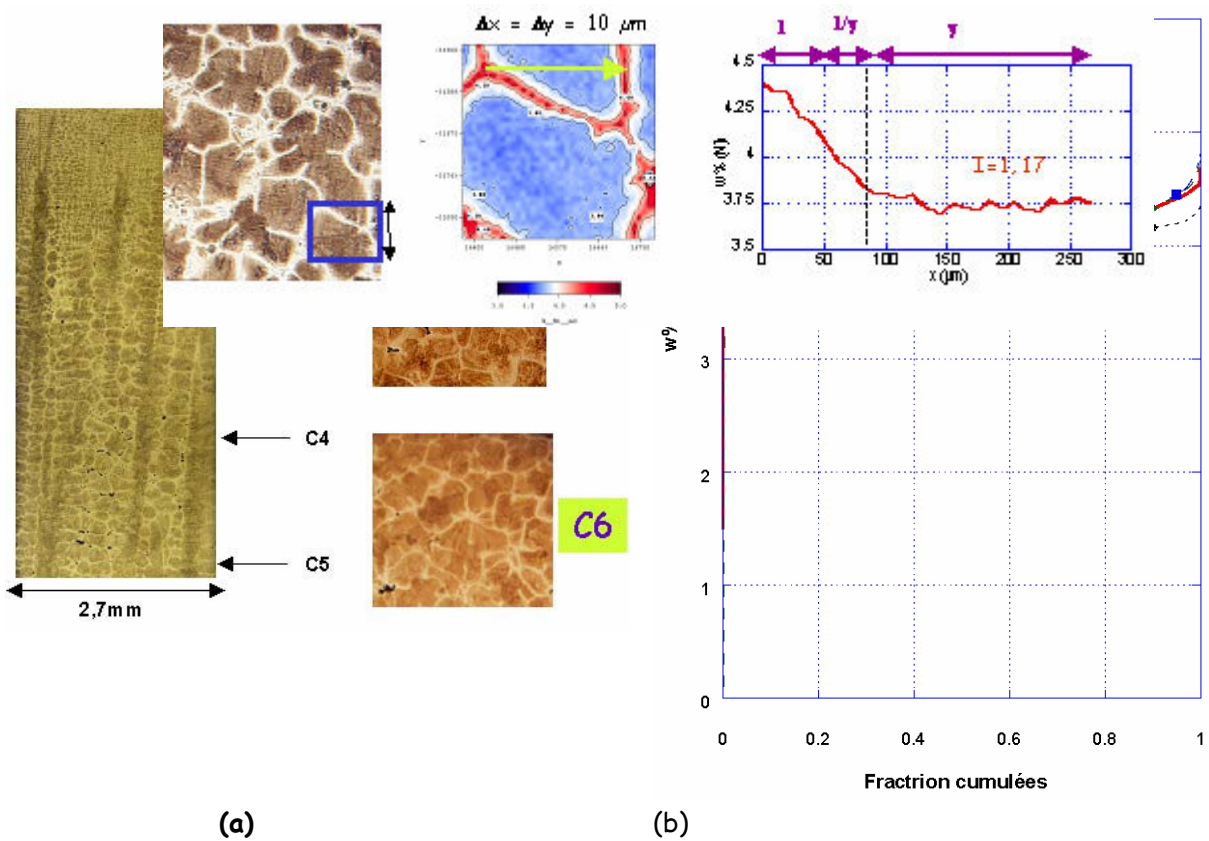


Figure 77 Evolution des taux de phases au cours de la solidification

## Solidification primaire en $\gamma$

### V - 1.1.3. Alliage Fe-4%Ni-0,4%C

Les mêmes conditions expérimentales de TSD ont été appliquées à cet alliage et la coupe longitudinale après polissage et attaque chimique est donnée par la figure 78(a). Outre le front de solidification dendritique. On constate sans surprise la solidification biphasée ( $L+\gamma$ ) de l'alliage étudié. Les courbes de fractions cumulées établies sur trois coupes transversales ne montrent, aux incertitudes de mesures près, aucune évolution notable de la courbe de fractions cumulées au cours de la solidification.



(c)

Figure 78 (a) Essai de TSD (b) courbes de fractions cumulées, (c) profils de concentration ( $G = 15 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )

En superposant les courbes de fractions cumulées de SD et de TSD (figure 78(b)), on note quand même un léger aplatissement à la fin de la solidification ce qui

montre l'atténuation de la microségrégation et un enrichissement du cœur des dendrites à la fin de la solidification. Le profil de concentration (figure 78(c)) du nickel tout au long de l'axe d'une dendrite montre une stabilité du nickel dans l'austénite. Ceci est confirmé aussi par la cartographie du nickel où observe une uniformité de l'intensité de la couleur bleu représentant le titre du nickel dans l'austénite ce qui montre une faible ségrégation négative mais uniforme dans l'austénite. La ségrégation par contre dans le liquide paraît plus intense.

## V - 2. FORMATION DE LA MICROSEGREGATION DU CHROME

Deux nuances ont été sélectionnées pour notre étude le Fe-1,5%Cr-1%C (100C6) et le Fe-1,5%Cr-0,16%C qui correspondent respectivement à une solidification primaire en  $\gamma$  et en  $\delta$ .

Solidification primaire en  $\delta$

### V - 2.1.1. Alliage Fe-1,5%Cr-0,16%C

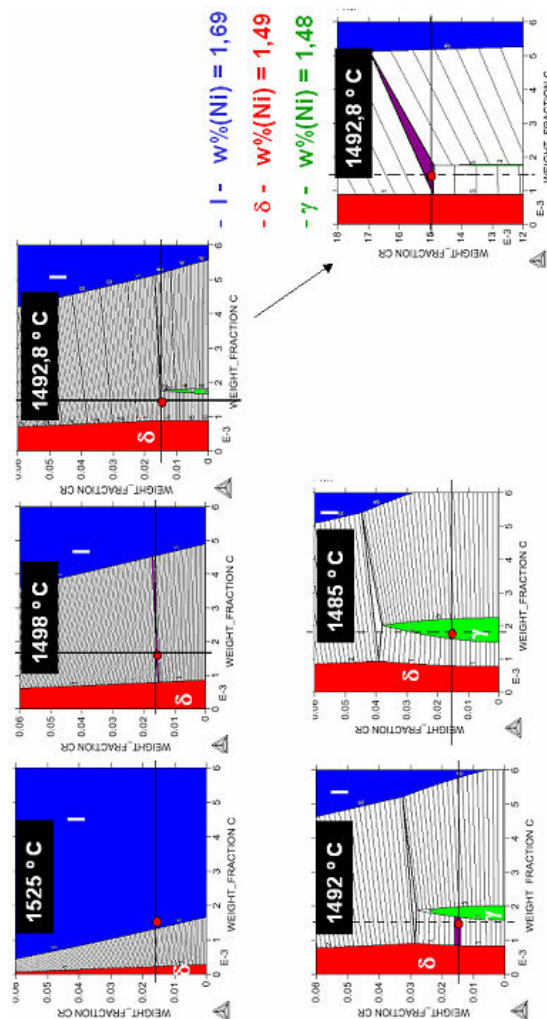
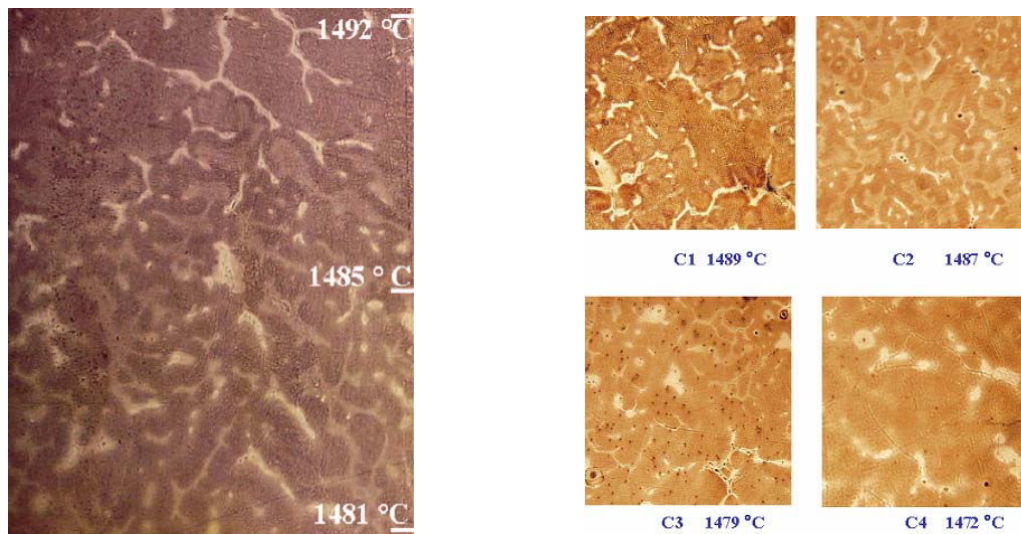


Figure 79 Coupes isothermes du diagramme Fe-Cr-C à différentes températures

Pour étudier la microségrégation des alliages Fe-Cr-C nous avons prévu d'effectuer des essais de SD après avoir effectué des essais de TSD sur l'alliage Fe-1,5%Cr-0,16%C. Des coupes isothermes tracées à l'état d'équilibre avec le logiciel Thermo-Calc montrent la séquence de solidification de cet alliage ( $l \rightarrow l + \delta \rightarrow l + \delta + \gamma \rightarrow l + \gamma \rightarrow \gamma$ ) et une transformation péritectique à 1492 °C. On notera

aussi le très faible coefficient du partage du chrome entre la ferrite et l'austénite (0.99) (figure 79)

Un essai de TSD sur un barreau de l'alliage Fe-1,5%Cr-0,16%C a été effectué avec une vitesse d'extraction de 1,2 mm/min et un gradient moyen de 15 K/mm au niveau du liquidus. La figure 80(a) montre la progression de la réaction péritectique sur la coupe longitudinale. L'austénite (marron foncé) qui se forme autour de la ferrite (marron) se développe au cours de la réaction péritectique aux dépens de la ferrite et du liquide (claire). Les coupes transversales C1, C2, C3 et C4 (figure 80b) montrent aussi cette évolution.



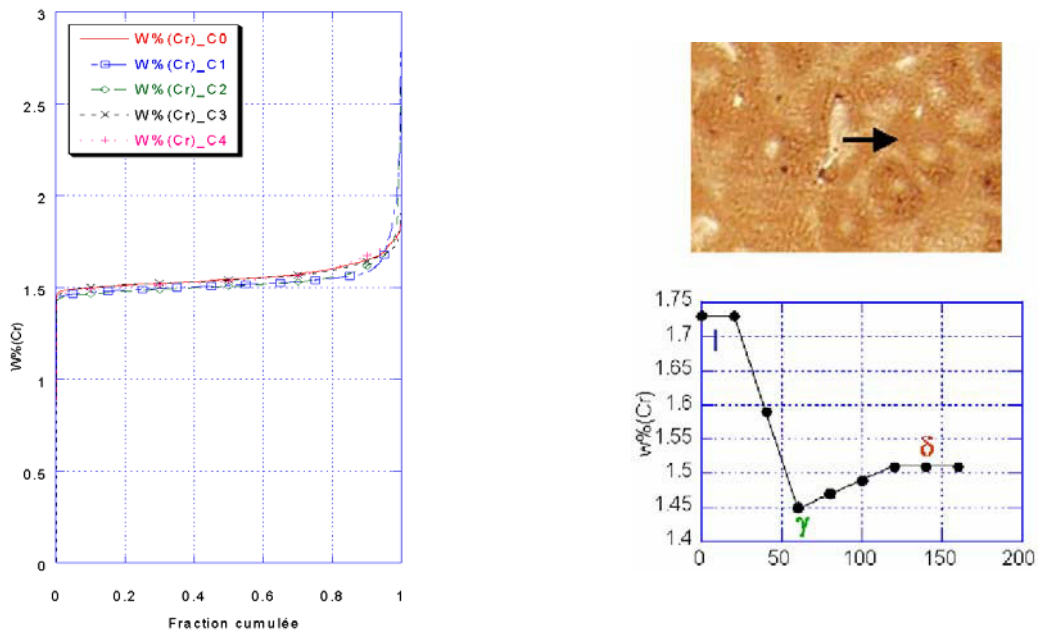
(a) (b)  
**Figure 80 (a) Coupe longitudinale, (b) Coupes transversales (G = 20 K/cm V=1,2 mm/min)**

Les courbes de fractions cumulées (Figure 81(a)) contrairement aux alliages Fe-Ni et Fe-Ni-C ne montrent pas de points singuliers au cours de la réaction péritectique ni de points d'inflexions. Ces courbes ne présentent pas non plus de courbures au début signe d'un éventuel appauvrissement en chrome de la ferrite à l'interface, chose qui était prévisible vu la nature du chrome, qui est un élément alphasène.

La courbe de fractions cumulées de la coupe C0 qui se trouve avant la réaction péritectique semble être légèrement au-dessus de ces courbes C1, C2, C3, C4 qui représentent la réaction péritectique. On pourra expliquer ceci par le fait que l'apparition de l'austénite, qui est moins chargée en chrome, fait que les valeurs du titre massique du chrome dans l'austénite se retrouvent au début de la courbe cumulée. Ces courbes montrent aussi que le liquide est plus riche en soluté au cours de réaction péritectique ceci est dû au fait que le coefficient de partage  $k_{Cr}^{\delta/l}$  est inférieur au coefficient de partage  $k_{Cr}^{\delta/l}$ .



L'établissement d'un profil de concentration Figure 81(b) au cours de la réaction péritectique sur une coupe transversale permet de voir que le profil de concentration du chrome est d'abord élevé dans le liquide puis chute brutalement dans l'austénite pour remonter légèrement dans la ferrite. Les valeurs mesurées du titre massique du chrome montrent tout d'abord que ces valeurs sont du même ordre que ceux prédit par Thermo-Calc et que la faible différence de teneur en chrome entre l'austénite (1,45%) et celle de la ferrite (1,51%) rend délicat toute interprétation car cette différence peut même être incluse dans les incertitudes de mesures.



(a)

(b)

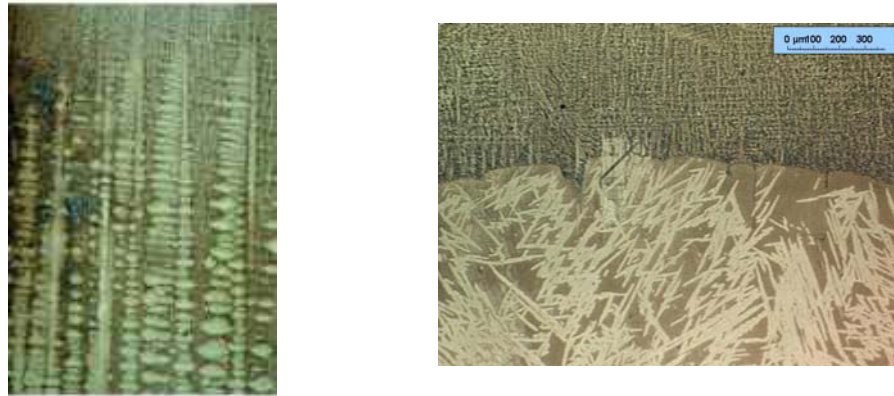
Figure 81 (a) Courbes de fractions cumulées, (b) Profil de concentration

Solidification primaire en  $\gamma$

V - 2.1.2. Alliage Fe-1,5%Cr-1%C

V - 2.1.2.1. Métallographie

Le barreau solidifié est enrobé, poli longitudinalement jusqu'au « miroir », puis attaqué à chaud avec une solution de «Bechet - Beaujard ». La figure 82 révèle une structure bien dendritique, une zone liquide bien définie, et une zone pâteuse avec des parties solides qui croissent sous forme dendritique. Le front de solidification est nettement marqué.



**Figure 82 Front de solidification dendritique ( $G = 20 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )  
et plan ( $G = 20 \text{ K/cm}$   $V=0,1 \text{ mm/min}$ ).**

On notera aussi que dans certains cas lors de la trempe les géométries du front de solidification tendent à se déformer avec le choc de trempe. On peut assister à une retombée des dendrites donnant ainsi l'impression d'un front plan (figure.83a). On peut aussi voir une inclinaison des bras primaires et la formation d'un réseau de *moiret* voir (figure84.b) Dans le cas d'un front de solidification plan lors de la trempe on peut assister aussi à une courbure inverse du front plan (figure84.c)



(a)

(b)

(c)

**Figure 83 Perturbations du front de solidification lors de la trempe ( $G = 20 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )**

. (a) Détachement des pointes des dendrites, (b) Inclinaison des dendrites et effet de moiret, (c) Front plan incurvé

#### V - 2.1.2.2. Evolution de la microstructure

Pour illustrer la microségrégation avec une solidification primaire en  $\gamma$  nous avons choisi de travailler avec le 100C6. Il contient la même proportion de chrome que l'alliage Fe-1.5%Cr-0.16%C mais possède par contre 1% de carbone. Ceci lui confère une solidification primaire en  $\gamma$ .

Ainsi et grâce au suivi de l'évolution de la température par un thermocouple, on peut retracer (figure 84.a) l'évolution de la microstructure en fonction de la température. La Figure 84b illustre l'évolution de la fraction solide en fonction de la température pour l'essai de TSD n°1, on notera sans surprise que la quantité de solide croît et tend à occuper tout l'espace au fur et à mesure de la diminution de la température. On constate qu'à la température de 1443 °C l'apparition de solide sous forme de dendrites baignant dans le liquide, qui à la trempe se solidifie en un fin réseau dendritique et à partir de 1429°C le solide commence à se développer jusqu'à occuper tout le volume vers 1337 °C.

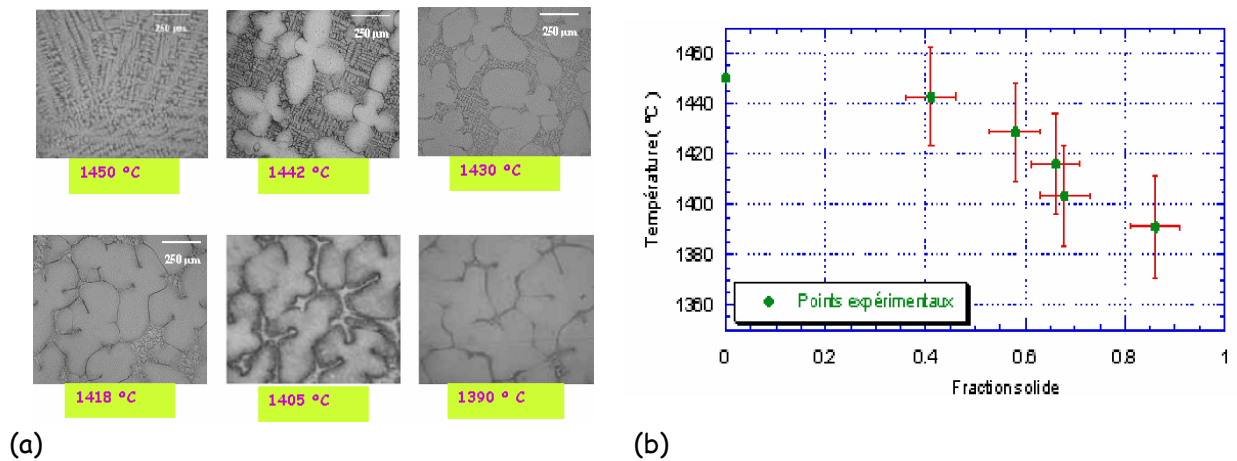


Figure 84 (a) coupe transversale (SD), (b) courbe de fraction cumulée, coupes transversales, (d) évolution de la fraction solide ( $G = 20 \text{ K/cm}$   $V=1,2 \text{ mm/min}$ )

### V - 2.1.2.3. Evolution de la composition chimique

Le suivi à la microsonde de Castaing de l'évolution de la composition chimique du Chrome nous a permis de tracer l'évolution de la composition moyenne en fonction de la fraction solide dans le liquide et dans le solide. La figure 85 schématise cette évolution.

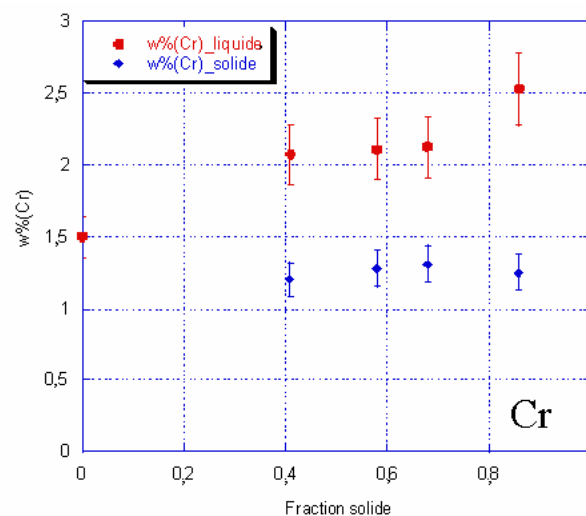


Figure 85 Evolution de la composition chimique du chrome dans le liquide et dans le solide au cours de la solidification

On peut voir qu'à partir de la composition initiale, le liquide a tendance à s'enrichir fortement en chrome tandis que le titre du chrome dans le solide n'augmente que légèrement. Néanmoins on ne saurait se baser sur ces titres moyens pour déterminer avec exactitude l'évolution du coefficient de partage car en toute rigueur il faudra estimer le titre massique du liquide et du solide à l'interface. Ceci n'est pas facile à estimer car lors de la trempe la frontière liquide/solide se décale et les frontières métallographiques observées ne reflètent pas exactement celles au moment de la trempe

#### V - 2.1.2.4. Evolution de la microségrégation

Pour étudier l'évolution de la microségrégation du chrome au cours de la solidification du 100C6 nous avons tracé deux courbes de fractions cumulées : la première à 0.41 de fraction solide et la deuxième à 0.68. On peut observer sur la figure 86 un enrichissement du liquide et une légère augmentation du titre du chrome dans le solide, signe d'une faible rétrodiffusion du chrome dans le solide. La courbe de fractions cumulées issue d'un essai de TSD et qui caractérise la microségrégation en fin de solidification vient aussi confirmer la faible diffusion du chrome dans le solide au cours de la solidification. La fin de solidification montre aussi un fort enrichissement en chrome en fin de solidification.

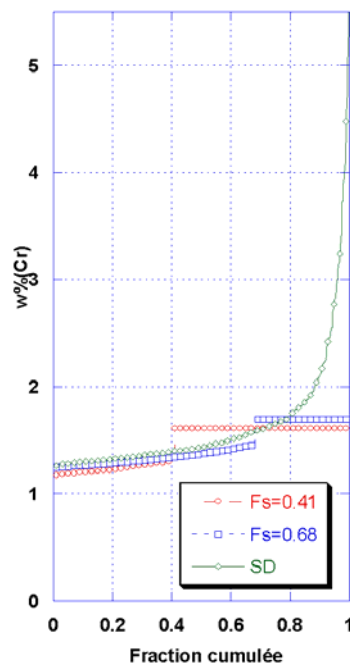


Figure 86 Evolution des courbes de fractions cumulées (100C6)

### V - 3. EVOLUTION DE LA COMPOSITION A L'INTERFACE

Evolution de la composition du nickel

Un essai de TSD avec une vitesse d'extraction nulle, et un gradient de l'ordre de 15 K/cm nous a permis d'obtenir un front plan de solidification. L'image métallographique (figure 87.a) permet, après attaque chimique, d'observer le front

ferrite/liquide sur un alliage péritectique Fe-4%Ni. Le liquide trempé montre une structure dendritique très fine. La ferrite par contre est homogène chimiquement. Des taches blanches persistent à l'intérieur de la ferrite. Ce sont en fait, des gouttes de liquides piégées dans la ferrite au cours de la trempe.

A l'interface liquide/solide, le profil de composition (87.b) du nickel a été établi, depuis le liquide trempé vers le solide en passant par l'interface. La trempe du liquide crée une ségrégation chimique. Pour avoir une valeur moyenne du titre du nickel, une moyenne de 10 points sur une même ligne horizontale a été à chaque fois calculée. La figure 87 montre l'évolution des valeurs ainsi mesurées du titre du nickel. On peut observer dans le liquide, d'abord une stabilité du titre du nickel autour de 4,1 puis une brusque augmentation jusqu'à 4,4. La valeur du titre du nickel enfin diminue brusquement, près de l'interface jusqu'à atteindre 3,6. Dans la partie solide le titre du nickel moyen est relativement stable et a une valeur voisine de 3,3. On note cependant une dérive de cette valeur qui passe de 3,2 à l'interface à 3,4, 700  $\mu\text{m}$  plus loin.

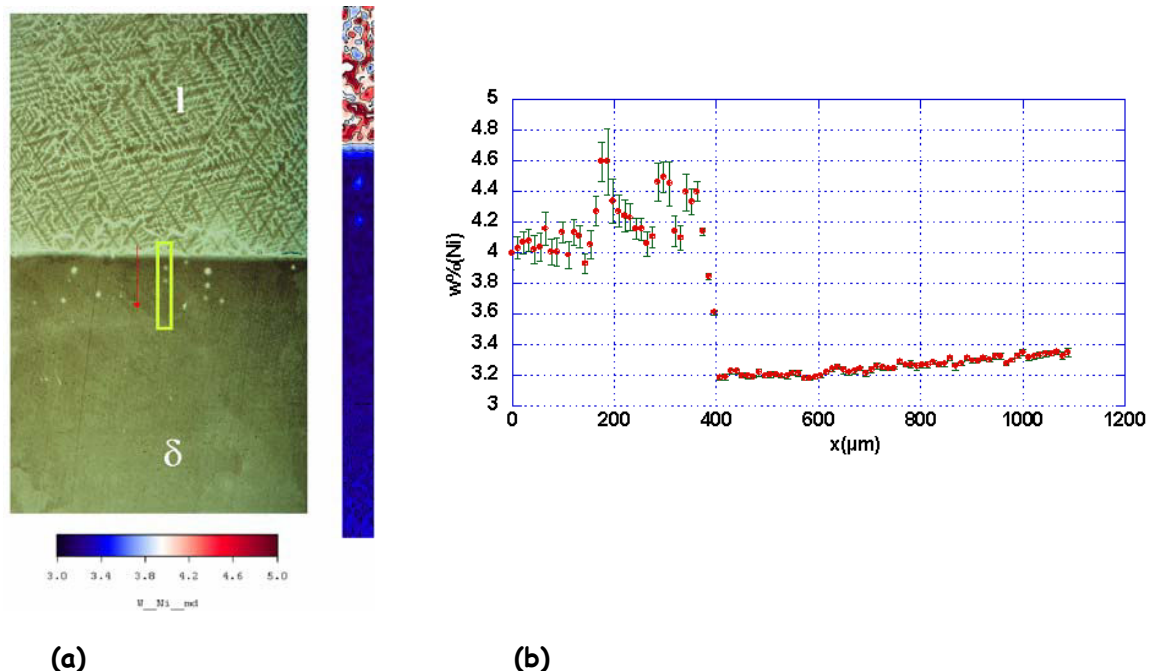


Figure 87 Fe-4%Ni (a) front plan, (b) profil du nickel le long du front de solidification ( $G = 15 \text{ K/cm}$   $V=0.05 \text{ mm/min}$ )

#### Evolution de la composition du chrome

La même démarche expérimentale a été suivie pour suivre l'évolution du titre du chrome à l'interface liquide/austénite. Sur une distance de 1000  $\mu\text{m}$ , un profil du chrome depuis le liquide vers le solide, en passant par l'interface solide/liquide a été tracé (figure 88). Dans le liquide la valeur de la composition du chrome augmente à l'interface liquide, jusqu'à 3,5% de chrome. Cette valeur chute après à 2,9% de chrome juste à l'interface. Dans la partie solide, la valeur du titre du chrome est quasiment stable et vaut 1,6. Cependant, une valeur légèrement supérieure à la moyenne juste à l'interface qui est de 1,8% de chrome est observée.

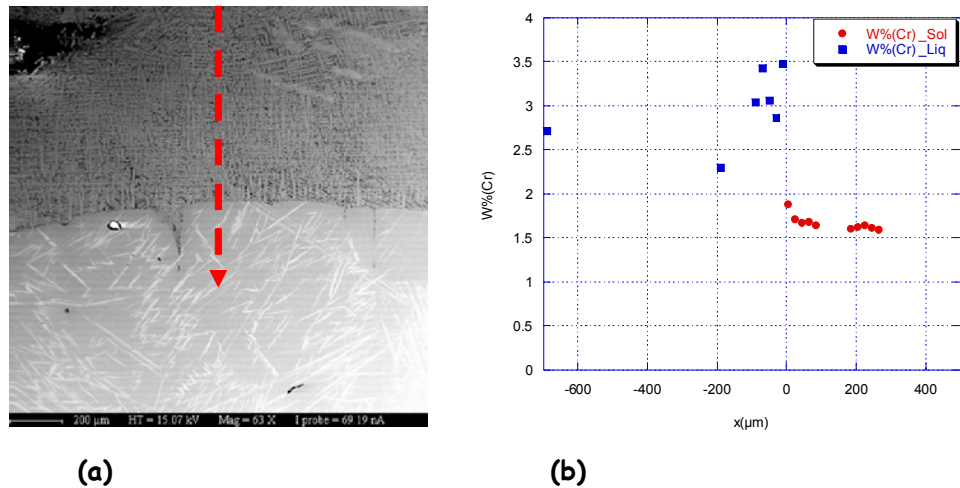


Figure 88 (a) 100C6 front plan, (c) Profil de concentration

### Effet de la taille de la structure

Pour voir l'effet de la taille de la structure au cours de la solidification d'un alliage péritectique, nous avons analysé sur des coupes transversales la microségrégation du nickel sur un échantillon qui présente une dispersion des valeurs de distances entre arbres primaires. Pour cela, sur un alliage péritectique Fe-4%Ni-0,1%C. et après un essai de TSD, nous avons sélectionné sur une même coupe transversale deux zones qui présentent une taille de structure différente. On peut observer sur la coupe transversale la présence de 2 grains avec une structure de tailles différentes : Une première zone où le dp moyen vaut 330  $\mu\text{m}$  et une autre avec un dp qui vaut 660  $\mu\text{m}$ .

Du point de vue composition chimique, la première zone a une composition moyenne en nickel (3,90) qui est inférieure à celle de la deuxième zone (4,00). Du point de vue morphologique la première zone présente une structure dendritique très serrée. La taille de structure mesurée vaut de 330  $\mu\text{m}$ . On peut noter (figure89) l'existence à cette température de trois niveaux de gris différents :

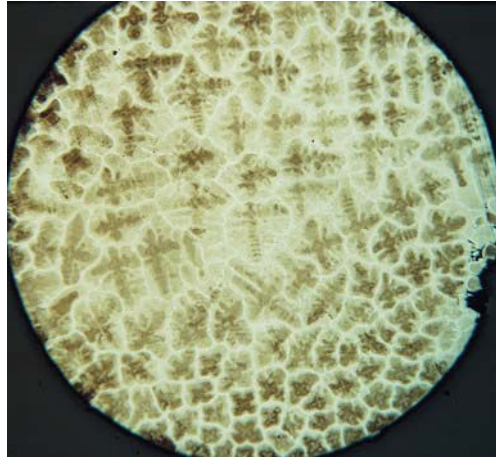
Des traits très clairs dans l'espace interdendritique représentant le liquide résiduel.

Une coloration claire, représentant l'austénite qui s'est solidifiée directement à partir du liquide.

Une coloration grisâtre qui correspond à l'austénite qui est issue de la transformation directe de la ferrite.

Une coloration très sombre qui représente la ferrite non transformée.

Une zone blanchâtre, très marquée sous forme de croix au cœur des dendrites, représentant la ségrégation du phosphore au cœur des dendrites. Il est à noter que notre alliage comporte 200 ppm de phosphore et que ce dernier est très sensible au réactif Oberhoffer.



**Figure 89 Variabilité de la taille de la structure dans un essai de TSD**

Pour nos investigations chimiques à la microsonde nous avons choisi de prendre une zone d'analyse de 3dp. Ceci correspond environ à 1000  $\mu\text{m}$  pour la première zone et 2000  $\mu\text{m}$  pour la seconde zone. Une trame de 31 \* 31 points d'analyse a été construite, soit 961 points. Ce qui donne un pas d'analyse entre chaque point de l'ordre de 33  $\mu\text{m}$  pour la zone 01 et 66  $\mu\text{m}$  pour la zone 02. Les figures 90 et 90 bis montrent pour chaque zone d'analyse : la micrographie, la cartographie chimique et la courbe de fractions cumulée. La cartographie chimique du nickel de la zone 01 reproduit la morphologie de la microstructure et montre :

Une forte zone ségrégée négativement au cœur des dendrites qui correspond à la présence de l'interface  $\delta/\gamma$  vers le cœur.

On observe ensuite, une zone ségrégée négativement de façon moins intense qui représente la ferrite résiduelle.

Cette dernière est entourée par de l'austénite qui provient de la transformation de la ferrite.

Enfin l'austénite qui provient de la solidification directe du liquide apparaît en rouge dénotant une forte ségrégation positive.

Comparativement, la zone 02, qui a une taille de structure plus importante ne semble pas montrer de très faibles valeurs de nickel, comme celles observées au cœur des dendrites. La morphologie des dendrites dans cette zone laisse apparaître aussi une structure plus ramifiée. On notera aussi la présence de branches tertiaires dans cette zone. Pour apprécier de manière plus fine l'intensité de la microségrégation dans chaque zone, les courbes de fractions cumulées du nickel de chaque zone ont été tracées (figures 90 et 90 bis).

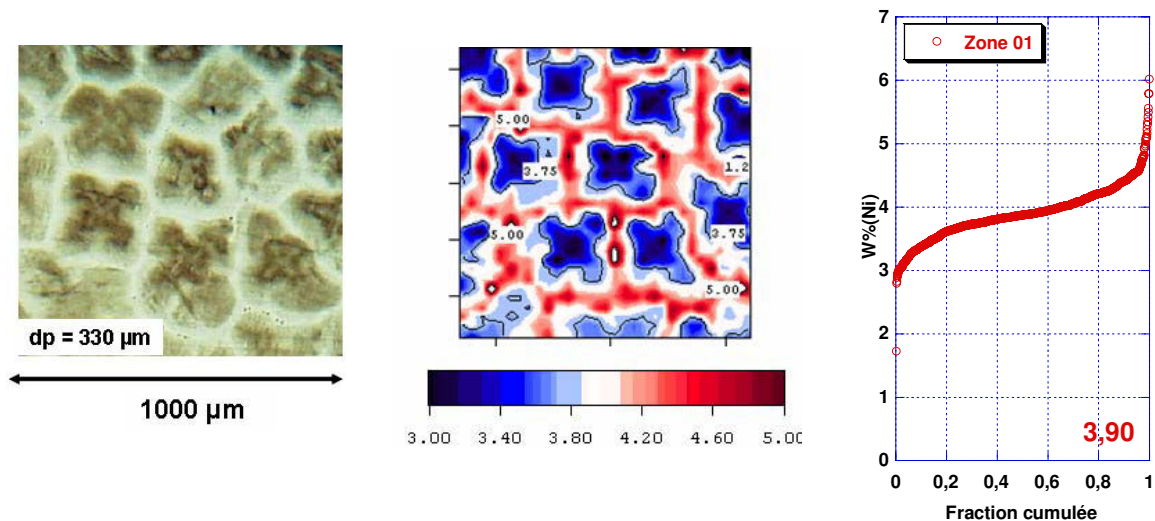


Figure 90 Effet de la taille : zone 1

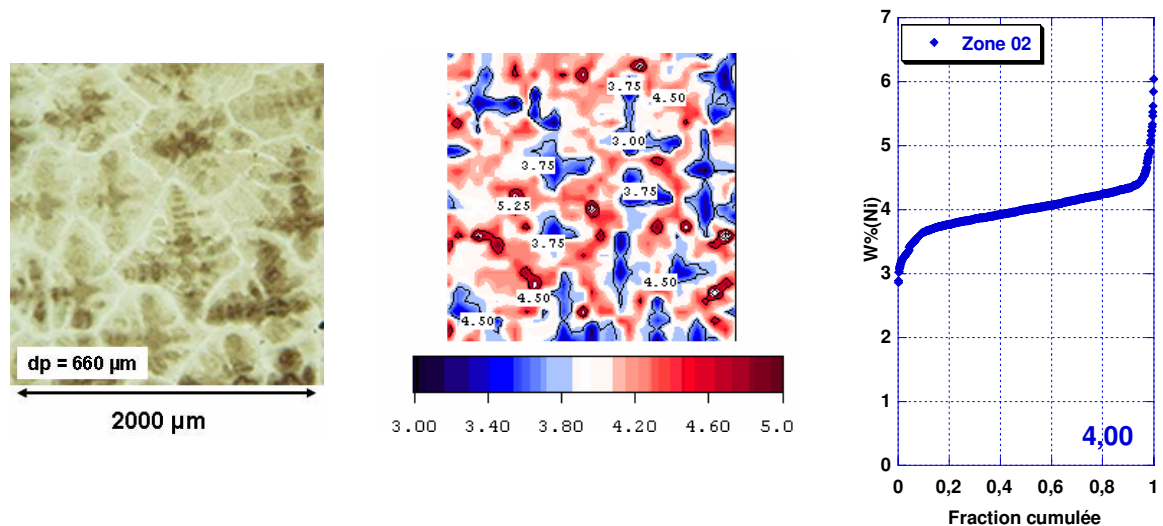


Figure 90 bis Effet de la taille : zone 2

Comparativement la partie centrale de la courbe de fractions cumulées de la zone 01 présente une pente plus prononcée que celle ayant une taille de structure plus grande (zone 02). Le décrochement de la pente au début de la courbe est lui aussi plus prononcée dans le cas d'une structure de taille de structure plus faible. L'accroissement du titre du nickel se fait d'une manière brutale dans la dernière phase de solidification. Cependant dans le cas de la deuxième zone, il se produit légèrement avant et se produit de façon moins brutale.

Pour s'affranchir de la composition moyenne entre les deux zones d'analyses qui sont légèrement différentes (3,90 et 4,00 respectivement), on a retracé les courbes relatives de fractions cumulées (figure 91b). Chaque valeur du titre du nickel a été divisée par la composition moyenne associée à la zone d'analyse. La figure 91(b) montre que les deux courbes correspondantes n'ont pas la même forme. Néanmoins les valeurs relatives min et max sont identiques. On pourra aussi observer que la zone 01 qui a une faible taille de dp présente en général une ségrégation positive plus intense que celle de la zone 02. Le cœur des



dendrites possède aussi en général une ségrégation négative plus intense que celle de la zone 02.

En comparant deux structures avec les mêmes conditions de solidification, on peut voir que le passage d'une taille de structure de 330  $\mu\text{m}$  à 660  $\mu\text{m}$  induit une plus forte diffusion du nickel. En effet on peut voir que le nickel diffuse dans la ferrite et dans l'austénite issue de la solidification directe du liquide de façon plus intense dans la structure à faible  $d_p$ .

=

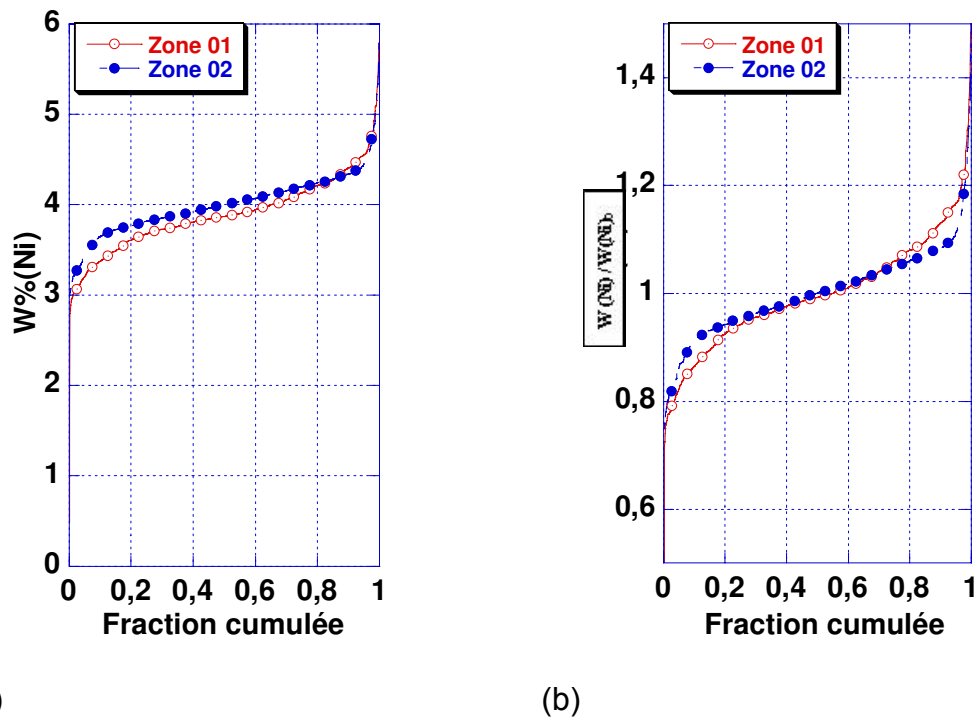


Figure 91 Effet de la taille de dendrite sur la ségrégation de nickel  
 (a) courbe de fractions cumulées (b) courbe relative de fractions cumulées

## V - 4. EFFET DE LA REACTION PERITECTIQUE

### Caractérisation expérimentale

Pour caractériser la réaction péritectique, nous avons tout d'abord effectué des essais de TSD sur deux alliages : un alliage binaire Fe-4,23%Ni et un alliage ternaire Fe-4%Ni-0.1%C. Les deux alliages présentent une réaction péritectique et possèdent une solidification primaire en ferrite  $\delta$ . Nous avons varié aussi les conditions expérimentales sur le gradient thermique et la vitesse afin d'obtenir des structures dendritiques et des structures cellulaires. La trempe en cours de solidification dirigée nous a permis de suivre l'évolution de la structure métallographique dans ces alliages possédant une réaction péritectique. Nous avons essayé aussi de mettre en évidence l'appauvrissement du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  et la régression de la ferrite  $\delta$ .

#### V - 4.1.1. Alliage binaire Fe-4,23%Ni

Un essai de TSD a été effectué sur l'alliage binaire Fe-4.23%Ni. Les températures ont été indexées sur la coupe longitudinale où on peut observer la présence de deux structures : une structure fine qui correspond au liquide trempé et une structure grossière qui correspond à la partie solide (figure 92). Cette dernière partie présente une structure biphasée (I+ $\delta$ ) au-dessous du front de solidification, puis apparaît une structure triphasée (I+ $\delta$ + $\gamma$ ). La distinction de ces trois phases se fait par l'attaque chimique qui colorie de façon différentielle les trois phases.

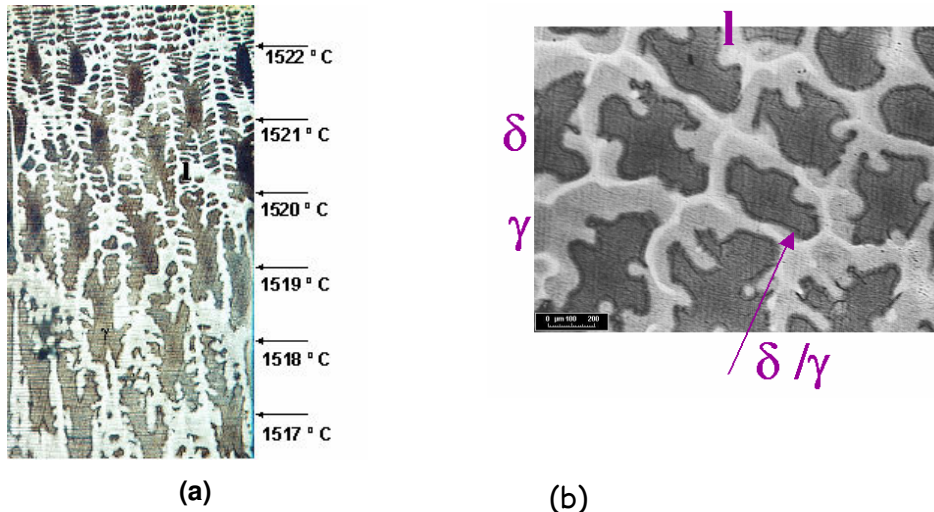
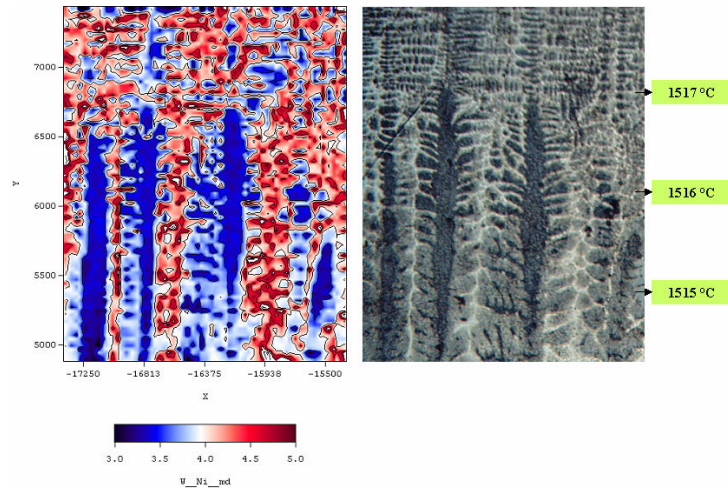


Figure 92 Caractérisation métallographique de la transformation péritectique

Il faut noter que sur la coupe longitudinale, la distinction de ces trois phases est moins nette. Les coupes transversales sont plus nettes et montrent distinctement les trois phases lors d'une réaction péritectique. On peut observer une structure dendritique sombre en noir entourée par une surstructure grisâtre dendritique d'austénite et du liquide en clair qui entoure la structure austénitique. On peut aussi noter la présence d'une auréole noire à l'interface ferrite/austénite qui correspond à l'appauvrissement en nickel de cette interface.

#### V - 4.1.2. Alliage Ternaire Fe-4%Ni-0,1%C

La même démarche a été suivie pour l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0.1%C. sur un essai de TSD avec une vitesse de 1,2 mm/min et un gradient de 15 K/cm. Les conditions opératoires nous ont permis d'obtenir une structure de solidification dendritique. Une coupe longitudinale (figure 93) montre l'existence à partir du front de solidification de la ferrite et du liquide, puis à partir de 1516 °C, la phase austénitique commence à apparaître et croît aux dépens du liquide et du solide. On peut aussi observer qu'au cours de la solidification l'austénite se développe autour de l'axe primaire ferritique et des branches secondaires empêchant graduellement tout contact entre la ferrite et le liquide au cours de la solidification. La cartographie chimique du nickel ci-contre montre une analogie avec la métallographie. A partir du front de solidification les pointes de dendrites qui sont constituées de ferrite ont une composition moyenne en nickel entre 3.2 et 3.



**Figure 93 Evolution de la microstructure et de la composition chimique au cours de la réaction péritectique**

#### Caractérisation de l'interface $\delta/\gamma$

Le nickel étant un élément gammagène, au cours de la réaction péritectique où la ferrite est au contact de l'austénite, le nickel diffuse de la ferrite vers l'austénite. Ce phénomène crée ainsi au niveau de l'interface  $\delta/\gamma$  un appauvrissement de la ferrite en nickel. L'examen métallographique d'une coupe transversale (figure 94) de l'alliage péritectique à 1516 °C montre clairement une structure triphasée. L'attaque chimique montre une structure dendritique ferritique ( $\delta$ ) de couleur sombre, entourée de l'austénite ( $\gamma$ ) en gris avec la présence d'un liquide résiduel en blanc. On notera aussi au niveau de la frontière  $\delta/\gamma$  une auréole très foncée qui entoure la ferrite. Sachant aussi que l'attaque chimique utilisée assombrit les zones appauvries, on peut donc affirmer que cette bande noire autour de la ferrite sur l'image métallographique est une preuve expérimentale de l'appauvrissement de la composition de la ferrite à l'interface  $\delta/\gamma$ .

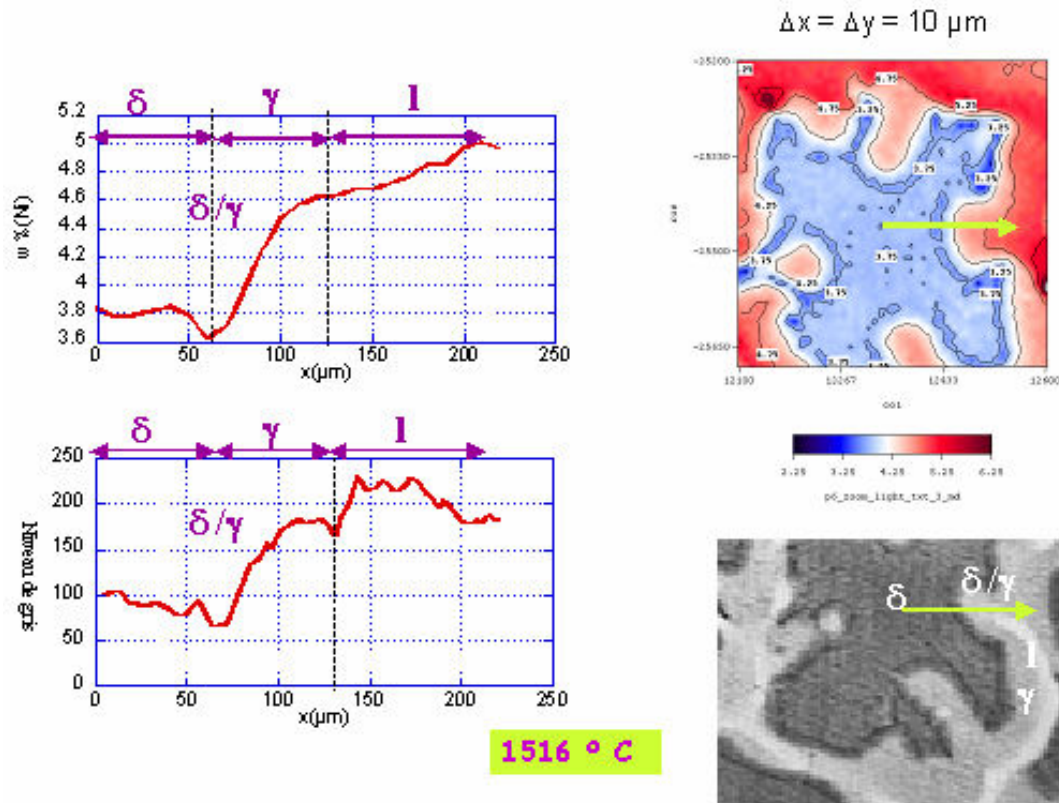


Figure 94 Déplétion du nickel à l'interface ferrite/austénite

Pour étayer nos hypothèses, une cartographie très fine de la composition chimique du nickel a été établie. L'épaisseur de la zone de transition étant de l'ordre de 30  $\mu\text{m}$ , le maillage a été resserré pour qu'un maximum de points puisse intercepter l'interface. La distance entre deux points de mesures fut fixée à 10  $\mu\text{m}$ , pour des raisons de temps machine et de représentativité physique. La cartographie chimique montre clairement trois domaines de valeurs:

- La ferrite : 3.8 à 4% de nickel
- L'austénite : 4.3 à 5.25 % de nickel
- Le liquide : supérieur à 5.25% de nickel

Notons enfin l'apparition à la frontière  $\delta/\gamma$  d'une zone très fine appauvrie en nickel (3,6% Ni), ce qui confirme les observations métallographiques et les hypothèses physiques sur l'appauvrissement du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  dû à la diffusion du nickel de la ferrite vers l'austénite au cours de la réaction péritectique. Il est à noter que sur cette représentation, la couleur blanche indique la composition nominale, les nuances en bleu une ségrégation négative et les nuances de rouge une ségrégation positive.

La cartographie chimique est un moyen de caractérisation semi-quantitatif de caractériser la microségrégation. Pour caractériser de façon quantitative la microségrégation soit on utilise un profil de composition soit une courbe de fractions cumulées. Le profil de composition nécessite moins de points mais souffre d'un manque de représentativité statistique. Les courbes de fractions

cumulées sont plus représentatives de la distribution de la ségrégation chimique, mais peuvent occulter certaines transformations lors d'une inversion de pente des profils de composition. En effet lors du reclassement des valeurs des compositions chimiques, certaines basses valeurs à l'interface peuvent se retrouver au début de la courbe de fractions cumulées, ce qui est le cas, lors de la réaction péritectique. Il se trouve que ces deux méthodes expérimentales sont complémentaires et permettent une meilleure caractérisation de la ségrégation lors de la réaction péritectique. Avant de passer par la microsonde, un profil de niveau de gris a été tracé en allant du cœur d'une dendrite vers le liquide interdendritique.

On peut observer tout d'abord une diminution brusque du niveau de gris à l'interface  $\delta/\gamma$  démontrant ainsi l'appauvrissement du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$ . une augmentation du niveau de gris (de 100 à 175) dans le domaine austénitique. La partie liquide bien distincte se caractérise par un niveau de gris entre 180 et 220. L'utilisation du profil de niveau de gris, quoique révélateur peut occulter certaines transitions, car les niveaux de gris sont des valeurs discrètes (0 à 255). De plus les images métallographiques ne sont pas exemptes d'artefacts dus aux attaques métallographiques. L'utilisation d'un profil de compositions (valeurs continues), donnera a priori des résultats plus affinés. Le profil de composition chimique tracé tout au long d'une dendrite montre un profil plus lisse, dû à la continuité des valeurs du titre massique mesuré à la microsonde. On peut noter que le titre massique du nickel dans la ferrite est quasiment stable et une chute brutale de celui-ci à l'interface  $\delta/\gamma$ .

Le domaine austénitique est caractérisé par une discontinuité du profil de composition à la valeur de 4.3% Ni, discontinuité qui n'est pas mise en évidence par un profil de niveaux de gris. Cette discontinuité délimite l'austénite qui provient de la transformation de la ferrite primaire  $\delta$  et l'austénite qui provient de la solidification directe du liquide. Le profil de l'austénite provenant de transformation de la ferrite se caractérise par une forte pente et faible distance. Par contre le profil de l'austénite provenant de la solidification directe du liquide possède une pente moins forte mais s'étale sur une distance plus importante.

Enfin, le profil du titre du nickel dans le liquide est monotone et possède une pente de même ordre de grandeur que celle de l'austénite qui provient de la solidification directe du liquide. On notera aussi que si les courbes de fractions cumulées mettent en évidence la discontinuité dans la phase austénitique, elles occultent complètement l'appauvrissement du titre du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  et biaisent ainsi les résultats obtenus. Les profils de concentrations qui mettent bien en évidence la transition  $\delta/\gamma$  et la transition  $\gamma_1/\gamma_2$  manquent de représentativité statistique et varient que ce soit localement sur une même dendrite ou bien par rapport à d'autres dendrites ou entre différentes dendrites. De ces résultats expérimentaux Il nous parait nécessaire de faire en parallèle des profils de composition et des courbes de fractions cumulées car ils apportent leurs lots d'informations complémentaires et permettent de mieux expliquer les phénomènes.

## Evolution de la composition du nickel à l'interface $\delta/\gamma$

Pour étudier l'évolution du profil de composition du nickel au cours de la réaction péritectique, une zone d'analyse a été choisie (figure 95). Cette zone se situe sur une coupe longitudinale d'un barreau de l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0.1%C issue d'un essai de TSD. On peut observer en haut de l'image métallographique la présence d'une zone biphasée  $\delta+\gamma$  avec une croissance colonnaire dendritique avec des branches primaires, secondaires, et quelques ramifications de branches tertiaires. La zone sélectionnée sur l'image métallographique commence au début de la réaction péritectique et s'étale longitudinalement sur une distance de 400  $\mu\text{m}$ . Avant de tracer les profils de composition une cartographie chimique du nickel a été établie sur cette zone d'analyse.

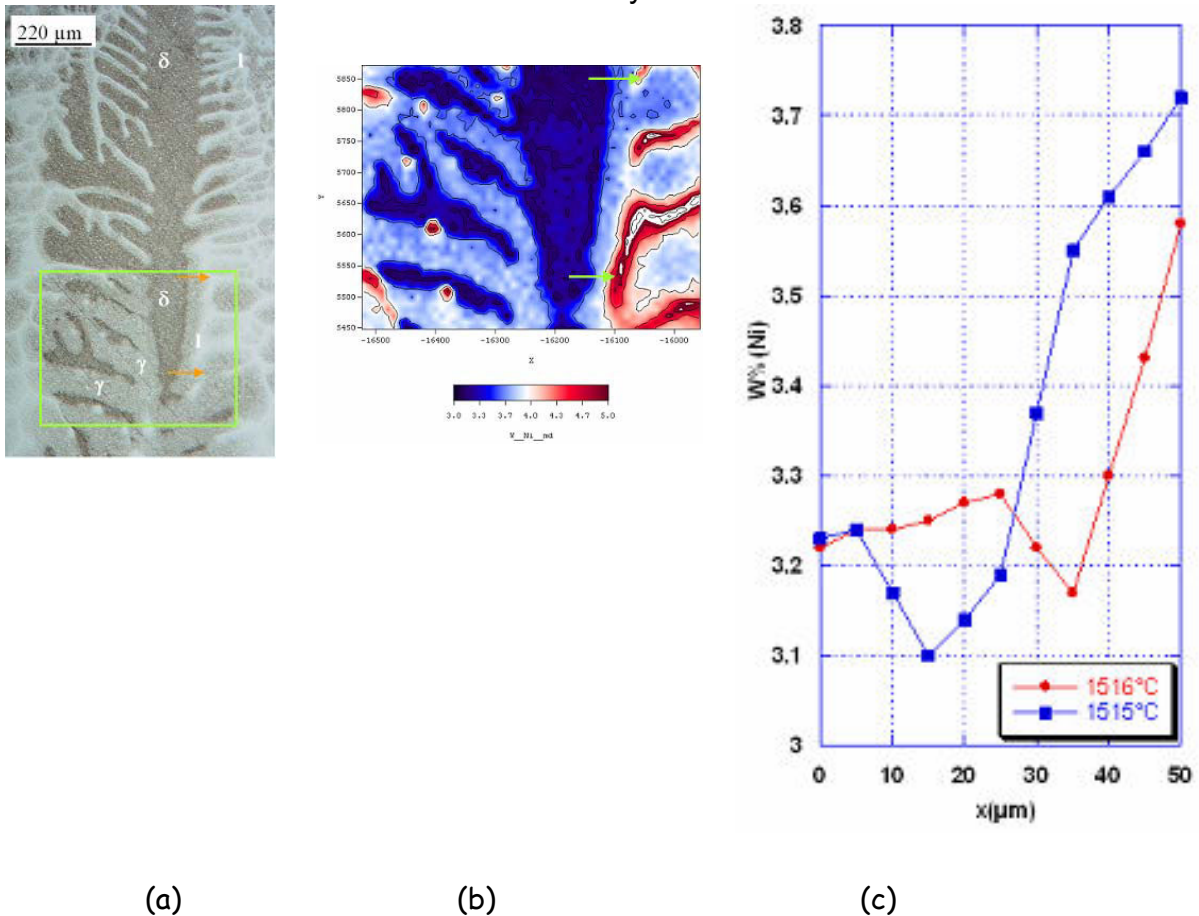


Figure 95 (a) coupe longitudinale, (b) cartographie chimique, (c) évolution du profil de composition

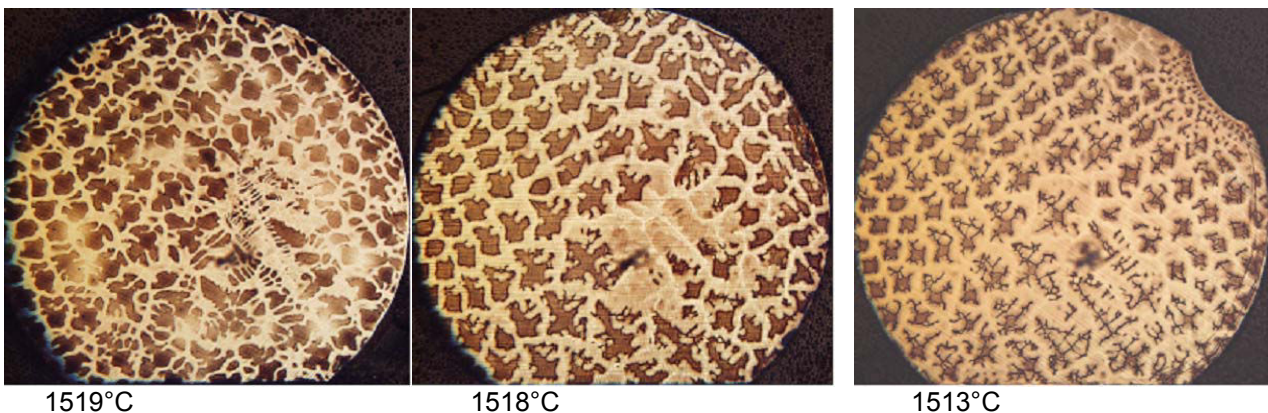
En utilisant la même représentation, on observe tout au long de la branche primaire et des branches secondaires un appauvrissement de l'interface  $\delta/\gamma$ . Pour analyser de façon plus fine, l'évolution de la composition à l'interface  $\delta/\gamma$  au cours de la réaction péritectique, deux profils de composition ont été sélectionnés. L'un au début de la réaction péritectique à 1516°C et l'autre à la fin de la réaction péritectique 1515°C. Le tracé de ces deux profils montre :

- Une similitude de l'allure du profil de composition au cours de la réaction péritectique.

- Un abaissement de la valeur du titre de nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  au cours de la réaction péritectique. Cette valeur chute de 3.18 à 3.1 lorsque la température passe de 1516°C à 1515°C.
- Le point de transition entre l'austénite qui provient de la transformation de la ferrite et l'austénite qui se solidifie directement à partir du liquide est plus net au cours de la réaction péritectique (1515°C) qu'au début (1516°C) où il n'est quasiment pas observable.

#### Description de la régression de la ferrite

Les diagrammes d'équilibre binaire et ternaire, prédisent au cours de la réaction péritectique une régression de la ferrite. Cette régression se manifeste par la transformation de la ferrite  $\delta$  en austénite  $\gamma$ . Les coupes transversales (figure 96) montrent l'évolution de la microstructure au cours de la solidification de l'alliage binaire Fe-4,23%Ni. La microstructure passe d'une structure biphasée  $l+\delta$  à 1519°C, à une structure triphasée  $l+\delta+\gamma$  à 1518 °C, puis repasse par une structure diphasée  $\delta+\gamma$  à 1513 °C. L'évolution de la microstructure entre 1518°C et 1513°C montre une évolution de la morphologie de la structure dendritique de la phase ferritique, passant d'une structure dendritique bien fine à une structure dendritique effilochée. La comparaison entre ces deux dernières micrographies semble étayer l'hypothèse d'une régression de la ferrite au cours de la réaction péritectique.

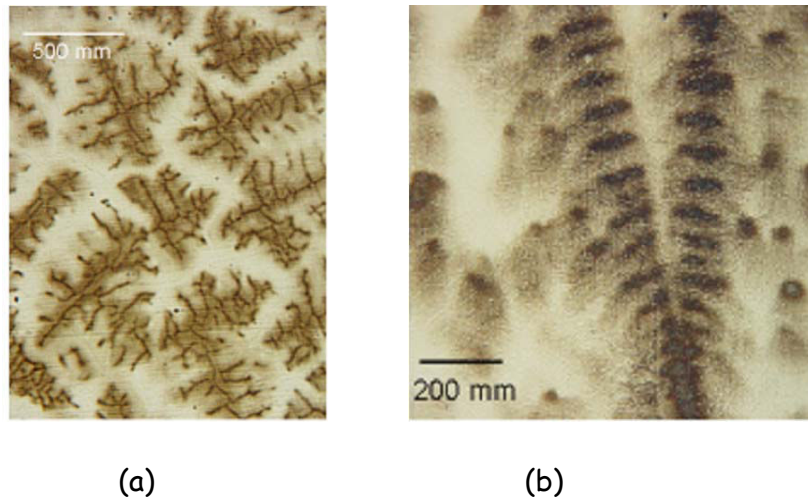


**Figure 96 Evolution de la microstructure au cours de la réaction péritectique**

#### Genèse de la microstructure

Les structures métallographiques, observées sur des coupes transversales et longitudinales lors d'essais de solidification dirigée de l'alliage ternaire Fe-4%Ni-0.1%C qui présente une réaction péritectique, sont représentées par la figure 97. On peut observer une structure dendritique, à laquelle se superpose à son centre une structure filiforme appauvrie en nickel. L'espace dendritique est enrichi en nickel. La composition en nickel dans la zone entre la structure filiforme et l'espace interdendritique est relativement ségréguée. Cette distinction entre les zones observées est basée sur le pouvoir différentiel du discernement du niveau de gris de l'œil humain. On peut séparer ces images métallographiques en trois zones distinctes suivant leurs niveaux de gris. La coupe longitudinale confirme

aussi l'existence d'une structure au cœur très appauvrie tout au long de l'axe primaire sous formes de "vertèbres", entourés d'une zone plus riche en nickel. Enfin "la zone interdendritique" est entourée d'une zone très claire et donc très riche en nickel.



**Figure 97 Microstructure en fin de solidification (SD), (a) Coupe transversale, (b) Coupe longitudinale**

Avec la même nuance d'alliage, un essai de TSD a été effectué avec la même vitesse de solidification et le même gradient thermique, pour comprendre la genèse de la formation de la microstructure observée en fin de solidification et la ségrégation finale du nickel. Sur une coupe métallographique transversale à 1508°C on peut observer :

La ferrite résiduelle au centre des dendrites (en noir)

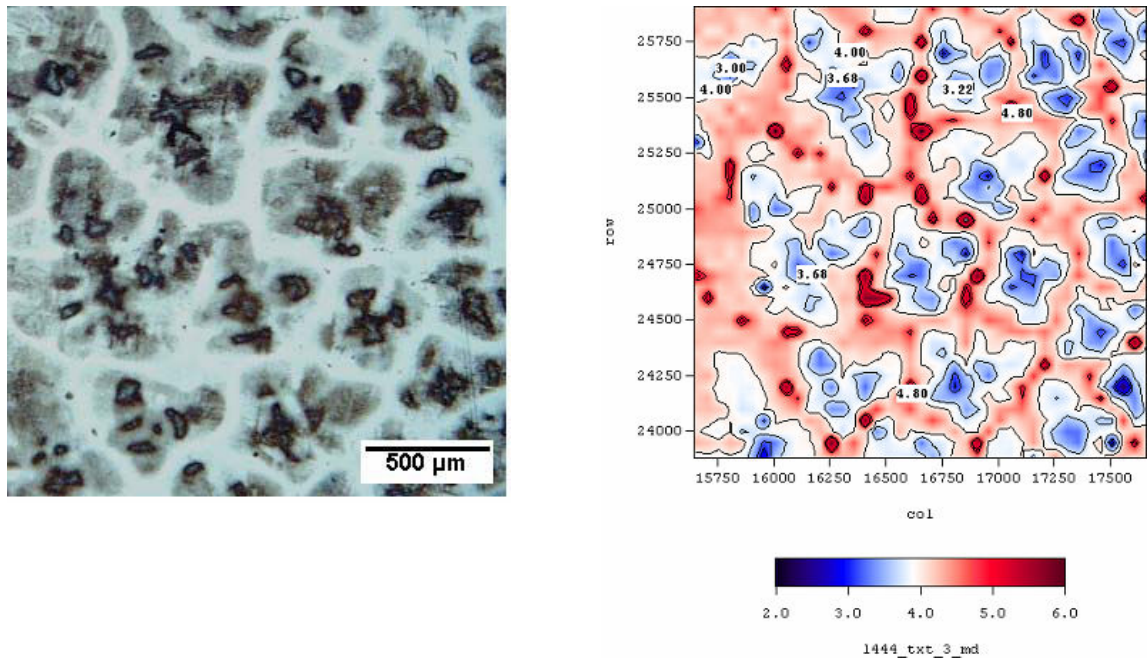
L'austénite  $\gamma_1$  issue de la transformation de la ferrite lors de la réaction péritectique (en gris)

L'austénite  $\gamma_2$  issue de la solidification directe du liquide (en gris clair)

Le liquide résiduel très enrichi (en clair)

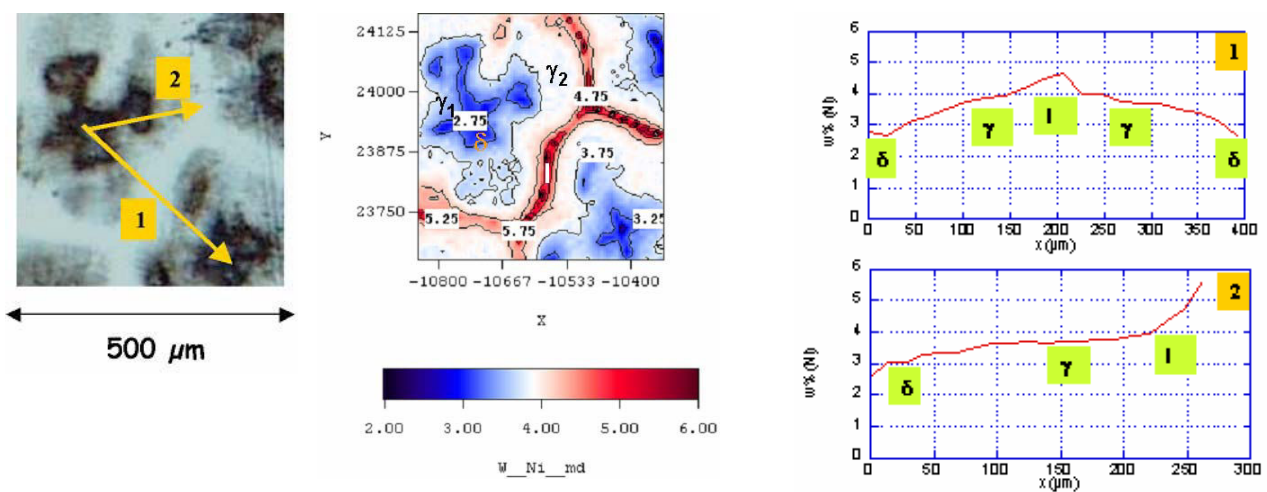
La cartographie chimique du nickel (figure 98) confirme l'observation métallographique. La ferrite résiduelle en bleu foncée est entourée par l'austénite  $\gamma_1$  en bleu claire. L'austénite  $\gamma_2$  issue du liquide est colorée en rose alors que le liquide résiduel est coloré en rouge foncé. Lors du déclenchement de la réaction péritectique, une partie de la ferrite se transforme en austénite moins riche en nickel notée  $\gamma_1$ , une autre austénite notée  $\gamma_2$  plus riche en nickel se forme directement à partir du liquide en contact direct avec le liquide. Au cours du déroulement de la réaction péritectique, la ferrite résiduelle se rétracte au centre des dendrites mais ne disparaît pas complètement. Le liquide lui aussi se transforme en austénite  $\gamma_2$  pour ne laisser place à la fin qu'à une faible fraction de liquide résiduel. On notera aussi la similitude des observations en SD et celles à la fin de la solidification lors de l'essai de TSD.





**Figure 98 Microstructure et cartographie chimique du nickel au cours de la solidification d'un alliage péritectique**

Le pas entre deux points de mesures à la microsonde étant de 50  $\mu\text{m}$  lors de l'analyse de la structure dendritique, une analyse plus fine à l'échelle de la dendrite fut menée dans le but d'affiner notre analyse. Pour ce faire une zone d'analyse de 500  $\mu\text{m}$  fut analysée à la microsonde avec un maillage régulier de points de mesures de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . La figure 99 met côte à côte l'image métallographique et l'image de la cartographie chimique. On notera la similitude du contraste observé sur ces deux images. Là aussi on observe de la ferrite résiduelle au centre des dendrites entourée par l'austénite  $\gamma_1$ , elle-même entourée par l'austénite  $\gamma_1$  enfin l'espace interdendritique est occupé par le liquide résiduel. Un profil de composition entre deux axes de dendrites montre bien l'évolution de la composition du nickel à partir du cœur des dendrites.



(a) coupe transversale dans un alliage péritectique (b) cartographie du nickel associée (c) profil de concentration

On peut noter (figure 99c) le profil croissant du titre du nickel de la ferrite au liquide en passant par l'austénite. Cependant malgré la finesse de notre pas d'analyse (10  $\mu\text{m}$ ), on n'a pas pu observer un net appauvrissement du nickel à l'interface. Sur l'image métallographique des zones blanches sont observées au cœur des dendrites. Ces zones qui (par expériences) devraient être des zones enrichies en nickel car l'attaque métallographique colorie en principe en clair les zones riches ne le sont pas en fait. Ceci est du probablement à un artéfact de l'attaque métallographique.

#### V - 4.1.3. Evolution de la microstructure

Les conditions opératoires de gradient et de vitesse imposés ont été choisies de façon à obtenir une structure cellulaire. Sur un barreau de TSD d'un alliage binaire (Fe-4,23%Ni), 4 coupes transversales ont été sélectionnées aux différentes étapes de la solidification. La figure 100 ci-dessous montre 4 microstructures à 1519 °C, 1517°C, 1510°C, 1497°C respectivement.

##### V - 4.1.3.1. Reaction péritectique (1519°C)

La micrographie à 1519°C correspond au début de la réaction péritectique. Elle montre une microstructure cellulaire. Chaque cellule qui est initialement ferritique commence à être entourée par de l'austénite, qui malgré tout ne recouvre pas toute la ferrite. Ces deux phases sont complétées par un liquide résiduel ayant une coloration blanche très intense. La cartographie à l'échelle de la cellule à cette température montre une structure à cœur ferritique qui commence à être entourée par l'austénite beaucoup plus riche, le tout baignant dans du liquide très enrichi. A cette température les trois phases coexistent et sont en contact mutuellement, la réaction péritectique  $l + \delta \rightarrow \gamma$  peut se déclencher.

##### V - 4.1.3.2. Transformation péritectique (1517°C)

A ce stade de la solidification la ferrite est complètement entourée par l'austénite, qui l'empêche d'être en contact avec le liquide. On parle ainsi de transformation péritectique, caractérisée par les réactions simultanées suivantes :  $\delta \rightarrow \gamma$  et  $l \rightarrow \gamma$ . La cartographie d'une cellule à 1517°C où la transformation péritectique se déroule montre un enrichissement de l'austénite formée, par rapport à l'austénite primaire formé lors de la réaction péritectique. Le liquide qui a régressé a tendance à s'enrichir en nickel.

##### V - 4.1.3.3. Réaction à l'interface $\delta/\gamma$ (1510°C)

Au cours du déroulement de la transformation péritectique, il apparaît expérimentalement un appauvrissement du nickel dans la ferrite à l'interface  $\delta/\gamma$ . Ceci est dû( à la diffusion du nickel dans l'austénite, le nickel étant un élément très gammagène. Cet appauvrissement en nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  est caractérisé métallographiquement par un liseré très sombre qui entoure la cellule ferritique. La cartographie chimique avec un pas d'analyse très fin, donne plus d'informations. En effet, non seulement on arrive à mettre en évidence la zone

appauvrie à l'interface, mais on distingue deux zones distinctes après cette zone appauvrie. Ces deux zones représentent en fait l'austénite  $\gamma_1$  issue de la transformation  $\delta \rightarrow \gamma$  et l'austénite  $\gamma_2$  issue de la transformation  $l \rightarrow \gamma$ . L'austénite  $\gamma_1$  issue de la ferrite étant plus riche en soluté que l'austénite  $\gamma_2$  issue de la solidification directe du liquide. On peut noter aussi l'existence de quelques poches de liquide résiduel enrichies en soluté.

#### V - 4.1.3.4. Rétraction de l'interface $\delta/\gamma$ (1497°C)

L'image métallographique d'une coupe transversale à 1497°C montre une structure cellulaire avec de fines bandes très sombres à l'intérieur de ces cellules. Ce qui est aussi confirmé par l'analyse chimique. A partir de la cartographie du nickel, on peut observer la formation au centre sur les diagonales de la cellule deux bandes très appauvries en nickel. Il semblerait que ces bandes très sombres à l'intérieur des cellules ne sont en fait que la rétraction de l'interface  $\delta/\gamma$  vers l'intérieur des cellules au cours de la transformation péritectique. L'analyse chimique montre aussi une diminution de la valeur du titre du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  au cours de la réaction péritectique. Du fait de la rétraction de l'interface  $\delta/\gamma$  l'intérieur des cellules s'enrichit en soluté et se différencie nettement de l'austénite issue du liquide sur l'image métallographique. Cette dernière prend une teinte nettement plus claire alors que l'austénite issue de la transformation de la ferrite est assez sombre mais peut facilement être distinguée de la ferrite résiduelle qui se trouve au centre des dendrites.

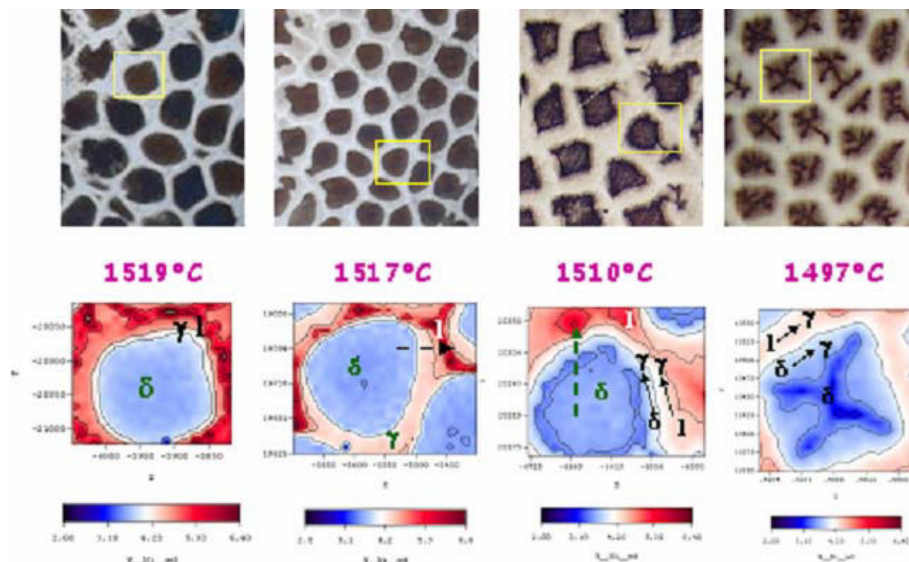
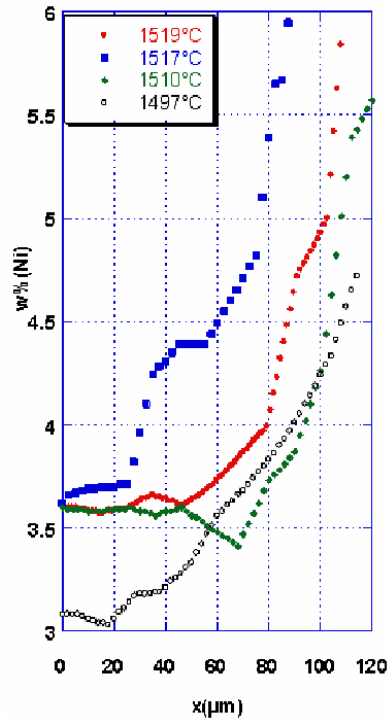


Figure 100 Genèse de la formation de la microstructure et de la microségrégation

#### V - 4.1.4. Evolution du profil de composition au cours de la solidification

Pour suivre l'évolution du profil de composition au cours de la solidification d'un alliage péritectique, des profils de composition du nickel ont été établis. Les 4 dernières coupes transversales issues de notre alliage binaire à structure cellulaire ont été utilisées pour suivre l'évolution du profil de composition. Pour ce faire, 4 profils de composition du nickel qui partent du cœur des cellules vers l'espace intercellulaire ont été tracés.



**Figure 101 Evolution du profil de composition du nickel au cours la réaction péritectique**

1519°C: Au début de la réaction péritectique à 1519 °C, la composition du nickel dans la ferrite est quasi homogène et vaut 3,6. Cette grandeur passe avec un saut brusque à 4,4 dans le faible domaine austénitique qui vient de se créer. Enfin cette grandeur passe à des valeurs entre 4,7 et 6 dans le liquide.

1517°C : A cette température, la transformation péritectique vient d'être déclenchée. On note dans le domaine ferritique une homogénéité du titre du nickel à 3,6 puis cette grandeur chute légèrement à l'interface  $\delta/\gamma$ . La transition des valeurs du titre nickel entre le domaine ferritique et austénitique ne se fait pas de façon brutale. Les valeurs du nickel dans l'austénite varient presque linéairement de 3,6 à 4. Par contre la valeur de la composition du nickel saute à 4,7 et termine à presque 6% de Nickel.

1510°C : Le profil de composition à 1510 °C montre une nette diminution du titre du nickel à l'interface. On peut noter la faible valeur atteinte à l'interface qui vaut 3,4. Le profil du nickel dans l'austénite se caractérise par une discontinuité de pente qui délimite l'austénite  $\gamma_1$  issue de la transformation de la ferrite et l'austénite  $\gamma_2$  issue de la solidification directe du liquide. Les valeurs dans l'austénite  $\gamma_1$  varient entre 3,4 et 3,7, alors qu'elles varient entre 3,7 et 4,1 dans l'austénite  $\gamma_2$ . Les valeurs du liquide résiduel sont de l'ordre de 5,5.

1497°C : La rétraction de la ferrite et de l'interface  $\delta/\gamma$  à la fin de transformation péritectique engendre un profil de composition dans la ferrite avec des valeurs de l'ordre de 3,1. Dans le solide austénitique, le profil du nickel est quasiment linéaire.

## V - 5. EFFET DE LA MICROSTRUCTURE SUR LA MICROSEGREGATION

### Structure cellulaire et structure dendritique

Pour étudier l'effet de la morphologie de la structure sur la microségrégation, notre choix s'est porté en premier sur l'alliage Fe-4,23%. Cet alliage présente une solidification primaire en ferrite  $\delta$  puis passe par un palier péritectique à 1517 °C à l'équilibre. La nature de la microstructure est fortement liée au gradient de température  $G$  et à la vitesse de solidification  $v$ , La courbe (figure 102) montre la courbe de refroidissement associée à chaque microstructure. La vitesse d'extraction est la même pour les deux essais de TSD à savoir 1,2 mm/min. Le gradient thermique a été fixé de façon à obtenir une structure dendritique pour le premier cas et une structure cellulaire pour le second cas. La valeur du gradient thermique mesurée à la température du liquidus est de 12,5 K/cm pour la structure dendritique et 78 K/cm pour la structure cellulaire.

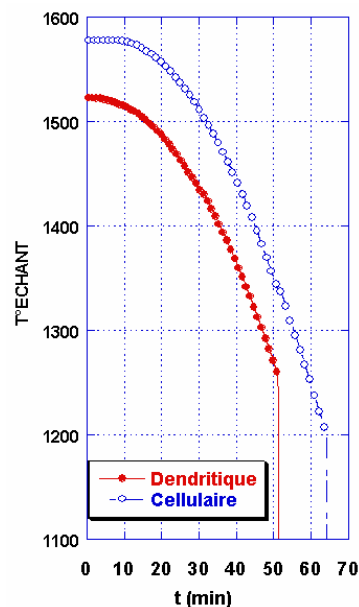


Figure 102 Thermogrammes des essais de TSD (dendritique et cellulaire)

### V - 5.1.1. Structures dendritiques

Nous avons sélectionné trois coupes transversales qui correspondent respectivement aux températures 1519°C, 1518°C et 1513°C. Sur chaque coupe transversale, une zone d'analyse de 3000  $\mu\text{m}$  \* 3000  $\mu\text{m}$  a été sélectionnée. Sur chaque zone d'analyse, nous avons caractérisé la morphologie de la microstructure, la cartographie du nickel et la courbe de fractions cumulées associée.

#### V - 5.1.1.1. Evolution de la microségrégation

Nous allons passer la discussion sur l'évolution de la microstructure car celle-ci a été traitée dans le chapitre précédent. Nous allons par contre suivre l'évolution de la microségrégation au cours de la solidification de cet alliage péritectique, dans le cas d'une microstructure dendritique (figure 103). On peut noter à 1519°C la

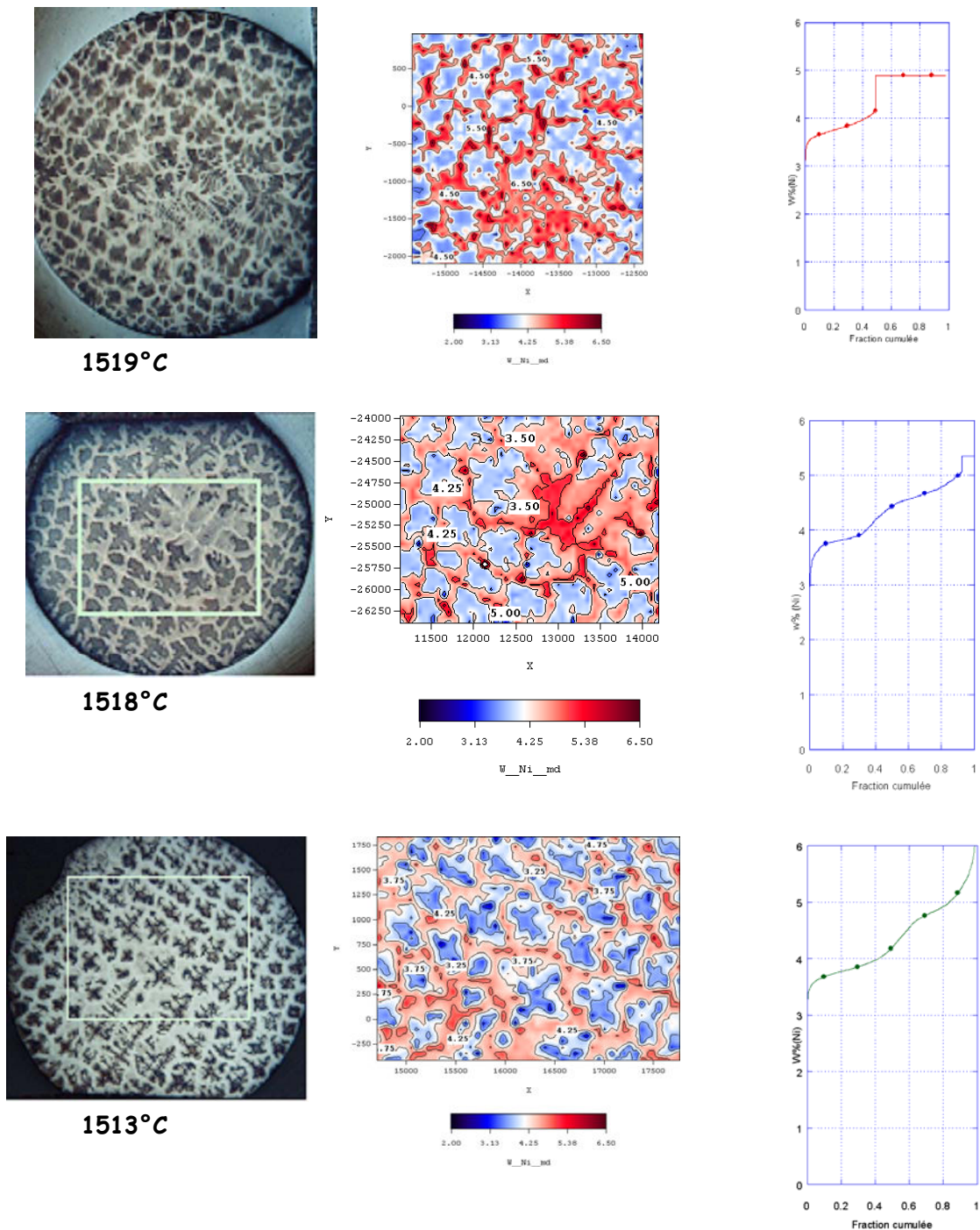
présence de deux phases distinctes : le liquide et la ferrite. La cartographie associée reproduit fidèlement la microstructure, avec une forte ségrégation positive dans le liquide et une légère ségrégation négative dans la ferrite. La courbe de fractions cumulées à cette température présente un profil presque linéaire, hormis au début de la courbe. A 1518°C, la réaction péritectique est déjà entamée et on constate la présence de trois phases :

- La ferrite résiduelle en sombre.
- L'austénite en gris foncé.
- Le liquide sous forme de filaments très clairs.

La cartographie chimique montre aussi trois zones de ségrégation bien distinctes:

- une zone fortement ségrégée au centre, probablement le liquide résiduel;
- une zone ségrégée négativement, qui correspond a priori à la ferrite;
- une zone légèrement ségrégée positivement qui correspond à l'austénite.

Sur la courbe de fractions cumulées, on peut observer une nette discontinuité de la pente dans la partie solide au niveau de ( $f=0,30$ ) dénotant ainsi la présence de deux phases solides, ferrite et austénite. Sur la partie correspondante à l'austénite, on note aussi un net changement de pente ( $f=0,50$ ) qui délimite l'austénite qui provient de la transformation de la ferrite et celui qui provient d'une solidification directe du liquide. On observe aussi une nette augmentation du titre du nickel dans le liquide, au cours de la réaction péritectique. Cette valeur passe de 4,8 à 1519 °C à 5,4 sur la coupe qui correspond à 1518°C.



**Figure 103 Evolution de la microstructure, de la ségrégation au cours de la solidification d'un alliage péritectique de structure dendritique.**

A 1513 °C, la réaction péritectique a largement progressé et la ferrite bien régressé entre 1518°C et 1513°C. La cartographie chimique du nickel confirme cette progression par un enrichissement du contour de la ferrite qui s'est transformée en austénite. La forme de la courbe de fractions cumulées semble se lisser et la forte pente observée au début de la réaction péritectique s'estomper.

### V - 5.1.1.2. Evolution des courbes de fractions cumulées

La superposition des trois courbes de fraction cumulée montre :

- Un enrichissement du titre du nickel dans le liquide au cours de la solidification
- Un léger enrichissement de la ferrite en nickel lors du début de la réaction péritectique
- L'apparition d'une forme caractéristique de la courbe de fractions cumulées et des points singuliers lors de la réaction péritectique.
- L'appauvrissement du nickel à l'interface ferrite/austénite lors de la réaction péritectique caractérisé par les faibles valeurs du nickel au début de la courbe à 1518°C et 1513°C.

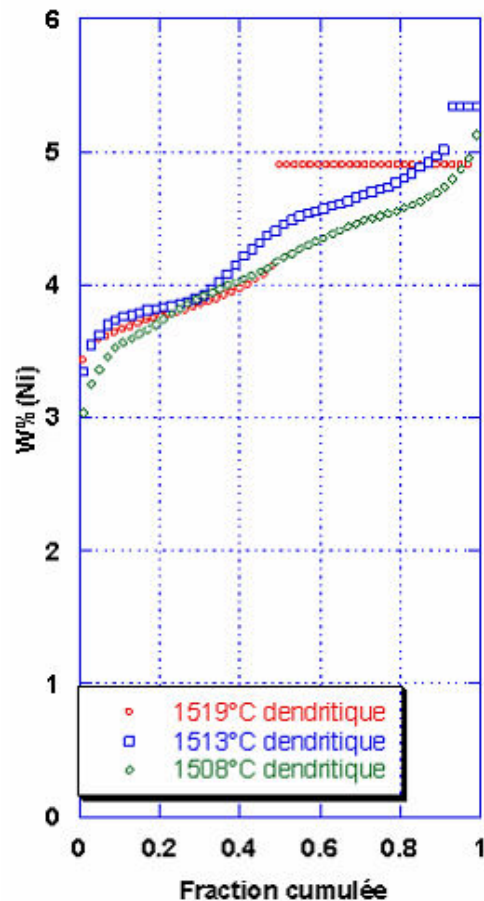


Figure 104 Evolution des courbes de fractions cumulées

### V - 5.1.2. Structures cellulaires

Pour caractériser la structure cellulaire, nous avons sélectionné quatre coupes transversales à 1519°C, 1517°C, 1510°C et 1497°C (figure 105). Nous avons à chaque fois sélectionné une zone d'analyse de l'ordre de 2 à 4 mm<sup>2</sup>

#### V - 5.1.2.1. Evolution de la microségrégation

A 1519 °C, on observe le début de la réaction péritectique, avec une structure cellulaire très fine, la taille moyenne de la structure cellulaire étant de 260 µm. La cartographie chimique du nickel qui reproduit la microstructure montre en plus à

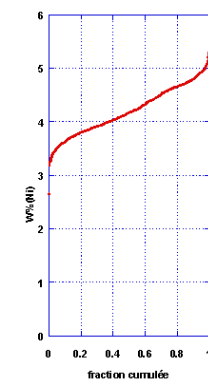
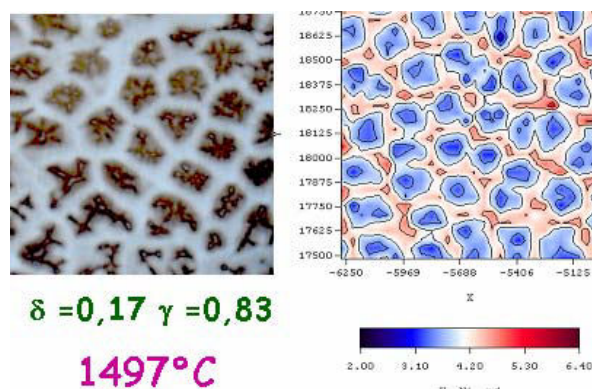
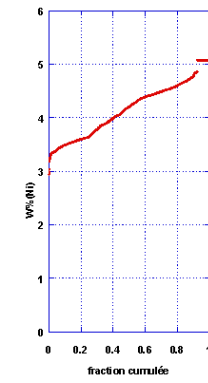
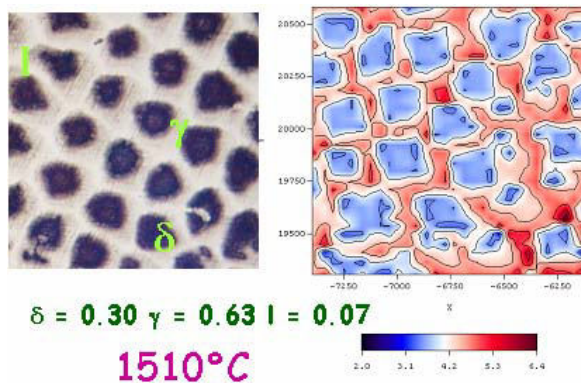
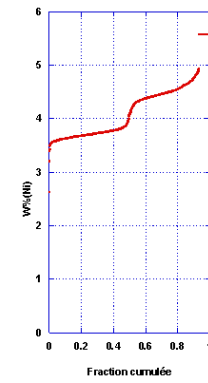
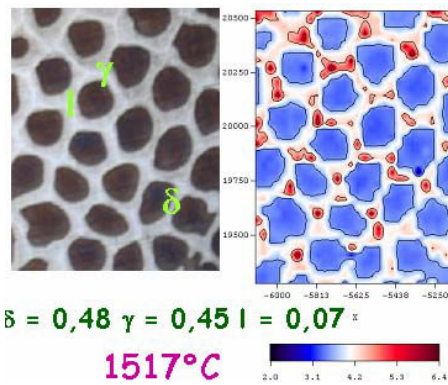
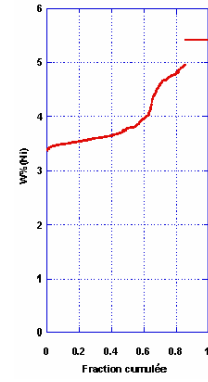
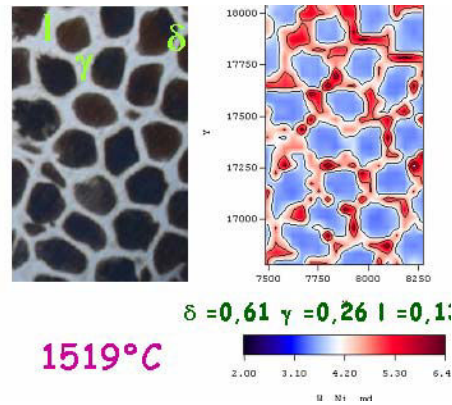


cette température trois zones de ségrégation qui correspondent aux trois phases qui coexistent (liquide, ferrite, austénite). La courbe de fractions cumulées du titre du nickel présente un changement brut de pente à 0,6 de fraction solide, ce qui correspond à la fraction surfacique de ferrite mesurée par analyse d'images. Dans la partie qui correspond à l'austénite, on observe une cassure de la pente scindant en deux parties cette portion de la courbe. Ceci, comme pour le cas de la structure dendritique, distingue l'austénite qui provient de la transformation de la ferrite et celle qui provient de la solidification directe du liquide.

A 1517°C, la réaction péritectique est bien entamée, et l'austénite commence à entourer les cellules de ferrite. La cartographie chimique, montre aussi un léger enrichissement de la ferrite au cours de la réaction péritectique. La courbe de fractions cumulées du nickel à cette température montre aussi une rupture brutale de la pente à 0.45. Cette valeur correspond bien à la valeur de fraction surfacique mesurée par analyse d'image. La discontinuité dans la pente de l'austénite semble, par contre, s'estomper. Le titre du nickel dans le liquide n'augmente pas par rapport à la coupe précédente.

A 1510 °C, la microstructure montre une bande noirâtre autour de la ferrite, ceci est dû à l'appauvrissement du nickel dans la ferrite à l'interface ferrite/austénite. Bien que le maillage des points d'analyse à la microsonde soit assez grossier, on décèle cependant des zones appauvries en nickel. Elles se situent à la périphérie des cellules de ferrite. La courbe de fractions cumulées à cette température change de forme et a tendance à se lisser, mais présente néanmoins deux discontinuités, l'une à 0.25 ce qui correspond approximativement à la fraction surfacique de la ferrite et une autre au niveau de 0,60 qui délimite les deux austénites.

A 1497 °C, tout le liquide a disparu. Juste après la fin de la solidification, on observe sur une coupe métallographique une accentuation de l'appauvrissement de la ferrite à l'interface ferrite/austénite. On remarque de plus que cette interface se contracte vers le cœur des dendrites. Sur la cartographie chimique la contraction de cette interface est représentée par une zone compacte à faible teneur en nickel. En fait, ce n'est pas une zone compacte, mais le filament de l'interface : le maillage est assez grossier et ne permet pas de refléter à cette échelle la contraction de cette interface. La courbe de fractions cumulées devient encore plus lisse et ne présente pas de points de discontinuités, sauf un léger changement de pente à une fraction cumulée de 0,7.



0

Figure 105 Evolution de la microstructure et de la microségrégation

### V - 5.1.2.2. Evolution des courbes de fractions cumulées

La (figure 106) représente l'évolution des courbes de fractions cumulées au cours de la solidification de l'alliage péritectique Fe-4,23%Ni. En comparant trois courbes de fractions cumulées à trois températures différentes, on peut noter :

- une augmentation du titre du nickel dans la ferrite au début de la réaction péritectique,
- une diminution du titre du nickel dans la ferrite à la fin de réaction péritectique,
- la présence de faibles valeurs du titre du nickel au début de la courbe de fractions cumulées à la fin de la réaction péritectique. Ceci étant dû à l'appauvrissement du nickel dans la ferrite à l'interface ferrite/austénite.

On peut aussi noter la correspondance entre la première discontinuité et la fraction de ferrite mesurée par analyse d'images.

Le deuxième décrochement des courbes délimite l'austénite issue de la ferrite et celle issue du liquide.

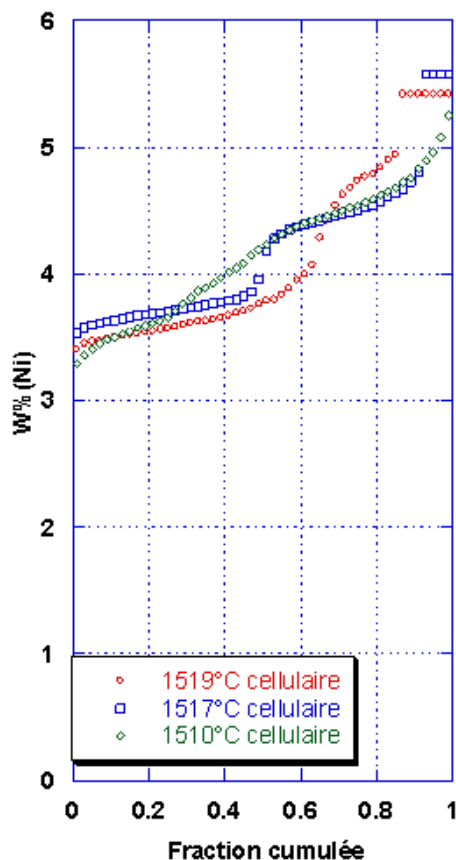


Figure 106 Evolution des courbes de fractions cumulées

### V - 5.1.3. Synthèse

Pour estimer l'effet de la microstructure sur la microségrégation, nous allons comparer la microségrégation sur les deux microstructures étudiées précédemment. Nous allons comparer l'évolution des courbes de fractions

cumulées pour la structure dendritique et la structure cellulaire. Les courbes cumulées des deux microstructures qui correspondent à la même température ou à une température très proche ont été superposées sur la (figure 107).

On notera les observations suivantes :

Le déclenchement de la réaction péritectique est plus précoce dans le cas de la structure dendritique.

L'appauvrissement du nickel à l'interface ferrite/austénite, caractérisée par les faibles valeurs au début de la courbe de fractions cumulées est plus prononcée dans le cas d'une structure dendritique

Les courbes de fractions cumulées dans la structure cellulaire ont des formes nettement plus marquées au début de la réaction péritectique et se lissent brusquement en fin de solidification. Les courbes de fractions cumulées associées à la structure dendritique sont moins marquées que celles du cellulaire. L'intensité finale de la microségrégation ne semble pas dépendre de la microstructure comme le montre, les courbes qui correspondent à la fin de la solidification.

Les courbes de fractions cumulées de la structure dendritique présentent au début une importante pente qu'on ne retrouve pas sur les courbes de la structure cellulaire. Ceci peut s'expliquer par la forte diffusion du nickel dans le cas d'une structure dendritique.

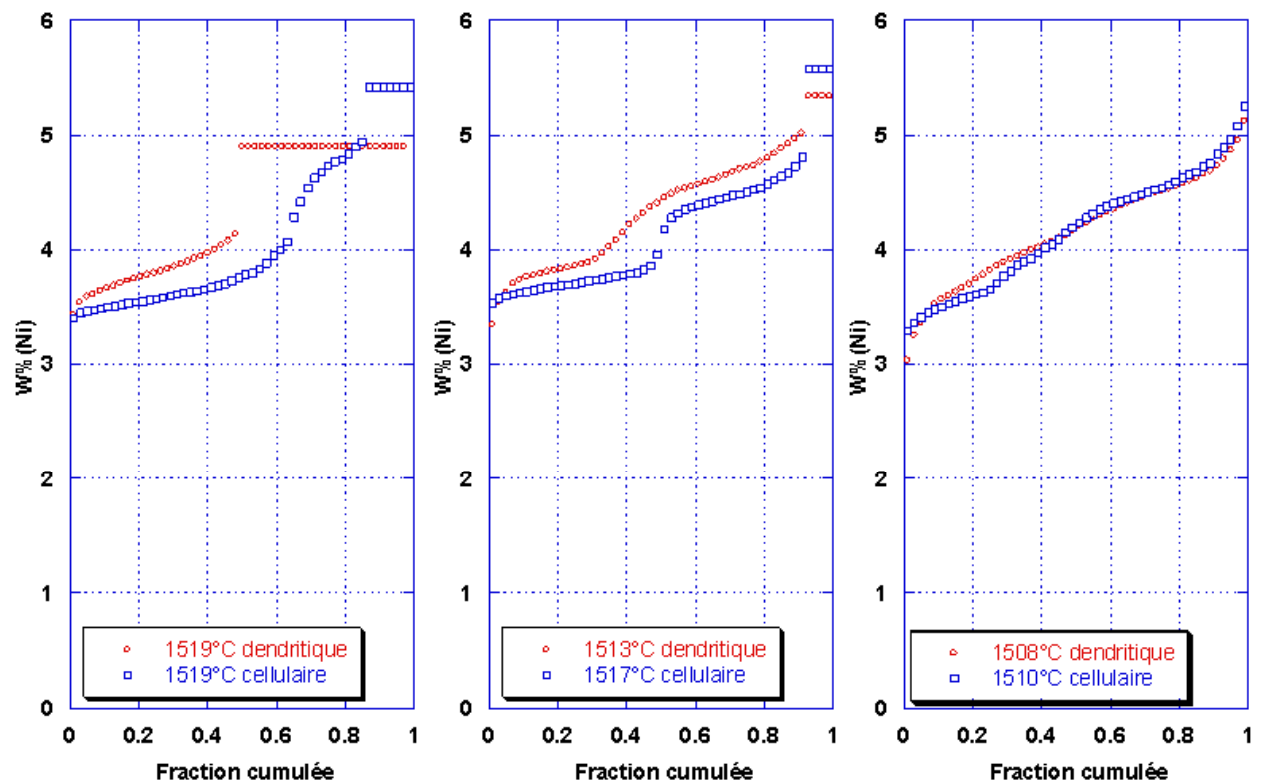


Figure 107 Effet de la microstructure sur l'évolution des courbes de fractions cumulées en conditions de croissances forcée.

## V - 6. SYNTHÈSE

Les principaux résultats de ce chapitre sur la formation de la microségrégation sont regroupés ci-dessous.

Nous avons caractérisé expérimentalement grâce aux courbes de fractions cumulées l'évolution de la ségrégation au cours de la réaction péritectique. Nous avons pu mettre en évidence la différence de forme des courbes de fractions cumulées au premier stade de la solidification ( $L+\delta$ ) et au cours de la réaction péritectique ( $L+\delta+\gamma$ ).

Nous avons par la suite tracé l'évolution des courbes de fractions cumulées au cours de la transformation péritectique. Ceci nous a permis d'expliquer l'origine de la ségrégation observée en fin de solidification dans le cas des aciers péritectiques et d'expliquer aussi la genèse de la formation de cette ségrégation.

Nous avons montré métallographiquement l'évolution de la microstructure au cours de la réaction péritectique. Nous avons aussi différencié métallographiquement la réaction péritectique de la transformation péritectique. L'appauvrissement du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  a été clairement observé et confirmé par des cartographies chimiques à la microsonde. L'évolution de la contraction de la ferrite au cours de la transformation péritectique a été suivie métallographiquement. Ceci nous a permis de montrer la rémanence d'une ferrite résiduelle dans le cas de la transformation péritectique dans les alliages Fe-4%Ni et Fe-4%Ni-0.1%C. Nous avons aussi tracé l'évolution des taux de phase du liquide, de l'austénite et de la ferrite au cours de la solidification d'un alliage ternaire péritectique. La comparaison entre un alliage ayant une solidification primaire en ferrite Fe-4%Ni-0.1%C et un autre ayant une solidification primaire en austénite Fe-4%Ni-0.4%C montre une grande évolution de la microségrégation au cours de la solidification pour un acier ayant une solidification primaire en ferrite alors que les courbes de fractions cumulées restent stables pour un acier ayant une solidification primaire en austénite. Par contre dans le cas de la ségrégation du chrome, on constate l'effet inverse, la ségrégation est plus intense pour une solidification primaire en austénite que par une solidification en ferrite. On notera aussi que la ségrégation du chrome n'évolue pas beaucoup au cours de la solidification d'un acier ayant une réaction péritectique.

L'analyse chimique fine nous a permis de suivre l'évolution des profils de concentration au cours de la solidification, que ce soit au niveau du front de solidification dans le cas d'un front plan ou au niveau de l'interface  $\delta/\gamma$ . On a pu détecter l'appauvrissement du nickel à l'interface  $\delta/\gamma$  et différencier l'austénite qui provient de la solidification du liquide et l'austénite qui provient de la transformation péritectique de la ferrite par la nette discontinuité de pente du profil du nickel dans l'austénite. Cette discontinuité est souvent occultée par la méthode des courbes de fractions cumulées. D'où la nécessité d'allier ces 2 méthodes pour étudier finement la microségrégation.

L'effet de la taille de la structure sur la ségrégation a été aussi analysé. On a montré que l'augmentation de la distance entre branches primaires  $d_p$  modifie la forme de la courbe de fractions cumulées et diminue la ségrégation chimique en

aplatissant la forme de la courbe par le fait de la diminution du coefficient de rétrodiffusion dans le solide. Pour montrer l'effet de la microstructure sur la microségrégation, nous avons tracé l'évolution des courbes de microségrégations au cours de la réaction péritectique et ceci pour 2 microstructures : une structure dendritique colonnaire et une structure colonnaire cellulaire. Des résultats présentés précédemment, on ne trouve pas de différences majeures entre les courbes de 2 microstructures et on peut dire, à priori, en se basant sur nos essais expérimentaux sur l'alliage Fe-4.23%Ni que la microstructure n'a pas d'effet notable sur la microségrégation.



***Chapitre V***

***Discussions***





## VI - DISCUSSIONS

### VI - 1. LE MODELE NUMERIQUE

Le modèle numérique qui est le second volet de cette étude expérimentale devait répondre aux conditions suivantes :

- être valable pour un système multiconstitué,
- prendre en compte les équilibres thermodynamiques entre phases de façon plus fine que par des coefficients de partage constants,
- permettre de traiter le cas de solidifications avec transformation péritectique, donc prenant en compte la diffusion dans le solide,
- pouvoir être couplé avec un code de macroségrégation, donc valable en système ouvert,
- être peu consommateur de temps de calcul pour pouvoir être couplé avec un modèle de macroségrégation comme SOLID.

Dans la modélisation, la situation est réduite à un problème monodimensionnel. La microségrégation est décrite dans un domaine de longueur fixe, notée  $\lambda$ . On suppose que la couche de ferrite est entièrement recouverte par l'austénite dans l'étape de transformation péritectique. Cette dernière est la combinaison de deux types de transformation à haute température : une transformation à l'état solide,  $\delta \rightarrow \gamma$ , et la solidification de l'austénite,  $l \rightarrow \gamma$ ). L'équilibre thermodynamique est supposé atteint aux interfaces, ce qui signifie que les fractions massiques interfaciales de chaque soluté peuvent être déterminées au moyen du diagramme d'équilibre des phases. Une méthode de Landau, particulièrement bien adaptée aux problèmes de diffusion avec mouvements d'interfaces, est utilisée pour résoudre l'équation de conservation du soluté dans chaque phase.

### VI - 2. MODELISATION DE LA MICROSEGREGATION EN CROISSANCE DENDRITIQUE COLONNAIRE

L'étude bibliographique a permis de mettre en évidence les principales difficultés que pose la prédiction quantitative de la microségrégation, à savoir :

- La résolution de l'équation de la diffusion qui requiert la connaissance des coefficients de diffusion de chaque élément dans chaque phase, ainsi que des microstructures très complexes et des distances caractéristiques à l'échelle dendritique ;
- La prise en compte des transformations de phases en cours de solidification ;
- La détermination de quantités thermodynamiques qui nécessite, surtout pour des alliages multiconstitués, la connaissance du diagramme d'équilibre de phases correspondant ;

- La prise en compte du mouvement du liquide (dans le cadre de ce travail, le solide est supposé fixe) qui induit des modifications des propriétés physiques du mélange pâteux à l'échelle dendritique (les conditions de refroidissement ainsi que les teneurs moyennes en soluté, qui résultent respectivement du transport macroscopique de l'énergie et de la masse en soluté, sont différentes en chaque point du lingot).

### **VI - 3. RESULTATS SUR LESQUELS A PU ETRE MENE LA COMPARAISON SIMULATION (LT) / EXPERIENCES (AA)**

Le travail de modélisation mené en parallèle de cette étude expérimentale nous a amené à confronter nos résultats expérimentaux à ceux produits par les calculs numériques. L'objectif de cette comparaison n'étant pas une comparaison systématique de tous les résultats expérimentaux mais de valider le modèle numérique avec quelques résultats expérimentaux.

Microségrégation dans le métal solidifié

#### VI - 3.1.1. Effet de la nature du premier solide déposé

##### VI - 3.1.1.1. Alliages Fe-Ni-C

Nous allons en premier lieu comparer nos résultats expérimentaux sur l'effet du premier solide déposé sur la microségrégation avec ceux issus de la modélisation. Nous allons tout d'abord confronter nos résultats expérimentaux avec ceux prédis par un modèle simple de microségrégation tel que celui de Gulliver-Scheil en fin de solidification. La figure (108) est une illustration de cette comparaison.

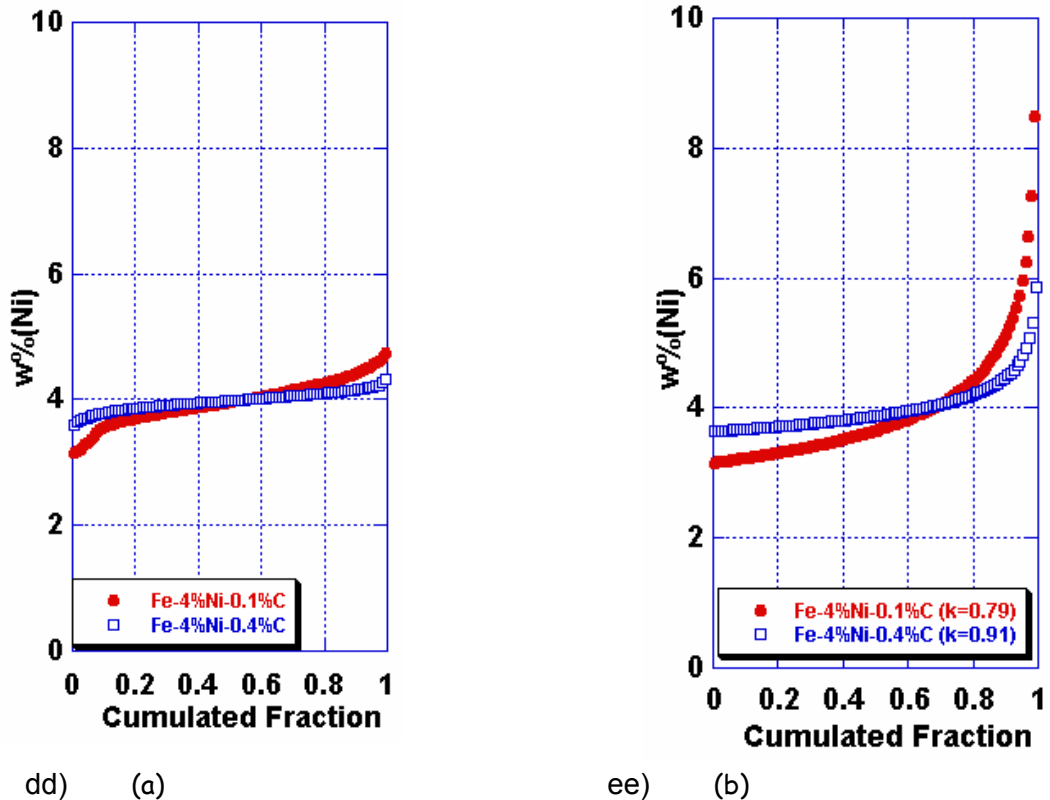


Figure 108 Courbes de fractions cumulées, (a) Expérience (A.A) (b) Modèle de Gulliver-Scheil avec un coefficient de partage  $k$  non constant (L.T)

On peut noter les observations suivantes :

- La forme des courbes de fractions cumulées prédites par le modèle est sensiblement différente de celles issues du travail expérimental.
- Expérimentalement, on ne trouve pas un enrichissement aussi fort que celui prédit par le modèle de Gulliver –Scheil en fin de solidification.
- Le décrochement observé expérimentalement sur la courbe de l'alliage à 0,1% de C, n'est pas reproduit par la courbe théorique.
- Le modèle toutefois montre comme l'expérience une ségrégation plus intense avec une solidification primaire en ferrite que dans le cas d'une solidification primaire en austénite Gamma.

La confrontation entre les résultats expérimentaux et ceux du modèle développé par L.Thuinet semble mieux prédire les courbes finales de ségrégations. A partir de la (figure 109) on peut noter les observations suivantes:

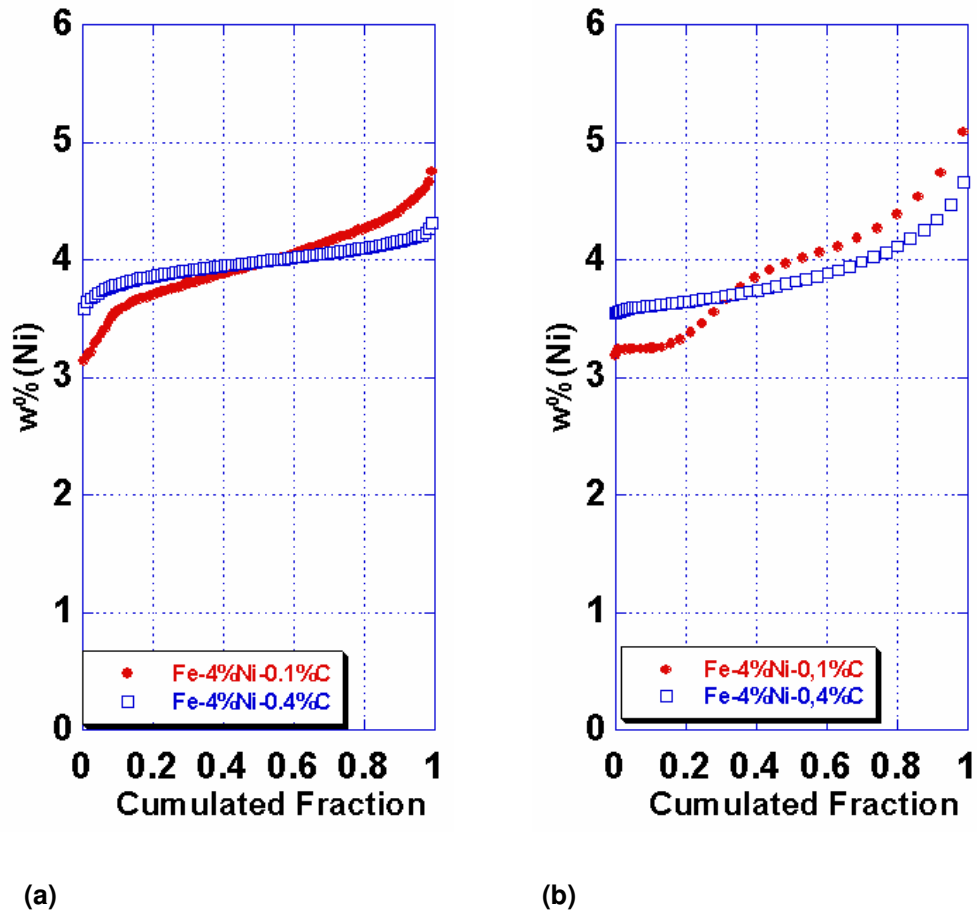


Figure 109 Courbes de fractions cumulées de teneur en nickel (a) Expérience (A.A) (b) Modélisation (L.T)

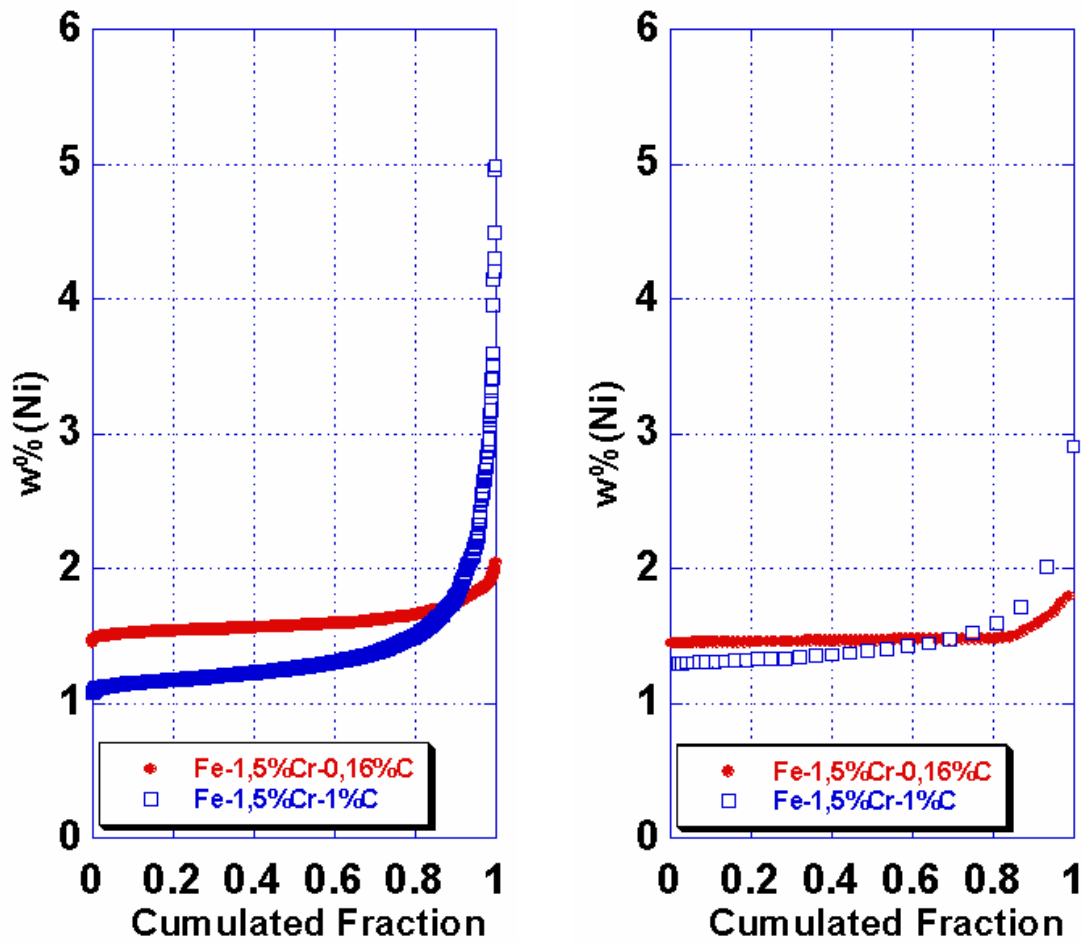
- Le modèle reproduit assez fidèlement la forme générale des courbes de fractions cumulées pour les deux alliages.
- Il reproduit en particulier le décrochement observé au début de la courbe de l'alliage à 0,1% de C.
- Les valeurs du titre du nickel en fin de solidification sont comparables à celles trouvées expérimentalement, contrairement au cas du modèle de Gulliver-Scheil.
- Là aussi, l'expérience et la modélisation convergent sur le fait que la solidification primaire en ferrite engendre une plus forte ségrégation que celle en austénite.

#### VI - 3.1.1.2. Alliages Fe-Cr-C

La même démarche que précédemment pour la comparaison expérience/modélisation a été suivie pour le chrome. Pour cela nous avons comparé les courbes de fractions cumulées expérimentales avec ceux de la modélisation pour deux alliages Fe-1,5%Cr-0,16%C ayant une solidification primaire en ferrite et Fe-1,5%Cr-1%C ayant une solidification primaire en

austénite. Les courbes de la (figure 110), qui montrent côte à côte les courbes de fractions cumulées expérimentales et théoriques, reflètent :

- Une concordance entre l'expérience et la modélisation en ce qui concerne l'alliage à 0,16% de C.
- Une même forme et un même comportement global pour les courbes expérimentales et numériques de l'alliage à 1%C.



(a) (b)  
Figure 110 courbes de fractions cumulées des teneurs en chrome (a) Expérience (A.A) (b) Modélisation (L.T)

- La fin de solidification semble correspondre à une ségrégation plus faible selon la modélisation pour l'alliage à 1% de C que les résultats expérimentaux relatifs à l'acier 100C6.
- Dans le cas du chrome, on peut observer, contrairement au cas du nickel que la solidification primaire en ferrite induit une ségrégation moins forte que celle de la solidification primaire en austénite.

## Evolution de la microségrégation

Dans cette section, nous avons voulu confronter quelques résultats expérimentaux avec ceux prédits par la modélisation. Pour cela nous avons comparé les courbes expérimentales de fractions cumulées construites en cours de solidification dirigée, figure 111(a) et celles qui sont établies par le modèle figure 111(b).

### VI - 3.1.2. Solidification primaire en austénite

La figure 111, montre la confrontation des deux résultats pour une solidification primaire en austénite (Fe-4%Ni-0.4%C). Nous pouvons observer :

- Une très bonne prédiction du modèle des résultats expérimentaux au cours de la solidification.
- Une stabilité des courbes de fractions cumulées au cours de la solidification expérimentalement et numériquement.

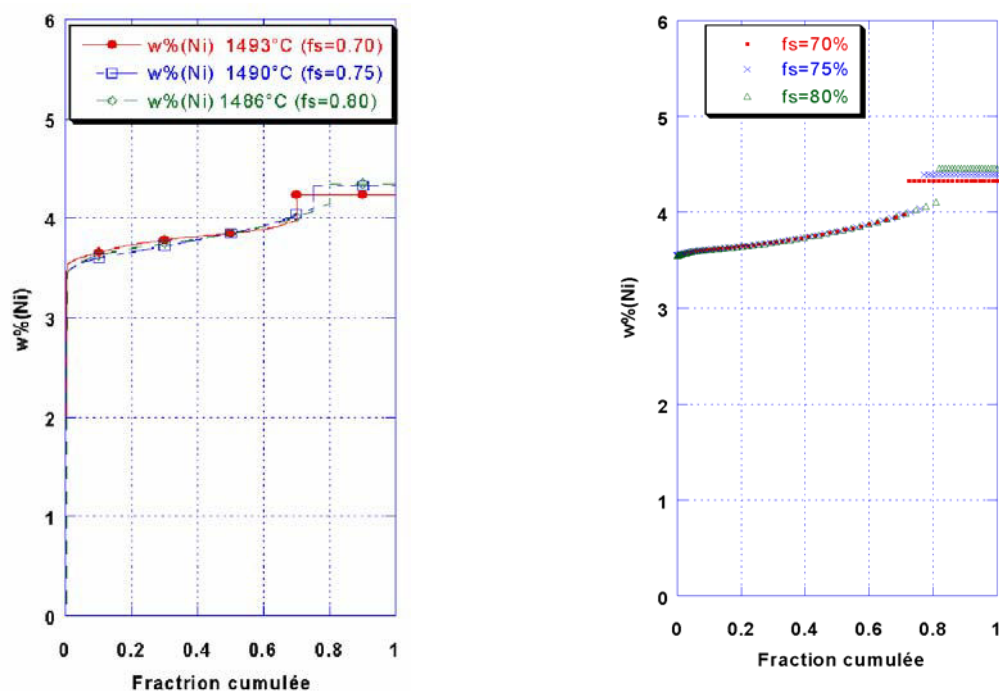
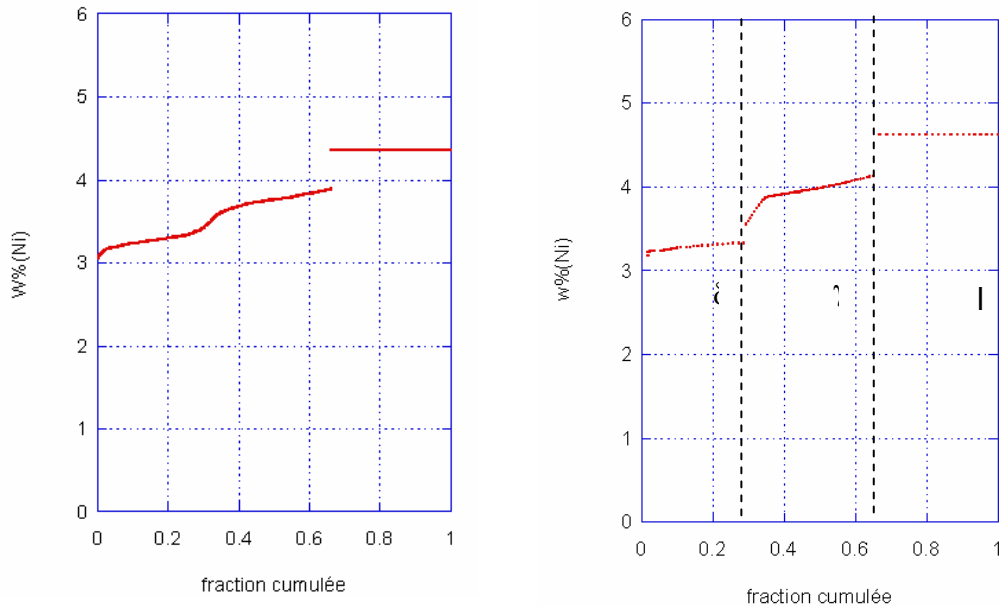


Figure 111 Evolution des courbes de fractions cumulées de teneur en nickel pour l'alliage (Fe-4%Ni-0.4%C) (a) Expérience (A.A) (b) Modélisation (L.T)

### VI - 3.1.3. Solidification primaire en ferrite

La comparaison précédente a montrée la validation du modèle dans le cas simple d'une solidification primaire en austénite. La force du modèle tient du fait qu'il peut prédire l'évolution de la microségrégation au cours d'une solidification primaire en ferrite, qui passe par la suite par une transformation péritectique. Pour confirmer nos résultats expérimentaux et valider le modèle nous avons suivi l'évolution des courbes de fractions cumulées au cours de la solidification de l'alliage péritectique Fe-4%Ni-0,1%C. Pour cela nous avons confronté la courbe expérimentale figure

112(a) et la courbe donnée par le modèle figure 113(b) à une fraction solide de  $f=0,65$  (b).



**Figure 112** Courbe de fractions cumulées de teneur en nickel dans l'alliage Fe-4%Ni-0,1%C à un stade intermédiaire de la solidification ( $f=0,65$ ) (a) Expérience (A.A) (b) Modélisation (L.T)

On peut énoncer les conclusions suivantes:

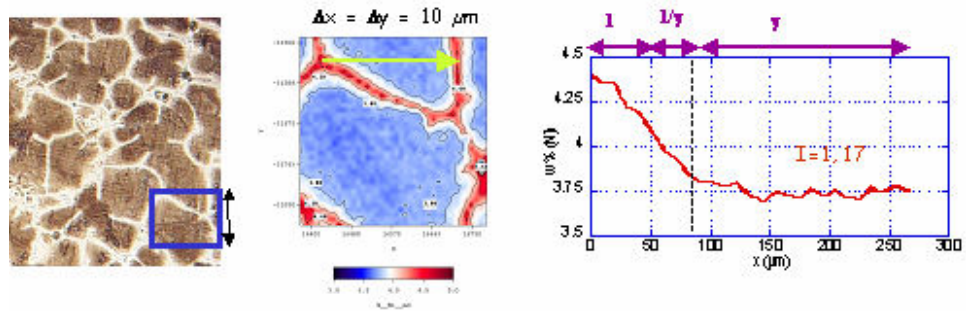
- Le modèle reproduit bien l'allure générale de la courbe expérimentale.
- La discontinuité de la pente dans le domaine austénitique de la courbe, observée expérimentalement, est bien reproduite par le modèle.
- La discontinuité prédite par le modèle entre le domaine ferritique et le domaine austénitique n'est pas détectable expérimentalement à cause d'un effet de prise de moyenne de la microsonde aux interfaces.
- Un léger appauvrissement est observé au début de la courbe expérimentale et de la courbe issue du modèle

Profils de composition

#### VI - 3.1.4. Solidification primaire en austénite

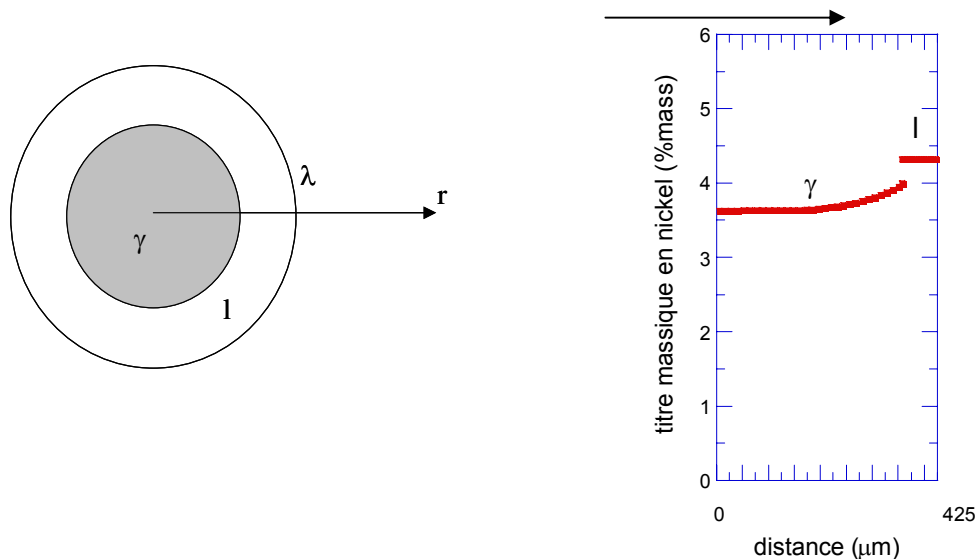
Dans le cas d'une solidification primaire en austénite, le profil de composition du nickel à travers l'interface liquide/solide au cours de la solidification ne présente pas de singularité particulière. On note un profil du nickel quasi plat (figure 113) dans le solide et profil linéaire dans le liquide. Ce profil est en fait « trompeur » car il trahit, la ségrégation dans le liquide au cours de la trempe. La valeur moyenne de la composition représente la valeur moyenne théorique observée dans le liquide, loin de l'interface liquide/ solide.





**Figure 113 : Profil de composition du nickel au voisinage de l'interface solide/liquide (Fe-4%Ni-0,1%C).**

Le modèle numérique prédit un comportement similaire à celui mesuré expérimentalement, hormis le fait qu'il ne tient pas compte de la ségrégation du nickel due à la trempe. Cette comparaison, certes, confirme la convergence des deux résultats expérimentaux et ceux de la simulation (figure 114). En fait, le but de cette comparaison est de montrer la différence notable entre le profil dans une solidification primaire en austénite et dans une solidification primaire en ferrite, qui va être détaillée par la suite.



**Figure 114 Profil de concentration du nickel calculé dans le cas d'une solidification primaire en austénite.**

### VI - 3.1.5. Solidification primaire en ferrite

Les résultats expérimentaux présentés dans le chapitre V montrent un profil caractéristique du nickel dans le cas d'une solidification primaire en ferrite avec la présence de la réaction péritectique. La (figure 115) montre une déplétion du titre du nickel dans la ferrite à l'interface ferrite/austénite. On peut noter aussi une rupture nette de la pente du titre du nickel dans l'austénite. Cette rupture marque la frontière entre l'austénite issue de la transformation de la ferrite dû à la réaction péritectique et l'austénite issue de la solidification directe du liquide.

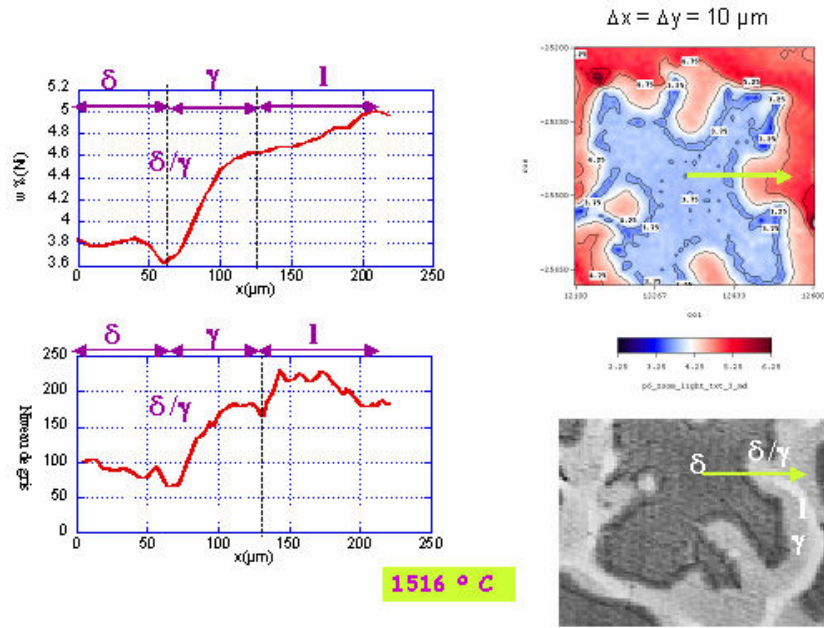


Figure 115 Profil expérimental de la concentration du nickel du cœur de la dendrite jusqu'au liquide interdendritique.

Il est fort intéressant de constater que le profil issu de la modélisation (figure 116), montre et confirme la même allure du titre du nickel du cœur de la dendrite vers le liquide interdendritique. La déplétion du titre du nickel dans la ferrite à l'interface ferrite/austénite et la rupture de la pente dans l'austénite confirment bien les résultats expérimentaux.

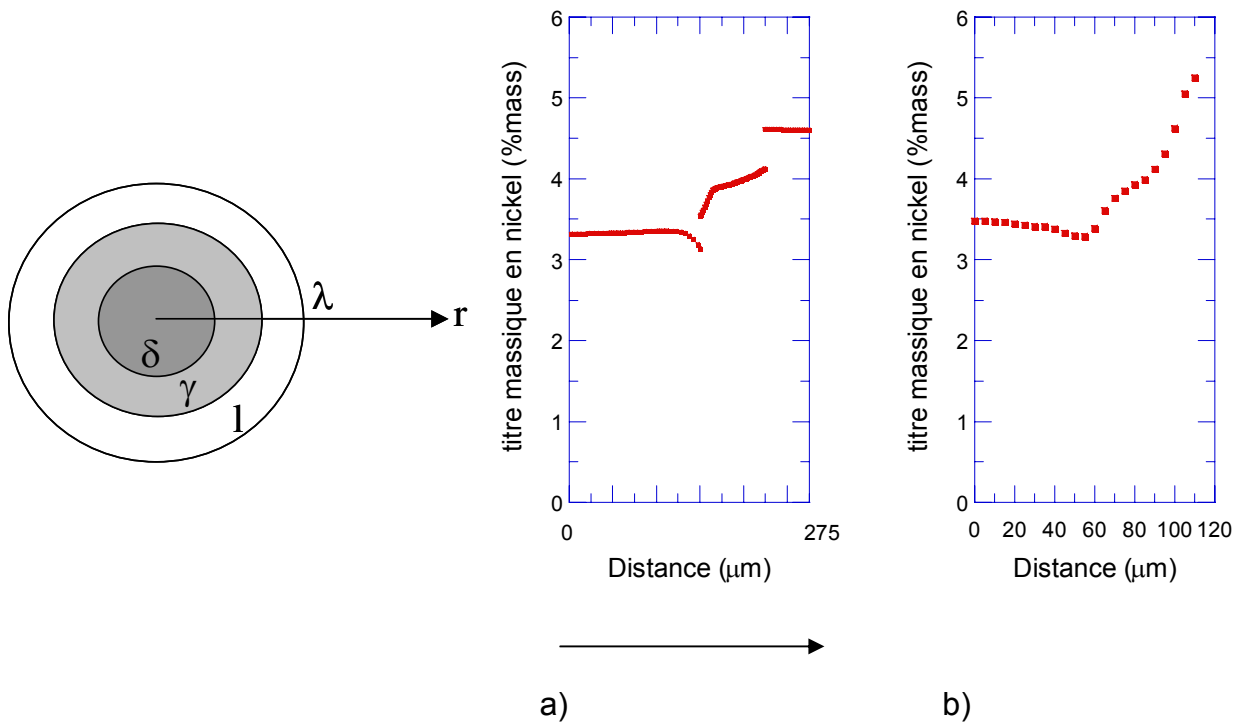


Figure 116 a) profil calculé par le modèle à morphologie simplifiée en assumant une géométrie axisymétrique et  $\lambda = \lambda_1/2$ , b) profil expérimental

## Effet de la taille de la structure

Nous avons montré que la forme de fraction cumulée sur un barreau de TSD dépendait de la zone d'analyse. La figure 117a illustre ce résultat expérimental. En effet on peut voir que la courbe de fraction cumulée avec une distance entre branches primaires de 660  $\mu\text{m}$  est plus aplatie que celle avec 330  $\mu\text{m}$ . Il en découle que l'augmentation de la taille caractéristique augmente le titre du soluté dans le premier solide déposé, par rapport à la dernière partie liquide à se solidifier. La diminution de la taille caractéristique a tendance à rendre la courbe plus linéaire et ceci s'explique par les effets diffusifs du nickel dans le solide. Notons que les titres massiques ont été normalisés par rapport à chaque valeur moyenne.

Là aussi, la modélisation reproduit fidèlement l'effet de la taille de la structure sur la forme de la courbe de fraction cumulée à savoir une tendance à la linéarisation de la courbe de fraction cumulée avec la diminution de la taille caractéristique.

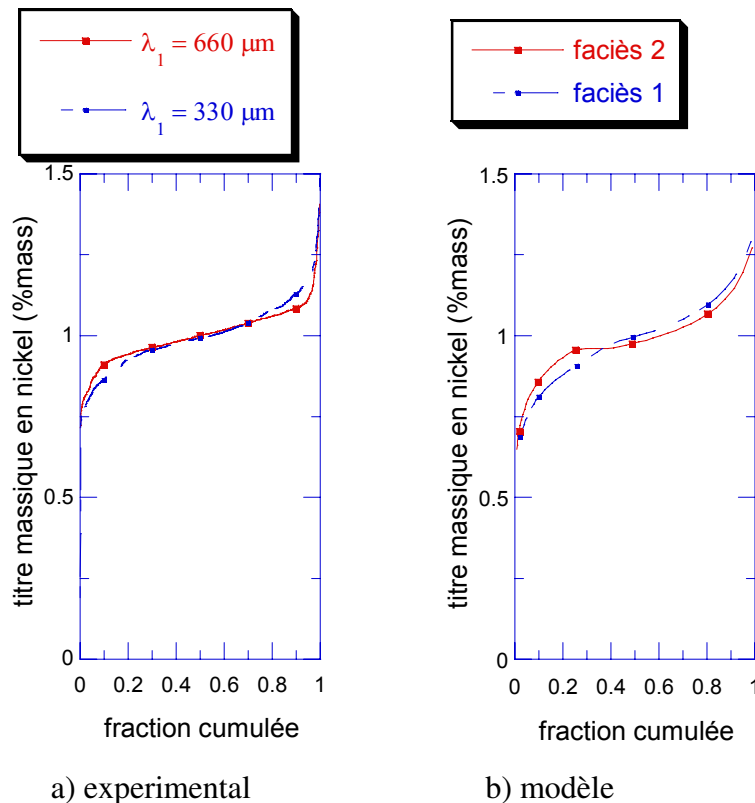


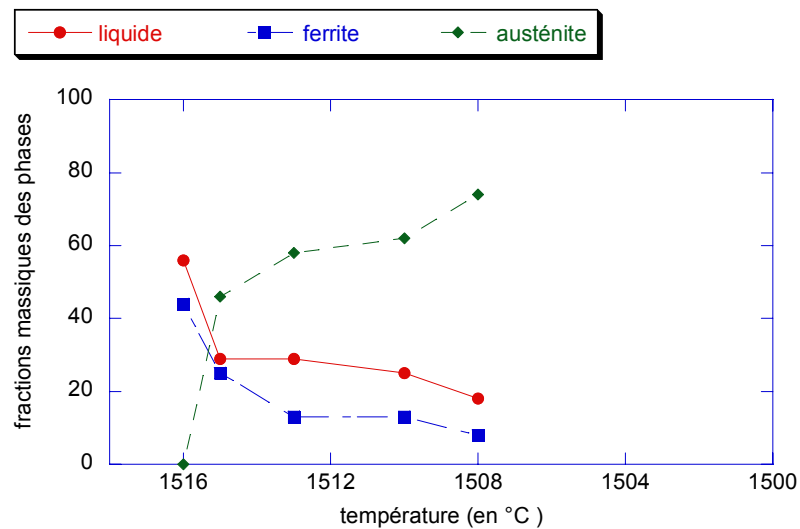
Figure 117 Effet de la distance entre branches primaires sur les profils cumulés  
(a) Expérience (A.A), (b) Calcul (L.T)

## Evolution des fractions de phases

### Solidification primaire en ferrite

Le tracé expérimental des courbes d'évolution des fractions de phases en fonction de la température a permis de comparer nos résultats à ceux prédits par la modélisation dans le cas d'une solidification primaire en ferrite.

Les courbes expérimentales (figure 118) montrent une décroissance rapide de la ferrite et du liquide au moment du déclenchement de la réaction péritectique. Cette décroissance est par la suite moins prononcée après l'occurrence de la réaction péritectique. Pour la phase austénite, on observe aussi une forte croissance du taux de phase de l'austénite qui après l'occurrence de la réaction péritectique continue de croître mais de façon moins rapide.



**Figure 118 : Evolution en cours de solidification des fractions de phase mesurées expérimentalement**

Les résultats du modèle numérique [59], semblent être globalement en accord avec les résultats expérimentaux. On pourra noter de plus que le taux de ferrite augmente au début de la solidification et de la réaction péritectique, ce qu'on n'a pas pu observer expérimentalement.

Ceci peut s'expliquer par le faible intervalle de solidification qui ne laisse pas la possibilité d'avoir plusieurs coupes transversales. Il serait intéressant de refaire d'autres essais avec de faibles vitesses de solidification et ceci pour obtenir un étalement de cet intervalle de solidification sur la coupe longitudinale du barreau d'essai de TSD.

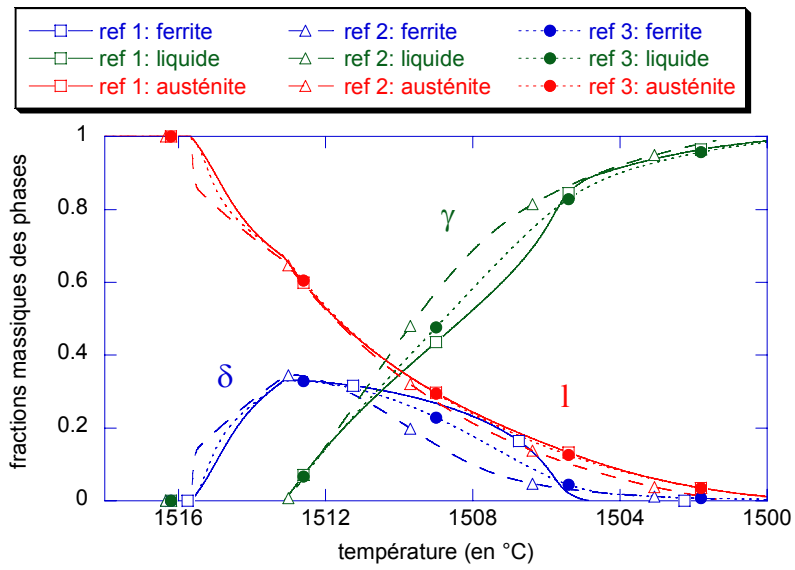


Figure 119 Evolutions en cours de solidification des fractions de phases calculées dans les 3 cas de référence [59]

# ***Conclusions générales et perspectives***



## VII - CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

### VII - 1. LES PRINCIPAUX RESULTATS DE NOTRE ETUDE

L'objectif général de la partie expérimentale du programme était de permettre une comparaison détaillée des prédictions de modèles de microségrégation livrables avec des observations métallurgiques faites sur acier. Cette étude visait à étudier les effets possibles sur la microségrégation des points suivants :

Effet de la composition chimique

Effet de la nature du solide (ferrite  $\delta$  / austénite  $\gamma$ )

Effet de la transformation péritectique (Liquide  $\delta \rightarrow \gamma$ )

Effets de la morphologie des dendrites (front dendritique / front plan)

Effets de la texture des grains (équiaxe /colonnaire)

Nous avons choisi de travailler sur des alliages binaires ou ternaires à base de fer ayant une solidification primaire en ferrite ( $\delta$ ) ou en austénite ( $\gamma$ ), pouvant présenter une réaction péritectique, et se prêtant aux investigations métallographiques. Plus précisément, nous avons sélectionné les 6 compositions représentées sur la figure 36bis dans deux familles d'alliages ternaires : Fe-Ni-C et Fe-Cr-C.

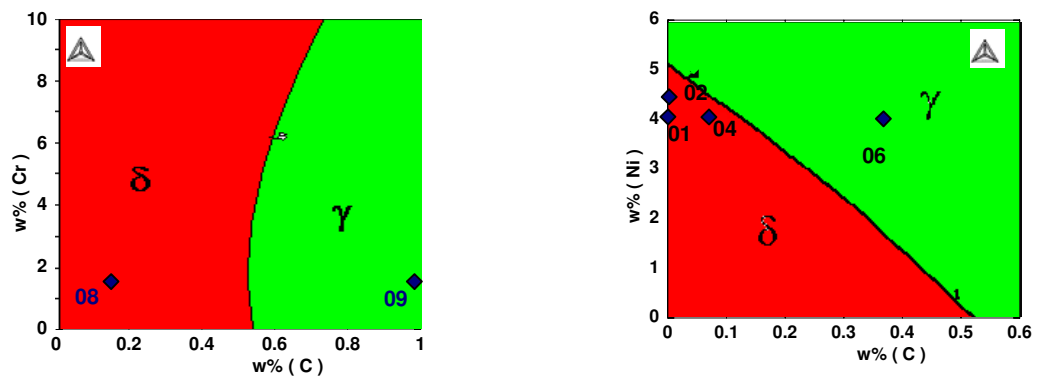


Figure 36 bis : Composition des alliages et nature du premier solide :  
à gauche : alliages Fe-Cr-C ; à droite : alliages Fe-Ni-C

La caractérisation des microstructures intragranulaires et de la microségrégation a été menée sur des barreaux de diamètre 20 mm solidifiés unidirectionnellement (SD) pour chacun des alliages et pour des conditions thermiques variés ( $v$  et  $G_T$ ). L'étude de la formation des microstructures et des microségrégations a été conduite sur des échantillons réalisés par trempe en cours de solidification dirigée (TSD) de barreaux de diamètre 5 mm.

La caractérisation des microstructures a permis de confirmer et de préciser l'importance de la dispersion des tailles caractéristiques de la microstructure dendritique colonnaire à vitesse de solidification et gradient de température donnés. Ce résultat incontournable a été pris en compte dans le travail de simulation de la microségrégation.

La caractérisation de la microségrégation a consisté en mesures ponctuelles du titre massique en nickel sur coupe métallographique après échantillonnage de plages de superficie de l'ordre du  $\text{mm}^2$ . L'ensemble des résultats de mesure sur chaque plage a été traité tantôt sous forme de cartes 2D avec lignes d'iso-titre, tantôt sous forme de courbes de fractions cumulées de surface comprises à l'intérieur des lignes d'iso-titre



Alliage	Essai	Numéro	v (mm/min)	G (K/cm)	
1	TSD	01	1,2	13	Front dendritique
		02	1,2	13	Front dendritique
	SD	01	1,2	15	
2	TSD	01	1,2	13	Front dendritique
		02	0		Front plan
		03			Front dendritique
	SD	01	1,2	15	
3	TSD	01	2,4	20	Front dendritique
		02			Front dendritique
	SD	03	1,2	15	
4	TSD	01	2,4	26	Front dendritique
		02	7,5		Désorientation
		03	7,5		Désorientation
		04	1,2		
	SD	01	1,2	15	
5*					
6	TSD	01	1,2	20	Front dendritique
	SD	01	1,2	15	
5*					
6*					
7*					
8	TSD	01	1,2	12,5	Front dendritique
		02	1,2		Désorientation
		03	2,5		
	SD	01	1,2	18	
9	TSD	01	1,2	20	Front dendritique
		02	2,4	25	Désorientation
		03	2,4		Désorientation
		04	2,4		Front dendritique
		05	7,5		Désorientation
		06	7,5	10	Front dendritique
		07	0,24		Front plan incurvé
		08	0,24		Front plan
	SD	01	1,2	10	
		02	2,4	30	
		03	4,5	30	
		04	7,5	20	

Tableau 13 bis Paramètres de l'étude de la microstructure et de la microségrégation

Ce travail expérimental a permis de caractériser la microségrégation sur des aciers binaires et ternaires présentant une réaction péritectique et de comparer cette ségrégation à celles observées sur les aciers qui ne présentent pas de réaction péritectique.

Elle a aussi permis de confronter les résultats de la modélisation numérique à des résultats expérimentaux. Cette étude a montré aussi les limites des modèles simples de type Gulliver-Scheil pour prédire la microségrégation dans le cas de la réaction péritectique.

L'originalité de cette étude réside entre autres dans l'établissement des courbes de fractions cumulées lors de la réaction péritectique et de la transformation péritectique. Nous avons par la suite, expliqué la genèse de la courbe de fractions cumulées mesurée sur un brut de coulée, par l'évolution de ces courbes pendant la solidification.

Les principaux résultats de notre étude peuvent être énoncés comme suit :

#### Méthodes d'analyses

La variabilité de la composition chimique sur une coupe transversale nous a poussé à trouver une fenêtre d'analyse statistiquement représentative. Grâce à des outils de la géostatistique, appliqués sur les niveaux de gris des métallographies de structures dendritique, nous avons pour chaque nuance déterminé une taille caractéristique de la structure.

La caractérisation de la microségrégation par l'utilisation des courbes de fractions cumulées nous a permis de caractériser finement la microségrégation. Nous avons montré, par contre, que cette technique peut ne pas détecter certaines transformations telles que la déplétion du nickel à l'interface  $\gamma/\delta$  et qu'il faut lui associer d'autres techniques tel que le profil de concentration pour avoir une information complète.

#### Genèse de la microstructure

Notre étude a permis de caractériser finement les transformations qui se produisent dans les aciers ayant une réaction péritectique. Nous avons tout d'abord montré la déplétion du nickel lors de la transformation péritectique. Nous avons ensuite différencié métallographiquement la réaction péritectique et la transformation péritectique. Nous avons aussi mis en évidence l'austénite qui provient de la solidification directe du liquide et l'austénite qui provient de la transformation péritectique de la ferrite. Enfin, nous avons suivi la rétraction de la ferrite au cours de la transformation péritectique et nous avons pu expliquer par ce suivi que les faibles valeurs de la courbe de fractions cumulées observées sur les aciers ayant une réaction péritectique ne sont en fait, que les valeurs de la ferrite résiduelle.

#### Structures

Nous avons ensuite montré qu'une solidification primaire en ferrite (Fe-4%Ni-0.1%C) engendre une structure plus fine qu'une solidification primaire en austénite (Fe-4%Ni-0.4%C).

Ce travail a permis d'étudier l'influence combinée de la composition, du gradient de température et de la vitesse de solidification sur la microstructure. Nous avons par nos essais expérimentaux, confirmé la cartographie  $G/V=f(\text{Ni}\%)$  trouvé dans la bibliographie [65]. On a, d'autre part établi la variation de la nature du front de

solidification en établissant la cartographie  $G/V=g(C\%)$ . De cette dernière cartographie, on pu voir dans le cas d'un acier présentant une solidification primaire en ferrite, qu'une augmentation sensible de la vitesse peut changer la nature du premier solide déposé de ferrite en austénite.

Nous avons par ailleurs, montré que la microségrégation en fin de solidification n'est pas très sensible à l'effet de la microstructure (dendritique/ cellulaire) dans le cas d'un alliage binaire Fe-4.23%. Ceci même si les courbes de fractions cumulées au cours de la solidification sont différentes. Cette différence s'estompe à la fin de la solidification et on n'observe aucun effet notable de la microstructure sur la microségrégation finale dans le cas de cet alliage binaire péritectique Fe-4.23%Ni.

### Textures

Nous avons montré l'influence de la texture des grains sur la microségrégation. Sur un lingot d'acier 100C6, la ségrégation du chrome est plus intense dans une texture équiaxe que dans une texture colonnaire. Nous avons confirmé aussi ce résultat en montrant par un essai de SD que la ségrégation du nickel est plus intense dans la zone équiaxe que dans la zone colonnaire.

### Microségrégation

Nous avons mis en évidence l'effet de la taille de la structure sur la microségrégation. Il en ressort que la forme de la courbe de fractions cumulées est fortement influencée par la taille de la structure. La diffusion chimique du nickel dans notre cas dépend de la taille de structure et donc la rétrodiffusion dans le solide dépend de la taille de la structure.

Cette étude nous a permis d'étudier l'influence du premier solide déposé. Nous avons d'abord montré cette influence sur la microségrégation du nickel. En effet, nous avons montré sur des essais de SD que la solidification primaire en ferrite (Fe-4%Ni-0.1%C) engendre une ségrégation plus intense du nickel qu'une solidification primaire en austénite (Fe-4%Ni-0.4%C). Grâce à des essais de TSD nous avons montré que les courbes de fractions cumulées au cours de la solidification des aciers ayant une solidification primaire en ferrite évoluent avec les transformations de phases et la réaction péritectique alors que les courbes de fractions cumulées des aciers ayant une solidification primaire en austénite restent quasiment stables.

L'influence de la composition chimique sur la microségrégation fut un des axes majeurs de cette étude. En effet nous avons montré la sensibilité de la microségrégation à la composition chimique. Entre l'alliage Fe-4%Ni et celui du Fe-4%Ni-0.1%C, il apparait que la ségrégation du nickel est plus intense dans le cas ou on a 0.1%C. Ceci peut s'expliquer que la déplétion du nickel dans la réaction péritectique semble plus importante dans le cas de la présence de 0.1% de carbone. L'effet de la composition du carbone sur la ségrégation du chrome parait plus net. En comparant la ségrégation du chrome entre deux aciers (Fe-0.16%C-1.5%Cr) et (Fe-1%C-1.5%Cr), on peut voir que la ségrégation du chrome qui est relativement faible pour un acier à 0.16%C devient très importante pour un acier à 1%C.

Les résultats de cette étude ont alimenté la modélisation par des valeurs expérimentales telles que : le gradient thermique, vitesse de solidification, la nuance, la taille caractéristique. Ce travail à permis aussi de montrer la pertinence de la modélisation en confirmant la forme des courbes de fractions

cumulées prédites avec celles mesurées expérimentalement sur des essais de SD dans le cas de acier ternaires ayant un solidification primaire en ferrite Fe-4%Ni-0.1%C et Fe-4%Ni-0.1%C, et ceux ayant une solidification primaire en austénite Fe-0.16%C-1.5%Cr et Fe-1%C-1.5%Cr. De même les résultats expérimentaux sur l'évolution des courbes de fractions cumulées sur des essais de TSD concordent bien avec ceux produit par la modélisation numérique dans le cas de la solidification primaire en ferrite Fe-4%Ni-0,1%C et celle de la solidification primaire en austénite Fe-4%Ni-0,4%C.

## VII - 2. SYNTHÈSE

### Résultats Expérimentaux

A l'issue des travaux expérimentaux réalisés, on retiendra les quelques résultats qui sont synthétisés dans le tableau 13

Effet étudié	Résultats	Essai			Alliage (%)
		Lingot	SD	TSD	
Composition	Augmentation du % C → Microségrégation du nickel moins intense ; Distances caractéristiques plus grandes (dp , ds )		*		4 Ni
			*	*	4 Ni-0,1 C
Nature du solide	Solidification primaire en $\delta$ → Microségrégation du nickel plus intense				4 Ni
			*	*	4 Ni - 0,1 C
			*	*	4 Ni - 0,4 C
	Solidification primaire en $\gamma$ → Microségrégation du chrome moins intense			*	1,5 Cr - 0,16 C
		*	*	1,5 Cr – 1 C	
Texture des grains	Ségrégation plus intense en zone équiaxe	*			1,5 Cr – 1 C
					4 Ni - 0,4 C
Réaction péritectique	Réaction péritectique → Microségrégation du nickel plus intense				4 Ni
					4 Ni - 0,1 C
	Aucun effet sensible sur la microségrégation du chrome				1,5 Cr - 0,16 C
Microstructure intragranulaire	Augmentation de la distance entre axes primaires dp →gradient de microségrégation plus intense sur une fraction surfacique de métal plus faible				4 Ni - 0,1 C

Tableau 14 : Synthèse des résultats

### Confrontation avec la modélisation

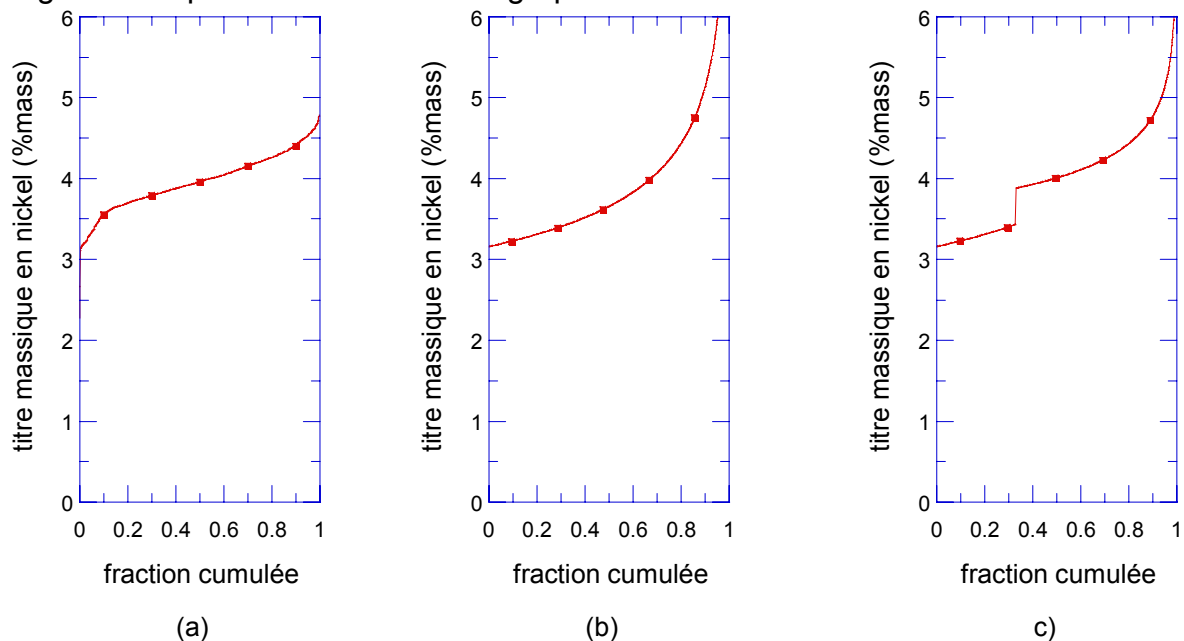
En ce qui concerne la modélisation des microségrégations, il convient de rappeler d'abord que les modèles simples de type Gulliver-Scheil sont loin d'être complètement satisfaisants, comme l'illustre la figure 120 correspondant à

l'alliage ternaire Fe - 4 Ni - 0,1 C. La courbe expérimentale des fractions cumulées présente les caractéristiques suivantes (figure 120) : elle est pratiquement rectiligne pour les fractions cumulées comprises entre 0,2 et 0,9 ;

elle présente une courbure négative, fortement marquée pour les fractions cumulées inférieures à 0,2 ;

le titre massique maximal en nickel est de 4,8 % dans les conditions de solidification explorées.

Les figures 120b et 120c illustrent la relation entre titre massique et fraction massique cumulée dans le solide prédite selon les hypothèses du modèle de Gulliver-Scheil. Les hypothèses fortes communes sont : système localement fermé et absence de diffusion à l'état solide. Dans le cas de la figure 120 b, la redistribution de nickel entre liquide et solide est décrite avec un coefficient de partage unique constant du début à la fin de la solidification. Dans le cas de la figure 120c, le coefficient de partage est considéré comme dépendant de la composition du liquide ; il subit une discontinuité importante au moment du changement de nappe de liquidus : nappe  $\square$   $\rightarrow$  nappe  $\square$ . Dans un cas comme dans l'autre, aucune des trois caractéristiques relevées sur la courbe expérimentale n'est reproduite : pas de segment rectiligne ; pas de segment à courbure négative ; titre maximal en nickel tendant vers des valeurs infinies, largement supérieures à 6 % sur le graphe.



**Figure 120 : Fractions cumulées de titre en nickel dans l'alliage Fe - 4 Ni - 0,1 C brut de coulée : a) résultats microsonde ; b) modèle de Gulliver-Scheil à une nappe de liquidus ; c) modèle de Gulliver-Scheil à deux nappes de liquidus**

Un travail de comparaison expérience-calcul a été conduit pour établir avec précision dans quelle mesure le modèle de microségrégation construit dans le cadre de ce programme permettait de corriger les inconvénients des modèles simples utilisés jusqu'alors.

La comparaison entre les prédictions du modèle construit par Thuinet et nos résultats expérimentaux a été menée de façon approfondie sur deux des cinq compositions étudiées, et ceci à propos de plusieurs des tendances que nous avons observées et signalées en jaune dans le tableau 13.

Pour conduire ce travail de validation, des simulations numériques ont été réalisées avec trois variantes du modèle, selon le degré de raffinement visé pour la description des phénomènes :

situation colonnaire ; géométrie 1 D axisymétrique ; taille du domaine égale à  $d_p/2$ ;

surfusion aux pointes ; pas de maturation.

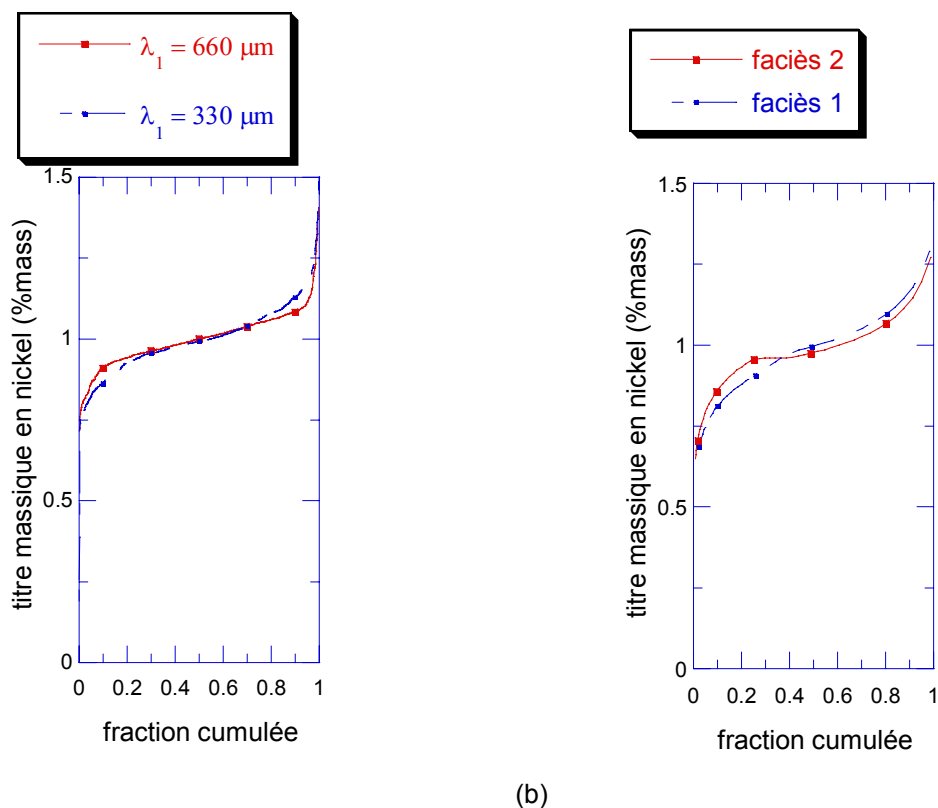
situation colonnaire ; géométrie 1 D axisymétrique ; taille du domaine égale à  $d_s/2$ ;

surfusion aux pointes ; pas de maturation.

situation colonnaire ; géométrie complexe de type dendritique caractérisée par les deux

distances  $d_p$  ,  $d_s$  ; surfusion aux pointes ; pas de maturation.

L'étude expérimentale ayant permis de préciser l'importance de la corrélation entre taille caractéristique des microstructures et microségrégation, une partie de l'effort de modélisation et de simulation a consisté à tester la sensibilité des résultats du modèle au paramètre "taille du système".

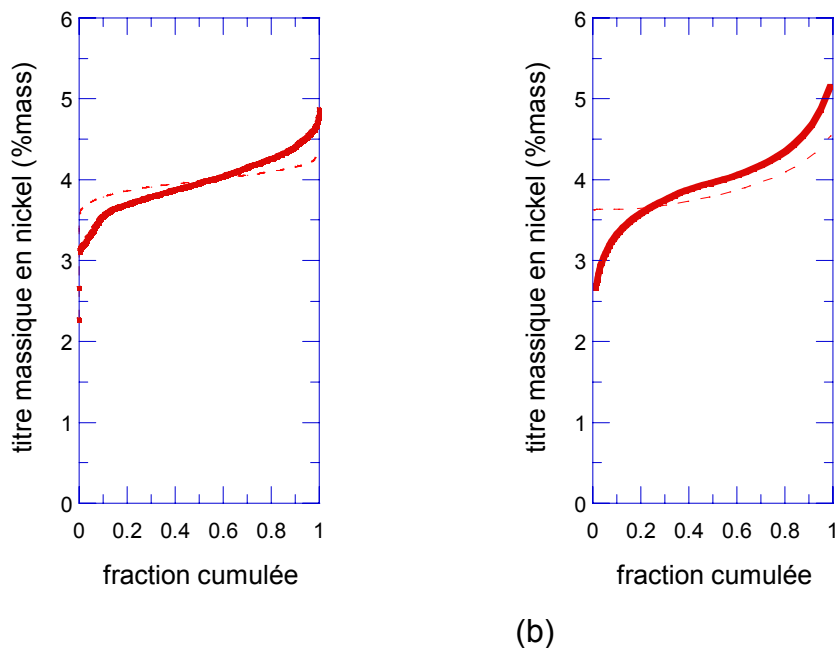


**Figure 121 : Influence de la distance entre axes primaires,  $d_p$ , sur la forme des courbes "titre réduit ( $w/w$ ) – fractions cumulées" : a) résultats expérimentaux ; b) simulations numériques.**

La figure 121 illustre un exemple de résultats obtenus. A gauche, sur la figure 121a, sont reportées deux courbes de fractions cumulées obtenues expérimentalement, sur la même coupe d'un barreau SD de diamètre 20 mm, mais sur deux zones présentant des distances entre axes primaires,  $d_p$ ,

différentes : respectivement 330  $\mu\text{m}$  et 660  $\mu\text{m}$ . A droite, sur la figure 121b, sont reportés les résultats correspondants de la simulation ; les principaux caractères observés expérimentalement peuvent y être retrouvés :

les valeurs extrêmes du titre en nickel sont peu affectées par la valeur de  $d_p$  ; dans les zones où les axes primaires sont plus espacés ( $d_p$  grand), la courbure négative aux faibles fractions et la courbure positive aux fortes fractions sont plus prononcées que dans les zones où  $d_p$  est petit ; par conséquent, la plage de fractions où la courbe est rectiligne est plus étendue dans les zones où les axes primaires sont plus espacés et la pente du segment correspondant est plus faible. Etant donnée l'importance de la réaction péritectique dans le déroulement de la solidification de nombreux aciers, il était essentiel de pouvoir juger de la fidélité avec laquelle le modèle proposé permettait de reproduire l'influence de la nature du premier solide déposé sur l'allure de la microségrégation dans le métal brut de coulée. La Figure 122 permet de comparer les prédictions du modèle aux résultats expérimentaux relatifs aux deux alliages ternaires du tableau 1 contenant 4 %Ni. L'un, avec 0,1 % de carbone, correspond à un début de solidification en ferrite suivi d'une transformation péritectique (courbes continues sur la Figure). L'autre, avec 0,4 % de carbone, correspond à une solidification austénitique du début à la fin (lignes pointillées). Le modèle rend bien compte des formes des courbes avec les changements de courbure et les amplitudes de ségrégation correctes. De plus, l'aggravation de la microségrégation du nickel pour les alliages commençant leur solidification en ferrite est bien reproduite.



**Figure122 : Influence de la nature de la première solidification et de la transformation péritectique (traits continus : ferrite primaire ; traits pointillés : austénite primaire) sur la forme des courbes "titre – fractions cumulées" : a) résultats expérimentaux ; b) simulations numériques**

L'ensemble de ces résultats permet de conclure que les améliorations visées pour le modèle de microségrégation à intégrer dans le code SOLID ont été réalisées avec succès pour les alliages ternaires.

## VII - 3. PERSPECTIVES

Comme perspectives à cette étude, et pour compléter nos résultats expérimentaux, il serait très intéressant de suivre la ségrégation du carbone au cours de la réaction péritectique. Chose qu'on n'a pas pu mettre en place, car l'étude fine de la microségrégation du carbone est très délicate à la microsonde. Il serait aussi intéressant de confirmer nos résultats expérimentaux sur d'autres nuances d'aciers.

Le modèle numérique prédit aussi la disparition complète de la ferrite primaire au cours de la solidification. Par contre, nos mesures expérimentales montrent la présence d'une ferrite résiduelle dans le cas des aciers péritectiques binaires Fe-4%Ni et Fe-4.23%Ni et les aciers péritectiques ternaires. Il serait intéressant d'utiliser d'autres moyens d'investigations expérimentales pour confirmer ou non la présence de la ferrite en fin de solidification.

Nos résultats sur l'effet de la microstructure sur la microségrégation ont montré qu'il n'y avait pas d'effet notable sur la microségrégation entre la structure dendritique et la structure cellulaire. Ce résultat semble ne pas concorder avec celui de L.Ladeuille (Ladeuille, 2001). Il sera bien de refaire les essais comparatifs sur la microségrégation finale des deux microstructures pour confirmer ou infirmer nos résultats expérimentaux sur ce sujet.

Nous avons étudié l'effet du premier solide déposé ferrite (F) ou austénite (A) sur la microségrégation. Pour les travaux ultérieurs, nous proposons une étude complémentaire sur l'effet de ces quatre séquences de solidification F, FA, AF et A sur la microségrégation finale. Ceci peut apporter des informations complémentaires à notre étude.

Notre étude a porté sur la caractérisation de la microségrégation sur des alliages binaires Fe-Ni et des alliages ternaires Fe-Ni-C et Fe-Cr-C. Une autre étude qui porterait sur des alliages multiconstitués (plus de 4 éléments) permettra de généraliser les résultats observés sur des binaires et des ternaires, notamment pour la réaction péritectique.

Nos résultats issus des essais de TSD nous ont permis de suivre l'évolution de la microstructure au cours de la solidification. Cependant entre le moment de la trempe et le moment de l'observation métallographique, une certaine progression de la solidification s'est produite. L'apport de nouvelles techniques telles que le suivi in-situ grâce des accélérateurs hautes énergies nous permettrait de suivre l'évolution réelle de la microstructure surtout lors de la réaction péritectique.





# ***BIBLIOGRAPHIE***



## VIII - BIBLIOGRAPHIE

- 1- J. Lacaze, G. Lesoult  
Nature and Properties of semi-solid Materials, édité par J. A. Sekhar et J. Dantzig, The Minerals, Metals & Materials Society, (1991)
- 2- G.lesoult, Ch.A.Gandin, T.Niane  
Acta Materialia 51 5263–5283 (2003)
- 3- T. Mazet  
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995
- 4- Metallography, Structures, and Phase Diagrams, Vol 8,  
Metals Handbook, 8th ed., American Society for Metals, p 70,(1973)
- 5- V.R. Voller, C. Beckermann  
Metallurgical and materials transactions A, 30A, 2183-2189, (1999)
- 6- G.H.Gulliver  
J. Inst. Metals, Vol.9, 120, (1913)
- 7- E. Scheil  
Zeitschrift für Metallkunde, 34, 70-72, (1942)
- 8- A.Kohn et J. Philbert  
Mem. Et.rev.Mét. 67, 291-312, (1960)
- 9- M.Drouzy et C.Masgré,  
Mém.Et.Scient.Rev.Met.68, 255-265 (1961)
- 10- G.F Bolling, W.A. Tiller,  
J. Appl.Phys, 32, 2587-2605 (1961)
- 11- I.Ohnaka  
ASM metal Handbook, Casting, 15 136-141
- 12- M. Rappaz, W.J. Boettinger  
Acta Materiala, 47, No. 11, 3205-3219, (1999)
- 13- M.C.Flemings  
in the Elliott Symposium Iron and Steel Society, 216-235, (1990)
- 14- A. Hawksworth, W.M. Rainforth, H. Jones  
Journal of Crystal Growth 197 286-296, (1999)
- 15- W. J. BOETTINGER<sup>1</sup>, et Coll  
Acta mater. 48 43-70, (2000)

- 16- M. Bobadilla, J. Lacaze, G. Lesoult  
Scandinavian Journal of Metallurgy, 25, 2-10, (1996)
- 17- H. Fredriksson, G. Nylén  
Metal Science, 16, 283-294, (1982)
- 18- Y. Ueshima, S. Mizoguchi, T. Matsumiya, H. Kajioka  
Metallurgical Transactions B, 17B, 845-859, (1986)
- 19- J. Lacaze, P. Begnini, A. Howe  
Advanced engineering materials, 5, No.1-2, 37-46, (2003)
- 20- M. Bobadilla  
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, (1984)
- 21- J.Philibert, C.Beaulieu  
Revue de métallurgie LVI n°1 (1959)
- 22- M.C.Flemings, D.R.Poirier R.V. Barone and H.D.Brody  
Journal of the iron and steel institute April (1970)
- 23- G. Blanc, R. Tricot  
Mem. Sci. Rev. Met, 68, 735, (1971)
- 24- ASM Metal Handbook, Casting, 15 302-303 (2004)
- 25- G. Lesoult  
Croissance cristalline  
Polycopié de cours DEA SIM : Science et Ingénierie des Matériaux,  
école doctorale EMMA, (2001).
- 26- M.N.Gungor  
Metallurgical Transactions A Vol 20A- 2529 (1989)
- 27- J. Lacaze, G. Lesoult  
ISIJ International, 658-664, (1995)
- 28- J.Lacaze and G.R.J Lesoult  
Materials Science and engineering AI73 119-122, (1993)
- 29- D.Viale, G.Petitgand  
Rapport interne IRSID N. MS 92-1064, (1992)
- 30- G.Petitgand  
Communication interne IRSID N.MS.MET GP/mt, (1988)
- 31- X. Yan, F. Xie, M. Chu, Y.A. Chang  
Materials Science and Engineering, A302, 268-274, (2001)

- 32- E.L. Rooy  
ASM metals Handbook, castings, 15 743-770 (2004)
- 33- A. A. Howe  
Ph.D. thesis, Sheffield University, (1993)
- 34- T.Grosdidier, A.Hazotte, A.Simon  
High Temperature Materials for Power Engineering, Ed.Bachelet. 1271-1280, (1990)
- 35- D.B Calyton et coll J.Inst.Metals.90, 224, (1961)
- 36- R.D Doherty et D.A Melford J.I.S.I, 204, 1131, (1966).
- 37- R.D Doherty et A. Fesst, in Solidification of metals  
ISI P110,102-107, (1966)
- 38- D. Salavdori.  
Conversation privée, citée par Lacaze et Lesoult.(voir référence 1)
- 39- Z. Morita and T. Tanaka,  
Trans.ISIJ, Vol 23, 1983, p 824; Vol 24, p 206, (1984)
- 40- A.B Micheal et M.B Bever  
Trans.AIME, 47-56, (1954)
- 41- F. Bower, H.D. Brody, and M.C. Flemings  
Trans, AIME, (1966)
- 42- M.Drouzy and M.Richard  
Mém, Et, Scient, Rev.Mét, 68, 255-265, (1971)
- 43- A.Rossz and H.E Exner  
Acta.Metall.Mater, 38,375-380, (1990).
- 44- J.A Sarreal et G.J Abbaschian Metal.Trans. 17A 2063-2073, (1986)
- 45- Sindo Kou  
Welding Metallurgy, 2nd ed. WILEY p 246, (2003)
- 46- W. J. BOETTINGER<sup>1</sup>, et Coll  
Acta mater. 48 43-70, (2000)
- 47- J.C;Liplod, and D.J.Koteci  
Welding Metallurgy and Weldability of Stainless Steel,  
Wiley p 153, (2005).
- 48- S.Katayama, T.Fujimoto, A.Matsunawa  
Transactions of JWRI, 14 (1): 123, (1985)

- 49- S.A David, G.M Goodwin et D.N Braski  
Welding Journal, 58 (11): 330s-336s.
- 50- S.A David,  
Welding Journal, 60(4): 63s-71s.
- 51- J.C.Lippold et W.F.Savage  
Modeling of Casting and Welding Processes, Metallurgical Society of  
AIME 443-458, (1981)
- 52- J.A.Brooks, A.W.Thompson, et J.C. Williams  
Welding Journal, 63(3): pp 71-83
- 53- Y.Arata, F.Matsuda, et S.Katayama  
Transactions of JWRI, 5(2): 135, (1976)
- 54- G.L.Leone et H.W.Kerr  
The ferrite to austenite transformation in stainless steels  
Welding Journal 61(1): pp 13-21, (1982)
- 55- H.Fredriksson,  
Scand. J. Metall., Vol 5, 1976, p 27-32
- 56- N.Suutala, T.Takalo et T.Moisio  
Metallurgical Transactions, 11A: pp 717-725,(1980)
- 57- L.Thuinet  
Rapport bibliographique DEA SIM, (2001)
- 58- L.Thuinet  
Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, (2005)
- 59- H. Fredriksson, G. Nylén  
Metal Science, 16 283-294, (1982).
- 60- M. Hillert  
Journal of the iron and steel institute, 189, 224-226, (1958)
- 61- D.M. Stefanescu,  
Science and Engineering of Casting Solidification, Kluwer Academic,  
(2002).
- 62- K. Matsuura, H. Maruyama, Y. Itoh, M. Kudoh, K. Ishii  
ISIJ International, 35 No.2, 183-187, (1995).
- 63- H. Shibata, Y. Arai, and T. Emi,  
Metall. Mater. Trans. B, Vol 31B, p 981–991, (2000)

- 64- H. Fredriksson,  
Casting, Vol 15, ASM Handbook, D.M. Stefanescu, Ed., ASM  
International, p 129, (1988)
- 65- O. Hunziker, M. Vandyoussefi, and W. Kurz,  
Acta Mater, Vol 46 (No. 18), p 6325–6336, (1998)
- 66- H. Fredriksson,  
Metall. Trans, Vol 3, p2989–2997, (1972)
- 67- A.B Micheal et M.B Bever  
Trans, AIME, 47-56, (1954)
- 68- H.D Bower  
Trans, AIME, 236, P 624-634, (1966)
- 69- H.D. Brody, M.C. Flemings  
Transactions of the Metallurgical Society of AIME, 236, 615, (1966)
- 70- T.W. Clyne, W. Kurz  
Metallurgical Transactions, 12A, 965-971, (1981)
- 71- I. Ohnaka  
Trans. Iron Steel Inst. Jpn., 26, 1045-51, (1986)
- 72- M. Rappaz, Ph. Thévoz  
Acta metallurgica, 35 1487-1497, (1987)
- 73- H. Fredriksson, J. Sternjdahl  
Metal science, 16 575-585, (1982),
- 74- M.C.M Cornelissen  
iron and steelmaking 13, 204-212, (1986)
- 75- H.F Lopez  
Acta.Metall.Mater 39, 1543-1548, (1991)
- 76- R. Trivedi and W. Kurz,  
Casting, Vol 15, ASM Handbook, D.M.Stefanescu, Ed., ASM  
International, p 114, (1988)
- 77- D.M. Stefanescu,  
Science and Engineering of Casting Solidification,  
Kluwer Academic, (2002)
- 78- X. DORE, H. COMBEAU, M. RAPPAZ  
Acta Materiala, 48, 3951-3962, (2000)
- 79- L. Thuinet, G. Lesoult, H. Combeau  
“ Tours, 21-25 Octobre 2002, CD-ROM 'Congrès Matériaux 2002 de la  
conception à la mise en œuvre', (2002)



- 80- L. Thuinet, G. Lesoult, H. Combeau  
Proceedings of the 2003 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting (LMPC 2003), edited by Peter D. Lee, Alec Mitchell, Jean-Pierre Bellot, Alain Jardy, pp 163-170 (2003)
- 81- S. Kobayashi  
Transactions ISIJ, 28 535-542, (1988).
- 82- D. Xu  
Metallurgical and Materials Transactions B, 32B 1129-1141, (2001).
- 83- M. Rappaz, Ph. Thévoz  
Acta metallurgica, 35, 1487-1497, (1987).
- 84- M. Rappaz, W.J. Boettinger (1987)  
Acta Materiala, 47, No. 11, 3205-3219
- 85- C.Y. Wang, C. Beckermann  
Materials Science and Engineering, A171 199-211, (1993)
- 86- C.Y. Wang, C. Beckermann  
Metallurgical Transactions A, 24A 2787-2802, (1993)

# ***Annexes***



## IX - ANNEXES

### IX - 1. ANNEXE 1

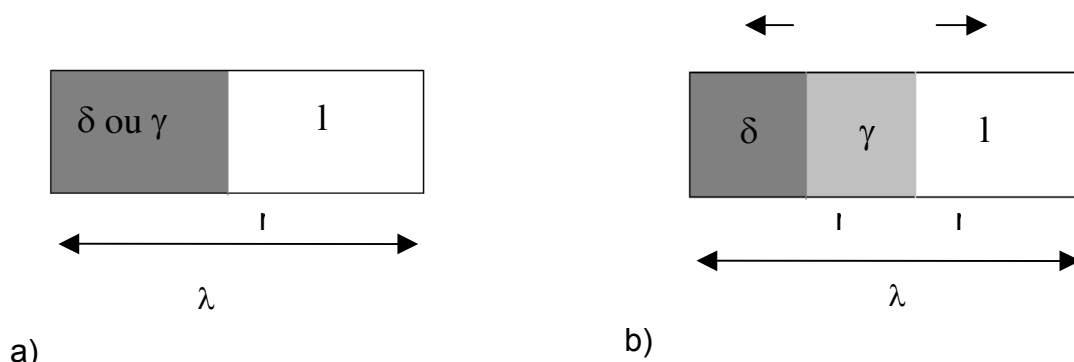
#### Modèle Numérique (LT)

En première approximation, le domaine est supposé comporter une seule dimension caractéristique au regard de la diffusion, notée  $\lambda$ . Dans ce cas, l'étude de la microségrégation se réduit à un problème à une dimension. La coordonnée spatiale est notée  $r$ .

L'étude bibliographique a révélé que dans une structure dendritique, le choix de  $\lambda$  n'est pas évident en raison de la multiplicité des distances caractéristiques de la diffusion, dont les plus importantes sont  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ .

Il en est de même du choix de la géométrie 1D à adopter. Le modèle a été développé pour les trois géométries suivantes : plane, axisymétrique ou sphérique. Certaines structures de solidification peuvent présenter des morphologies suffisamment simples pour être correctement décrite par l'une de ces trois géométries. Par exemple, les bras secondaires de dendrites bien développées ou les troncs primaires de cellules colonnaires peuvent être approchées par une géométrie axisymétrique. De même, les structures globulaires typiques d'alliages fortement inoculés peuvent être décrites par une géométrie sphérique. En revanche, pour caractériser une structure dendritique, il est a priori difficile de savoir laquelle des géométries plane, axisymétrique ou sphérique est la plus adaptée. C'est la raison pour laquelle ce modèle de microségrégation a été qualifié de modèle à morphologie simplifiée, puisque le domaine de calcul est ici une simplification des microstructures dendritiques réelles.

Pendant la croissance péritectique, la phase de réaction telle est négligée et l'hypothèse suivante est adoptée : l'austénite  $\gamma$  forme une couche entre la ferrite  $\delta$  et le liquide au cours du refroidissement. Le domaine d'étude de la microségrégation dans le cas d'une morphologie simplifiée est représenté sur la figure A-1 dans deux configurations : en solidification primaire et pendant la transformation péritectique.



a) b)  
**Figure A-1: représentation schématique du domaine de calcul de la microségrégation dans le cas d'une géométrie simplifiée en a) solidification primaire et b) pendant la transformation péritectique. Les flèches au dessus du schéma b) indiquent le mouvement des interfaces au cours du refroidissement.**

L'étude bibliographique a montré que le choix de la taille du système est lié au phénomène physique influant sur la microségrégation que l'on veut étudier.

Premier cas :  $\lambda = \lambda_1/2$  (cas 1 sur la Figure A-2). Ce choix est souvent adopté pour les modèles développés pour étudier la solidification rapide. Dans ce cas, la diffusion dans le liquide ne peut plus être supposée infinie et la surfusion aux pointes primaires de dendrites ne peut plus être négligée [29,30].

Dans le modèle à géométrie simplifiée, le calcul de la surfusion aux pointes primaires de dendrites à partir des valeurs du gradient thermique moyen  $G, \bar{T}$  et de la vitesse des pointes primaires  $U_{pp}$  est réalisé au moyen de l'algorithme développé par B. Appolaire [34]. La surfusion est calculée uniquement dans le cas où la croissance de la pointe primaire est contrôlée par diffusion et repose sur les relations établies par Bobadilla et coll.[39].

Deuxième cas :  $\lambda = \lambda_2/2$  (cas 2 sur la Figure A-2). Ce choix est souvent adopté dans les modèles développés pour étudier la maturation. Contrairement au premier cas,  $\lambda$  est alors fonction du temps. L'étude de la maturation se fait à l'échelle des bras secondaires de dendrites. Par conséquent, et contrairement à l'étude de la surfusion aux pointes, il paraît raisonnable de supposer la diffusion dans le liquide infinie, hypothèse qui est faite par la plupart des modèles présentés dans le chapitre I traitant de la maturation. H2.1 : dans le cas où la maturation est prise en compte, le modèle à morphologie simplifiée suppose que le titre massique dans le liquide est uniforme et que la maturation suit la loi de Mortensen généralisée aux alliages multiconstitués. La limite de validité du modèle se situe à une fraction solide de 80%, fraction au-delà de laquelle la maturation est principalement influencée par la coalescence. Par conséquent :

Si  $g_s < 80\%$ , la loi de maturation s'applique ;

Si  $g_s > 80\%$ ,  $\lambda_2 = \lambda_2(g_s = 80\%)$ .

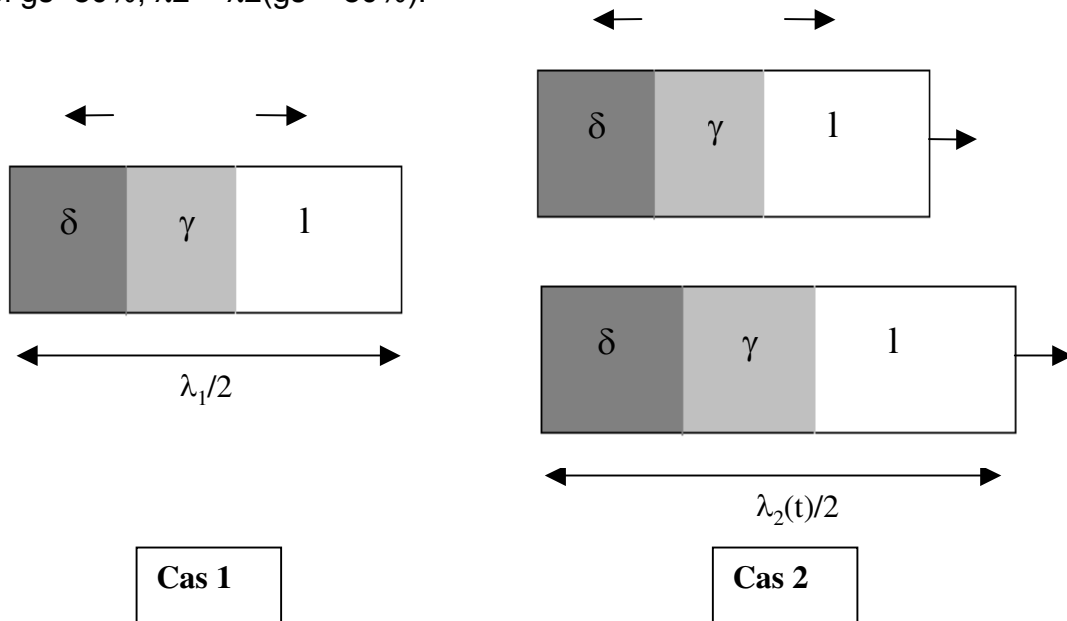


Figure A-2: Définition du domaine d'étude de la microségrégation (pendant la transformation péritectique) selon que la distance caractéristique est prise égale à  $\lambda_1/2$  ou

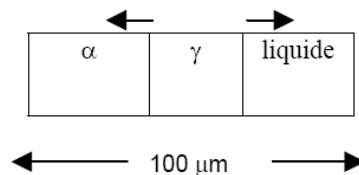
$\lambda/2$  dans le cas du modèle à morphologie simplifiée. Les flèches figurant au dessus des différents schémas indiquent le mouvement des interfaces au cours du refroidissement.

## Hypothèses du modèle

Pour tester le modèle, on fait l'hypothèse suivante :

**H1** : les coefficients de partage et les pentes des différentes nappes définies précédemment sont supposés constants. La linéarisation des différentes nappes présentées plus haut

Le problème est réduit à un problème à une seule dimension. La microségrégation est étudiée dans un domaine de longueur fixe, que l'on note  $\lambda_0$ . Cette longueur doit être adaptée à l'étude de la microségrégation, elle a donc été fixée à  $100 \mu\text{m}$  dans les résultats présentés au paragraphe 4. Le volume d'étude représentatif (VER) de la microségrégation a été représenté sur la figure A-3.  $\alpha$   $\gamma$  liquide



: VER de la microségrégation pendant la transformation péritectique.

**Figure A-3 : VER de la microségrégation pendant la transformation péritectique.**

**H2** : La température est uniforme dans le domaine de calcul.

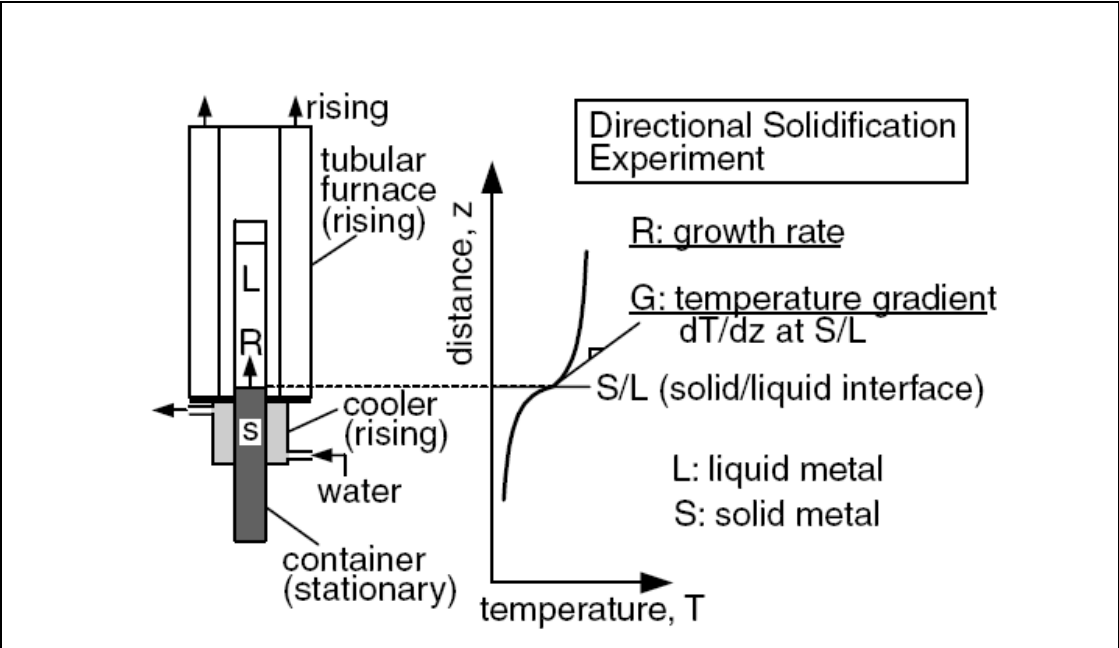
**H3** : Les interfaces entre phases sont à l'équilibre thermodynamique, ce qui signifie que les titres massiques aux interfaces sont déterminés à partir du diagramme d'équilibre.

**H4** : le seul phénomène de transport pris en compte dans chaque phase est la diffusion.

**H5** : on néglige les termes croisés d'Onsager, c'est-à-dire qu'on suppose qu'une espèce chimique n'influe pas sur le gradient de concentrations d'une autre espèce chimique.

IX - 2. ANNEXE 2

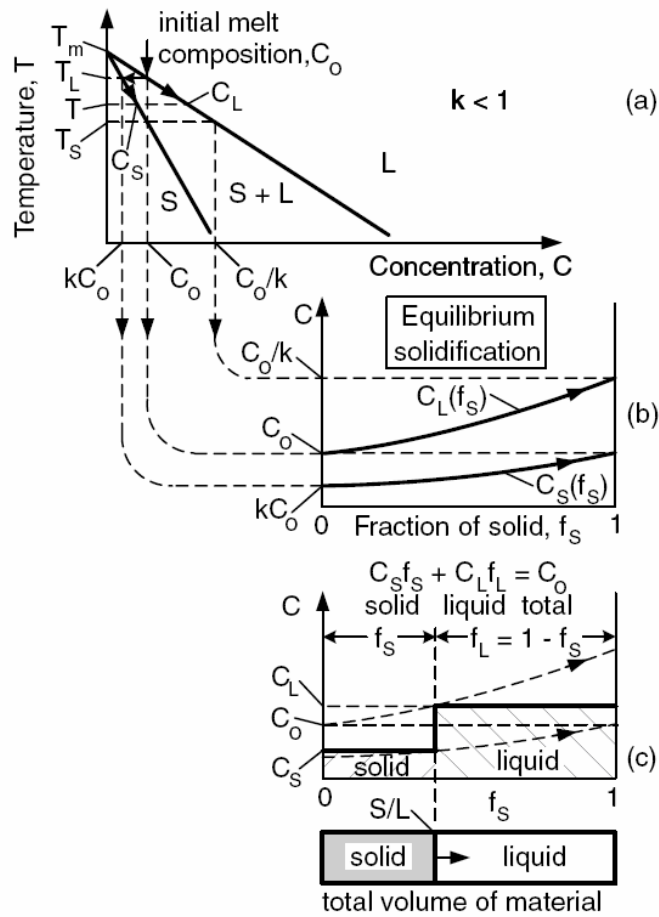
**Détermination du gradient de température au cours de l'essai de solidification dirigée**



IX - 3. ANNEXE 3

**Redistribution du soluté au cours de la solidification**

**I - Diffusion complète dans le liquide et dans le solide**

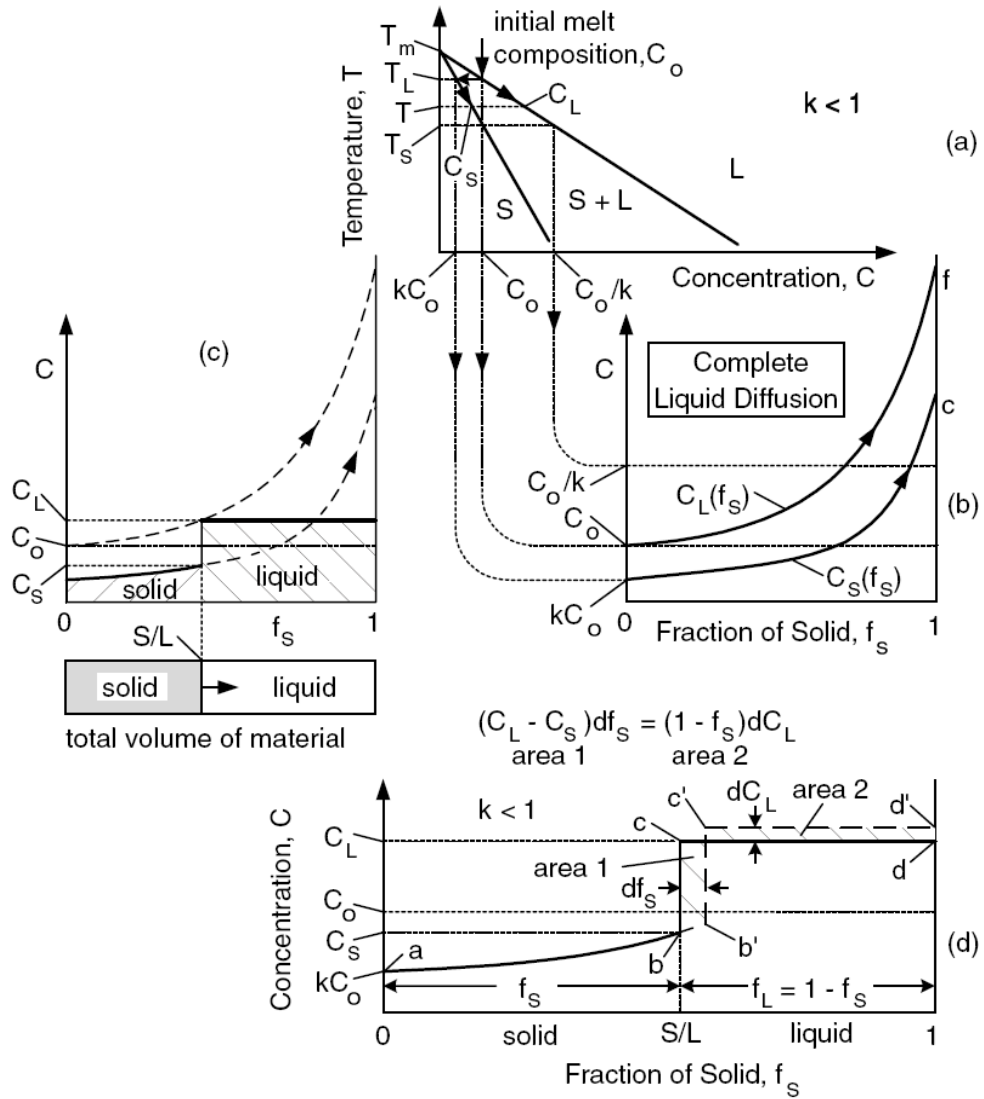




IX - 4. ANNEXE 4 :

**Redistribution du soluté au cours de la solidification**

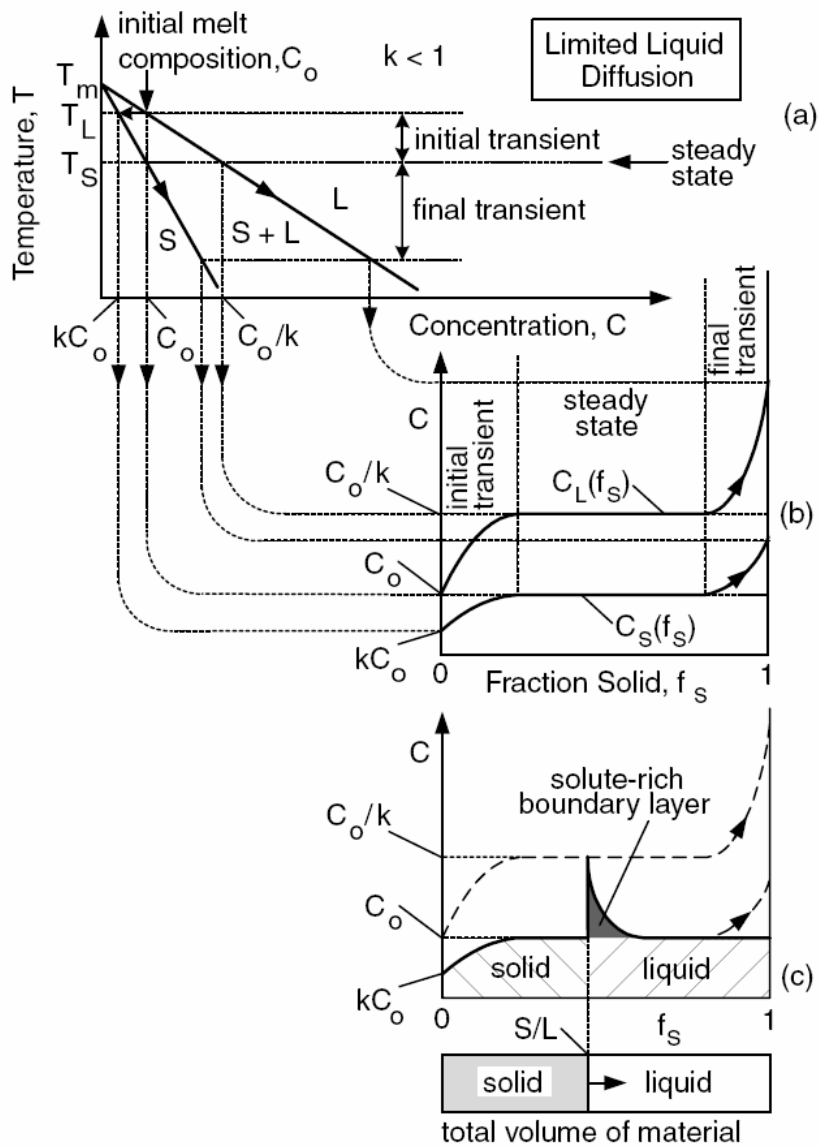
**II - Diffusion complète dans le liquide et pas de diffusion dans le solide**



IX - 5. ANNEXE 5 :

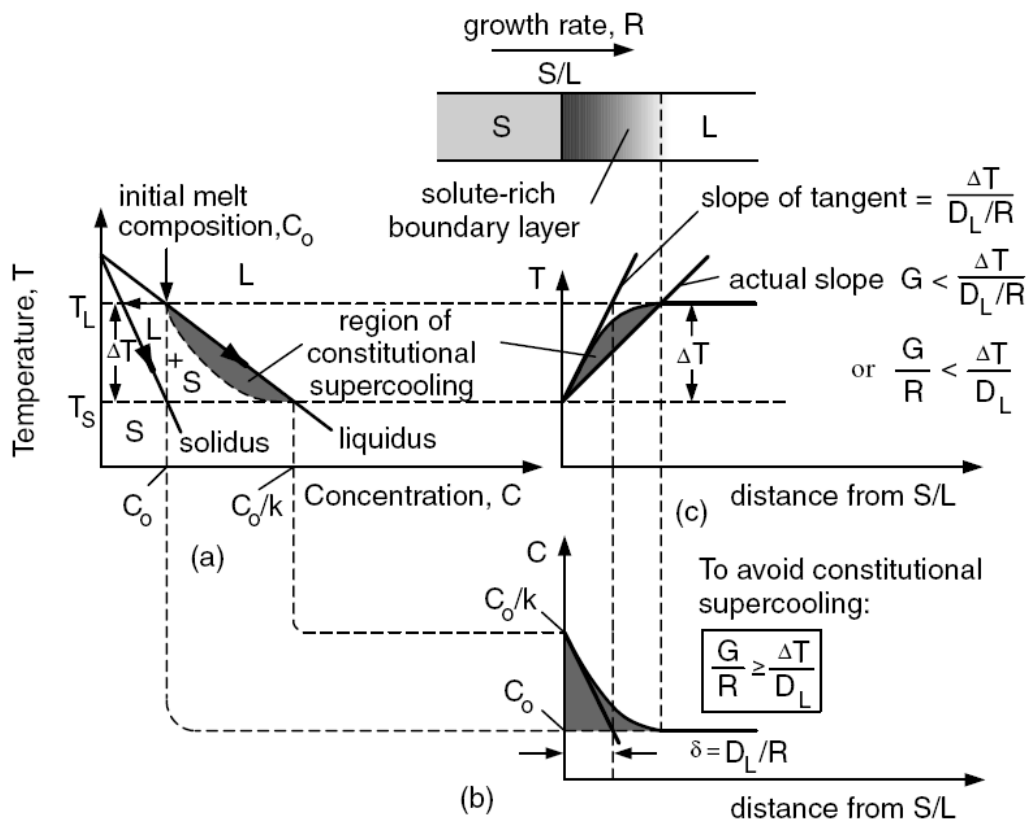
**Redistribution du soluté au cours de la solidification**

**III - Diffusion limitée dans le liquide et pas de diffusion dans le solide**



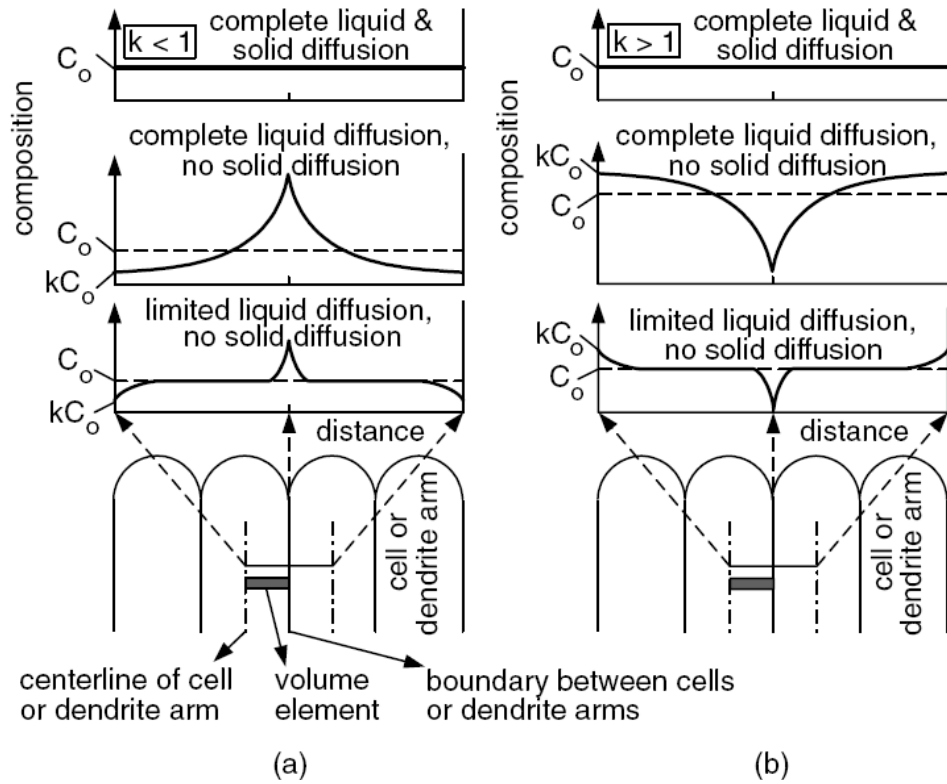
IX - 6. ANNEXE 6 :

**Surfusion constitutionnelle**



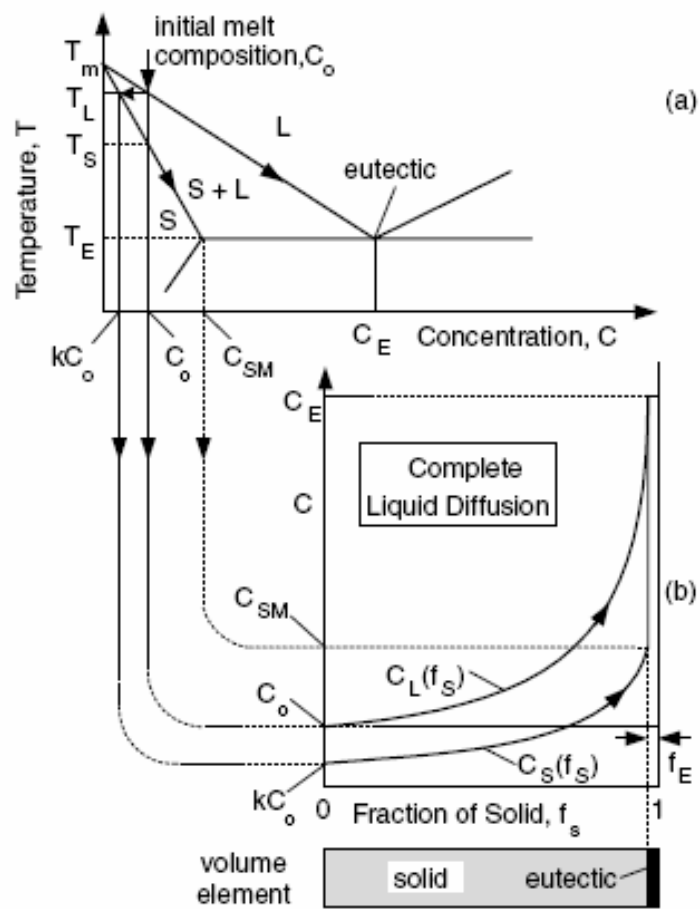
IX - 7. ANNEXE 7 :

**Profils de microségrégation à travers les bras d'une cellule ou celui d'une dendrite**



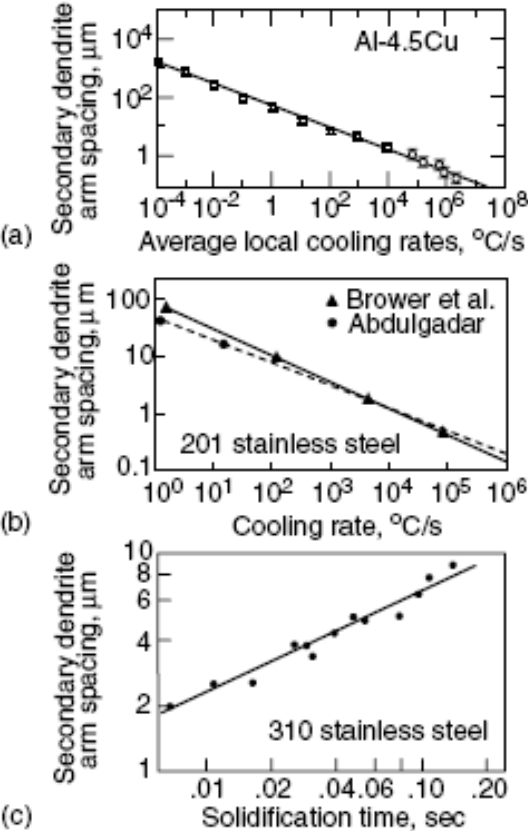
IX - 8. ANNEXE 8 :

*Diffusion complète dans le liquide et pas de diffusion dans le solide dans le cas d'un alliage eutectique*



IX - 9. ANNEXE 9 :

*Effet de la vitesse de refroidissement ou du temps de solidification sur l'espace entre branches secondaires*



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur Yves BIENVENU, Professeur, ENSMP, Evry**

**Monsieur Manuel BOBADILLA, Ingénieur, ARCELOR Research, Maizières-lès-Metz**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

**Monsieur ADDAD Abdelaziz**

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,  
une thèse intitulée :

**"Contribution à l'étude expérimentale des microségrégations dans les aciers présentant  
une réaction péritectique"**

NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAYE  
BOITE POSTALE 3  
F - 54501  
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « **Science et ingénierie des matériaux** »

Fait à Vandoeuvre, le 12 juin 2007

Le Président de l'I.N.P.L.

F. LAURENT



## **Contribution à l'étude expérimentale des microségrégations dans les aciers présentant une réaction péritectique**

Cette thèse est le volet expérimental d'un projet de recherche qui vise à développer un code de calcul qui prédit finement la microségrégation des aciers présentant une réaction péritectique. La caractérisation expérimentale de la microségrégation a été menée grâce à des essais de solidification dirigée et des essais de trempe en cours de solidification dirigée ainsi que sur des échantillons de lingots industriels. Les alliages sélectionnés font partie des systèmes Fe-C-Ni et Fe-C-Cr. Nous avons d'abord étudié sur des aciers solidifiés l'effet la composition chimique et l'effet du premier solide ferrite / austénite sur la microségrégation. Par la suite nous avons caractérisé la formation de la microségrégation avec est sans réaction péritectique. On a aussi montré les effets de la taille de la structure, de la microstructure (dendritique/ cellulaire) et de la texture du grain sur la microségrégation (colonnaire/équiaxe) sur la microségrégation. Enfin, nous avons comparé les résultats expérimentaux avec les résultats de la modélisation.

**Mots-clés :** Microségrégation, réaction péritectique, solidification dirigée, courbes de fractions cumulées, aciers

## **Contribution to the Experimental Study of the Microsegregation in Peritectic Steels**

This PhD work is an experimental part of a global R&D project witch aim to study the microsegregation in peritectic steels. The experimental investigations were made by a Directional Solidification device (DS), Quenched Directional Solidification (QDS) and from parts of industrials ingots. The alloys selected were taken from the Fe-C-Ni and Fe-C-Cr systems. On the solidified steels we investigate the effect of the chemical composition and the first solid (ferrite/austenite) on the microsegregation. The next step was the characterization of the microsegregation during the solidification with and without a peritectic reaction. Afterwards we study the effects of the length of the structure, the microstructure (dendritic/cellular) and the texture of the grains (columnar/equiaxed) on the microségrégation. At the end we have do a comparison between the experimental results and those from the numerical simulations.

**Keywords :** Microsegregation, peritectic reaction, directional solidification, cumulated fractions curves, steels