



HAL
open science

Relations entre conditions de croissance et la qualité cristalline de monograins dendritiques

Philippe Fleurentin

► **To cite this version:**

Philippe Fleurentin. Relations entre conditions de croissance et la qualité cristalline de monograins dendritiques. Sciences de l'ingénieur [physics]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 1996. Français. NNT : 1996INPL085N . tel-01776347

HAL Id: tel-01776347

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01776347>

Submitted on 24 Apr 2018

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

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



AVERTISSEMENT

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

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

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

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

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

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

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

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

13600 86509

96 I N P L 085 N

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

[M] 1996 FLEURENTIN, P.

**RELATIONS ENTRE CONDITIONS DE CROISSANCE ET LA
QUALITÉ CRISTALLINE DE MONOGRAINS DENDRITIQUES**

THÈSE

Présentée devant

L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'I.N.P.L.

(Science et Génie des Matériaux)

par

Philippe FLEURENTIN

Ingénieur F.I.R.TECH.

*Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois*

soutenue le **6 septembre 1996** devant la Commission d'Examen

JURY

Mrs	A. SIMON	Président
	B. BILLIA	Rapporteur
	J.-M. SCHISLER	Rapporteur
Melle	N. SIREDEY	Rapporteur
Mrs	A. DE BUSSAC	Examineur
	J. LACAZE	Directeur de thèse
	G. LESOULT	Co-directeur de thèse

à mes Parents
qui m'ont donné les possibilités d'étudier

à Jo.
Cathy et Sébastien
qui m'ont soutenu et supporté ...

AVANT-PROPOS

Cette étude a été effectuée à l'École des Mines de Nancy, au Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques, URA-CNRS 159, dirigé par Monsieur André SIMON, Directeur de recherche au CNRS, dans l'équipe de Monsieur le Professeur Gérard LESOULT. Elle s'inscrit dans le cadre du Contrat de Programme de Recherche "Stabilité Structurale des Superalliages Monocristallins".

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur André SIMON pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider mon jury de thèse. Je le remercie pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude.

Je remercie Messieurs Jacques LACAZE et Gérard LESOULT, qui ont dirigé ce travail.

J'exprime toute ma reconnaissance à Messieurs Rémi TINTILLIER et Arnaud DE BUSSAC, ingénieurs de recherche de la SNECMA, pour l'intérêt qu'ils ont témoigné à cette étude. Je remercie la SNECMA et tous ses personnels qui ont rendu possible la réalisation des échantillons en AM1, avec une pensée toute particulière pour Serge et Umberto.

J'exprime toute ma reconnaissance à Mademoiselle Nathalie SIREDEY et à Messieurs Bernard BILLIA et Jean-Marie SCHLISSER qui me font l'honneur d'être les rapporteurs de cette thèse. Je remercie Arnaud DE BUSSAC qui a accepté de faire partie du jury.

Je tiens à remercier très sincèrement tout le personnel du Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques et de l'École des Mines de Nancy avec lequel j'ai entretenu des rapports amicaux. Je ne pourrai oublier les précieux conseils qui m'ont été donnés par Pierre ARCHAMBAULT lors de notre collaboration à l'occasion de mon F.I.R.TECH. et le soutien amical d'Élisabeth GAUTIER.

TABLE DES MATIERES

1. INTRODUCTION	14
2. ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE	20
2.1 La Société des dendrites	22
2.1.1 Principaux paramètres des réseaux dendritiques et arrangement dendritique	22
2.1.2 Variation de l'espacement dendritique primaire avec un changement des conditions de croissance	27
2.1.3 Désorientation de la croissance et compétition de grain	27
2.1.4 Adaptation du réseau à des contraintes géométriques	32
2.2 Principaux défauts rencontrés dans des pièces monocristallines	32
2.2.1 Macroségrégations et freckles	32
2.2.2 Microporosités	33
2.2.3 Formation de carbures	33
2.2.4 Désorientation du cristal émergent de la constriction	33
2.2.5 Sous-grains et mosaïcité	34
2.2.6 Microségrégations importantes et présence d'eutectique hors équilibre entre les dendrites	34
2.2.7 Effets de l'épaisseur de la paroi sur les propriétés mécaniques des pièces en superalliage	34
3. TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES	36
3.1 Installation de solidification dirigée d'alliages transparents	38
3.1.1 Présentation de l'installation, des échantillons	38
3.1.1.1 Choix de l'alliage utilisé et fabrication des échantillons	38
3.1.1.1.1 <i>Choix de l'alliage transparent</i>	38
3.1.1.1.2 <i>Fabrication des lames minces</i>	39
3.1.1.1.3 <i>Préparation de l'alliage</i>	40
3.1.1.1.4 <i>Remplissage des plaques minces</i>	40
3.1.1.2 L'installation de solidification dirigée	41
3.1.1.3 Caractérisation de l'alliage après le remplissage	42

3.1.2	Contrôle de la vitesse de translation des plaques et du gradient de température dans celles-ci.....	46
3.1.2.1	Mesure de la vitesse de tirage.....	46
3.1.2.2	Mesure du gradient de température.....	47
3.1.3	Étude expérimentale des échanges thermiques.....	48
3.1.4	Méthodologie expérimentale.....	50
3.1.4.1	Choix du grain.....	50
3.1.4.2	Préparation des expériences.....	50
3.1.4.3	Étude d'une expérience.....	51
3.2	Solidification dirigée monocristalline de plaques minces en AM1.....	51
3.2.1	Présentation.....	51
3.2.1.1	Fabrication et préparation des moules.....	51
3.2.1.2	Matériau brut de solidification.....	53
3.2.1.3	Coulées des moules.....	55
3.2.1.4	Conditions nominales de coulées.....	57
3.2.2	Méthode de détermination de la vitesse de croissance et du gradient de température dans la zone pâteuse.....	58
3.2.2.1	Cas général.....	58
3.2.2.2	Cas particulier des points situés juste au dessus de l'extension.....	60
3.2.3	Métallographie.....	61
3.2.3.1	Attaques métallographiques et préparation des échantillons.....	61
3.2.3.2	Mesure de la densité d'axes dendritiques primaires.....	61
4.	PRINCIPALES ÉTAPES DE LA FABRICATION DE MONOCRISTAUX EN PLAQUES MINCES.....	64
4.1	Observations d'une section verticale d'un sélecteur.....	66
4.2	Germination des grains au contact d'une surface refroidie.....	68
4.3	Mécanisme d'extension et de compétition dans le sélecteur.....	69
4.4	Extension en sortie de sélecteur.....	72
5.	ÉTUDE DES RÉSEAUX DENDRITIQUES EN PAROIS MINCES D'ALLIAGES TRANSPARENTS.....	76
5.1	Formation des réseaux en sortie de "sélecteur".....	78
5.1.1	Étude de l'extension latérale d'un axe secondaire.....	80
5.1.2	Étude de la croissance des bras tertiaires et de leur compétition au cours d'une extension latérale.....	83
5.2	Étude de l'influence de la vitesse tirage sur le gradient de température.....	85
5.3	Évolution des réseaux à grande distance.....	85
5.3.1	Croissance en épitaxie sur un solide partiellement refondu.....	86
5.3.2	Cas de plaques équipées d'un canal de "sélection".....	91

5.3.3	Évolution locale de l'espacement dendritique primaire lors de l'apparition d'un nouvel axe primaire.....	92
5.3.4	Influence de la vitesse de tirage et du gradient de température.....	93
5.4	Observations complémentaires relatives à la formation et l'évolution des monocouches dendritiques.....	101
5.4.1	Effet de la distance entre les plaques.....	101
5.4.2	Effet de la désorientation des grains.....	104
5.4.3	Influence d'un changement de la vitesse de tirage.....	105
5.4.3.1	Augmentation de la vitesse de croissance, sauts de faible amplitude.....	106
5.4.3.2	Augmentation de la vitesse de croissance, sauts de grande amplitude.....	109
5.4.3.3	Diminution de la vitesse de croissance, sauts de faible amplitude.....	111
5.4.3.4	Effets cumulés de l'épaisseur de la plaque et des changements de vitesse.....	113
5.4.4	Étude de l'influence du réseau sous-jacent dans le cas d'une croissance en épitaxie sur un solide partiellement refondu.....	114
6.	ÉTUDE DES RÉSEAUX DENDRITIQUES EN PAROIS MINCES DE MONOCRISTAUX D'AM1.....	117
6.1	Observations qualitatives des sections d'AM1.....	119
6.1.1	Adaptation du réseau en sortie de sélecteur.....	119
6.1.2	Morphologie du réseau loin de la sortie de sélecteur.....	121
6.2	Étude expérimentale des échanges thermiques observés durant la solidification.....	124
6.2.1	Étude des températures enregistrées durant l'expérience 1500/2/i....	124
6.2.2	Étude des températures enregistrées durant l'expérience 1500/10/i...	133
6.3	Évolution globale des réseaux.....	136
6.4	Variations locales de l'arrangement dendritique, effet de la position du champ de mesures sur la section.....	141
7.	CONCLUSION.....	144
8.	ANNEXES.....	150
8.1	Germination de grains.....	151
8.1.1	Germination d'un grain parasite lors d'une extension latérale.....	151
8.1.2	Germination de grains en parois minces dans un liquide surfondu...	152
8.2	Effets de la présence d'une bulle dans les alliages transparents ou d'une gaine d'alumine dans l'AM1.....	154

8.2.1 Influence sur le réseau solidifié de la présence d'une bulle dans l'alliage	154
8.2.2 Effet de la présence d'une gaine d'alumine dans une plaque d'AM1. .	156
8.2.3 Conclusion.....	156
8.3 Enregistrements des températures obtenus lors des coulées d'AM1.....	157
8.3.1 Enregistrements de température effectués lors de l'expérience 1500/2/i.....	157
8.3.2 Enregistrements de température effectués lors de l'expérience 1500/10/i.....	157
9. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	160

TABLE DES FIGURES

Figure 1.1 : Évolution de la température d'entrée du gaz dans la turbine au cours des cinquante dernières années	16
Figure 1.2 : Section partielle d'une aube mobile HP du moteur M88 et agrandissement d'une partie montrant deux parois.....	17
Figure 2.1 : Définition de la nomenclature couramment utilisée pour définir les bras qui forment un arrangement dendritique.....	22
Figure 2.2 : Schéma définissant les principales caractéristiques microstructurales des dendrites colonnaires.....	23
Figure 2.3 : Variation de l'espacement primaire avec la teneur en acétone dans le cas où $V_c = 16.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ ¹²	24
Figure 2.4 : Définition des angles Φ et Ψ	28
Figure 2.5 : Variation de l'espacement primaire en fonction de Φ pour un alliage n°1 avec 0.22 % massiques d'éthanol, et un alliage n°2 avec 0.6 % massiques d'éthanol.....	29
Figure 2.6 : Illustration de la compétition lors d'une croissance colonnaire dendritique.....	31
Figure 3.1 : Diagramme de phases du composé binaire succinonitrile-acétone.....	39
Figure 3.2 : Schéma de montage des plaques minces.....	40
Figure 3.3 : Schéma de l'installation de croissance dirigée d'alliages organiques transparents. .	42
Figure 3.4 : Enregistrements de température réalisés au cours de chauffages plus ou moins rapides d'une plaque d'épaisseur égale à 200.10^{-6} m	43
Figure 3.5 : Variation de la vitesse de chauffage de l'échantillon avec la température pour les trois courbes de la figure 3.4.....	44
Figure 3.6 : Estimation de la température de liquidus par extrapolation de la température de fin de fusion à vitesse de chauffage nulle.....	45
Figure 3.7 : Évolution de la vitesse de tirage en fonction de la tension appliquée au moteur.	46
Figure 3.8 : Profil de température entre les zones chaude et froide au cours d'une expérience...	47
Figure 3.9 : Variation de la température en deux points d'une lame de 200.10^{-6} m d'épaisseur au cours des expérience à $V_T = 22.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, $90.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et $300.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	49
Figure 3.10 : Schéma de la vue de face (a), et de dessus (b) d'une grappe constituée de trois plaques d'épaisseur 1, 2 et 3.10^{-3} m disposées à 120°	52
Figure 3.11 : Emplacement des thermocouples dans les plaques de 1, 2 et 3.10^{-3} m d'épaisseur.....	53
Figure 3.12 : Enregistrements d'ATD obtenus sur un échantillon d'AM1 pour 3 vitesses de chauffage imposées.....	54
Figure 3.13 : Extrapolation des températures de solidus et de liquidus de l'AM1 utilisé dans nos expériences.	55
Figure 3.14 : Schéma d'un moule placé dans un four de solidification dirigée.....	57
Figure 3.15 : Présentation des calculs effectués sur les courbes de refroidissement pour déterminer les vitesses de croissance et les gradients de température dans la zone pâteuse.	59

Figure 3.16 : Chemin de solidification lors de l'extension du grain en sortie de sélecteur.....	60
Figure 3.17 : Section d'une plaque de 3 mm d'épaisseur. Les dendrites incomplètes en contact avec un des bords de la plaque sont complétées en gris à l'extérieur de la surface par effet miroir.	62
Figure 4.1 : Macrographie du sélecteur de la plaque 1500/2/i de 1 mm d'épaisseur.....	67
Figure 4.2 : Micrographie d'une section du plot de la plaque 1500/2/i/1 mm, prélevée parallèlement à la direction de tirage.....	68
Figure 4.3 : Schéma du sélecteur utilisé par la SNECMA lors de la fabrication de pièces monocristallines.....	69
Figure 4.4 : Illustration d'un changement de direction ménagée prélevée dans le sélecteur de la pièce 1500/2/i/1 mm en AM1 et dans une chicane d'une plaque mince en alliage transparent.	70
Figure 4.5 : Micrographie d'une section transversale d'un sélecteur au niveau du premier coude de changement de direction ⁸²	70
Figure 4.6 : Définition des angles de repérage de la direction de croissance d'une dendrite qui croît dans une partie inclinée du sélecteur.....	71
Figure 4.7 : Variation de la surfusion à la pointe des dendrites en fonction de l'angle ψ pour deux valeurs de α ⁸²	72
Figure 4.8 : Illustrations du mécanisme d'extension en sortie du sélecteur.....	73
Figure 4.9 : Extension latérale d'un grain dans un échantillon auquel on applique une vitesse de tirage de $20.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	74
Figure 4.10 : Extension latérale, forme du front de solidification.....	75
Figure 5.1 : Présentation de la zone d'extension.....	78
Figure 5.2 : Décomposition du mécanisme de l'extension lors de la solidification d'une plaque avec une vitesse de croissance de $20.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et un gradient de température de 2200 K.m^{-1}	79
Figure 5.3 : Séquence d'apparition d'un axe secondaire lors d'une extension latérale.	81
Figure 5.4 : Évolution de la vitesse de croissance du bras secondaire en fonction de la position de sa pointe par rapport à l'origine, au cours d'une extension latérale.	82
Figure 5.5 : Variation de la densité linéaire d'axes, en comptant aussi bien les axes primaires que tertiaires, en fonction de la distance à la sortie de sélecteur.	84
Figure 5.6 : Évolution de la taille (Λ) d'un axe primaire créé lors de l'extension.....	84
Figure 5.7 : Variation du gradient de température estimée dans la zone pâteuse en fonction de la vitesse de tirage.....	85
Figure 5.8 : Mesures de l'espacement primaire dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m , $V_T = 11.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	87
Figure 5.9 : Mesures de l'espacement primaire dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m , $V_T = 210.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et $G = 1300 \text{ K.m}^{-1}$	87
Figure 5.10 : Histogramme des espacements primaires dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m , $V_T = 11.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	88
Figure 5.11 : Histogramme des espacements primaires dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m , $V_T = 210.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	88
Figure 5.12 : Variations de λ_{moy} et de σ_{moy} pour différentes vitesses de tirage.	90
Figure 5.13 : Variation de l'espacement primaire moyen, λ_{Moy} , avec la vitesse de tirage loin de la sortie du canal, dans le cas d'une plaque de 100.10^{-6} m d'épaisseur.....	91
Figure 5.14 : Évolution locale de l'espacement primaire au cours de la création d'un nouvel axe primaire.....	92
Figure 5.15 : Variation de l'espacement dendritique moyen, λ_{Moy} , en fonction du gradient de température, pour différentes vitesses de croissance.	94
Figure 5.16 : Évolution de l'exposant a avec la vitesse de croissance.....	95
Figure 5.17 : Variation de l'espacement dendritique primaire avec la vitesse de croissance pour différents gradients de température. Les points portés pour $G = 6700 \text{ K.m}^{-1}$ ont été mesurés par Somboonsuk et col. ⁴² et ceux où $G = 9700 \text{ K.m}^{-1}$ viennent d'Esaka ¹²	96

Figure 5.18 : Variation de l'exposant b avec le gradient de température.	97
Figure 5.19 : Représentation en 3 dimensions dans un diagramme (Log, Log) des fonctions présentées dans les Tableau 5.1 et Tableau 5.2	98
Figure 5.20 : Représentations en diagramme (Log, Log) du plan défini par Mathematica et des fonctions déduites des expériences.....	100
Figure 5.21 : Représentation en coordonnées linéaires du domaine de variation de l'espacement dendritique primaire en fonction de la vitesse de croissance et du gradient de température.....	100
Figure 5.22 : Variation de l'espacement dendritique primaire moyen et de l'écart quadratique moyen dans le cas de cellules de 75 et 100.10 ⁻⁶ m d'épaisseur et pour $V_c = 90.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$	102
Figure 5.23 : Variation de l'espacement dendritique primaire dans le cas de plaques de 100, 200 et 400.10 ⁻⁶ m d'épaisseur.....	103
Figure 5.24 : Variation de l'espacement primaire dans le cas d'une lame de 350.10 ⁻⁶ m d'épaisseur et d'une vitesse de tirage de 210.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹	104
Figure 5.25 : Influence de l'orientation, par rapport à la vitesse de tirage, des axes primaires dans un grain sur les espacements interdendritiques primaires.....	105
Figure 5.26 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors d'une augmentation lente de la vitesse de tirage.	106
Figure 5.27 : Évolution de l'espacement primaire moyen avec la vitesse de croissance lors d'expériences réalisées avec $G = 2.000 \text{ K.m}^{-1}$ et un temps de maintien de 60 s.	106
Figure 5.28 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors de changements de la vitesse de tirage d'amplitude de 8,16 ou 24.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹ pour un temps de maintien de 180 s et $G = 3000 \text{ K.m}^{-1}$	107
Figure 5.29 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors de changement de vitesses de tirage d'amplitude de 8,16 ou 24.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹ pour un temps de maintien de 180 s.....	108
Figure 5.30 : Évolution de l'espacement dendritique moyen avec des sauts de vitesse d'amplitude supérieure à 40.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹	109
Figure 5.31 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors d'un saut de vitesse d'amplitude 200.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹	110
Figure 5.32 : Mise en évidence de la présence de deux plans de croissance dendritique dans une plaque de 350.10 ⁻⁶ m d'épaisseur solidifiée avec une vitesse de 30.10 ⁻⁶ m.s ⁻¹	111
Figure 5.33 : Évolution de l'espacement primaire moyen au cours du temps avec des changements importants de la vitesse de croissance dans une plaque de 350.10 ⁻⁶ m d'épaisseur.....	112
Figure 5.34 : Variation de l'espacement primaire moyen lors de l'augmentation puis de la diminution de la vitesse croissance.	113
Figure 5.35 : Évolution de l'espacement dendritique primaire en fonction de la vitesse de croissance.....	114
Figure 5.36 : Étude de l'effet du réseau sous-jacent, évolutions de l'espacement primaire moyen avec le temps.....	115
Figure 6.1 : Phénomène d'extension dans la plaque 1500/10/i/1 mm.....	119
Figure 6.2 : extrémité d'une section prélevée à 2.10 ⁻³ m au-dessus de l'extension de la plaque 1500/10/i/2 mm.....	120
Figure 6.3 : extrémité identique à celle présentée ci-dessus mais prélevée à 10.10 ⁻³ m au-dessus de l'extension de la plaque 1500/10/i/2 mm.....	120
Figure 6.4 : Section prélevée dans la plaque de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i. ...	121
Figure 6.5 : Section prélevée dans la plaque de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/10/o..	121
Figure 6.6 : Eprouvette de 1 mm, coupe prélevée à 120.10 ⁻³ m de la sortie du sélecteur.....	123
Figure 6.7 : Eprouvette de 2 mm, coupe prélevée à 120.10 ⁻³ m de la sortie du sélecteur.....	123
Figure 6.8 : Eprouvette de 3 mm, coupe prélevée à 120.10 ⁻³ m de la sortie du sélecteur.....	123
Figure 6.9 : Caractérisation de l'espacement primaire et de l'angle entre les alignements et la normale aux grands côtés.	124
Figure 6.10 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance en fonction de la hauteur dans le cas de la plaque de 3.10 ⁻³ m d'épaisseur.	127
Figure 6.11 : Nous avons porté ici le schéma de l'éprouvette de 3 mm avec la position des thermocouples dont elle est équipée. Les courbes illustrent la position de l'interface	

liquide-solide à des temps espacés de 200 s. Les graphes (a) et (e) montrent respectivement les variations de la vitesse de croissance et du gradient de température, en fonction de la position transversale dans la plaque, déduites des enregistrements de température effectués grâce aux thermocouples 1, 2, 3 et 4. Il en est de même pour les graphes (b) et (f) pour les thermocouples 5, 6 et 7, puis (c) et (g) avec 8, 9, 10, enfin (d) et (h) avec 11, 12 et 13.....	129
Figure 6.12 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance, à 2.10^{-3} m au-dessus de la sortie de sélecteur, dans les plaques de 1, 2 et 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i.....	131
Figure 6.13 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance, dans les plaques de 1 et 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i, à $d = 0$ m, en fonction de la distance par rapport à la sortie du sélecteur.	132
Figure 6.14 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance dans la zone pâteuse en fonction de d , dans les plaques de 1 et 2 mm, à 2.10^{-3} m au-dessus de la sortie de sélecteur.....	134
Figure 6.15 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance lors de la solidification de la plaque de 1 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/10/i.	135
Figure 6.16 : Variation de la densité surfacique d'axes dendritiques primaires, en fonction de la hauteur, dans les différentes plaques coulées au cours de cette étude.....	137
Figure 6.17 : Variation de la densité surfacique locale d'axes dendritiques primaires dans la plaque 1500/2/i/3 mm.	141
Figure 6.18 : Variation de la densité surfacique locale d'axes dendritiques primaires dans la plaque 1550/2/i/2/3 mm.....	142
Figure 6.19 : Variation de λ en fonction de $(G.V_c^{0.5})$	143
Figure 6.20 : Variation de λ en fonction de V_r	143
Figure 7.1 : Évolution de la distance d'adaptation du réseau à la sortie du sélecteur en fonction de la vitesse de tirage lors d'expériences effectuées sur l'AM1 et du succinonitrile-acétone.....	147
Figure 8.1 : Germination d'un grain parasite sur une imperfection présente dans la plaque.....	151
Figure 8.2 : Apparition de grains parasites au cours d'une extension latérale à cause de la présence de bulles.....	152
Figure 8.3 : Séquences de la germination de grains dans un liquide surfondu.	153
Figure 8.4 : Séquence de photographies montrant l'interaction entre une bulle située loin d'une zone d'extension latérale et le front de solidification dendritique.	155
Figure 8.5 : Influence de la présence d'une gaine de thermocouple.	156
Figure 8.6 : Enregistrements de température effectués lors de la coulée 1500/2/i.....	158
Figure 8.7 : Variation de la température en fonction du temps au cours de l'expérience 1500/10/i.....	159

TABLE DES TABLEAUX

Tableau 3.1 : Caractéristiques du diagramme de phases des alliages succinonitrile -acétone	38
Tableau 3.2 : Conditions nominales de coulées des pièces en AM1 utilisées au cours de ce travail.....	58
Tableau 5.1 : Résultats des calculs de a et A de la relation $\lambda_{Moy} = A.G^{-a}$ obtenus avec les données présentées sur la Figure 5.15.	95
Tableau 5.2 : Résultats des calculs de b et B de la relation $\lambda_{Moy} = B.V_c^{-b}$ obtenus avec les données présentées sur la Figure 5.17.	97
Tableau 5.3 : Bilan des λ_{Moy} calculés au cours des 5 expériences.....	116
Tableau 6.1 : Résultats des calculs des vitesses de refroidissement et de croissance ainsi que du gradient de température réalisés sur les enregistrements de température faits au cours de l'expérience 1500/2/i.....	125
Tableau 6.2 : Résultat du calcul des vitesses de croissance et des gradients de température réalisés sur les enregistrements faits au cours de l'expérience 1500/10/i.....	133
Tableau 6.3 : Résultats des mesures d'espacements primaires et de désorientation des bras secondaires dans les différentes plaques coulées lors de cette étude.....	140
Tableau 7.1 : Récapitulatif des résultats obtenus sur alliages organiques transparents et sur AM1.....	148

TABLE DES SYMBOLES ET NOTATIONS

Symboles	Définitions	Unités
α	Angle entre la direction de croissance d'une dendrite et le plan perpendiculaire à la direction de tirage	°
β	Angle entre les bras secondaires et les parois	°
$C_{\text{acétone}}$	Concentration en acétone dans l'alliage	% massiques
d	Distance latérale dans la plaque par rapport à l'axe de la sortie de sélecteur	m ou mm
d_c	Largeur du canal de constriction	m
δ	Distance d'adaptation du réseau à la sortie de sélecteur	m
ΔT	Différence de température entre deux points du front de solidification	K
dT/dt	Vitesse de chauffage	°C.s ⁻¹
ΔV	Amplitude de saut de vitesse de tirage	m.s ⁻¹
e	Épaisseur d'une plaque	m ou mm
G	Gradient de température	K.m ⁻¹
h	Hauteur dans la plaque par rapport à la sortie de sélecteur	m ou mm
k_0	Coefficient de partage	% massiques/ % massiques
l	Distance entre les zones chaude et froide	m
λ	Distance entre dendrites premières voisines	m
Λ	Longueur d'un axe dendritique primaire de sa base à sa pointe	m ⁻¹
λ_1, λ_2	Distances entre axes primaires premiers voisins selon l'une ou l'autre des directions de croissance des bras secondaires	m
λ_{moy}	Distance moyenne entre dendrites premières voisines estimée sur une photographie	m
λ_{Moy}	Distance moyenne entre dendrites premières voisines estimée sur la durée d'une expérience	m
λ_o	Espacement dendritique primaire mesuré entre les pointes de deux dendrites originelles	m
λ_i	Espacement dendritique primaire entre la "dendrite mère" et la "dendrite fille"	m
m_l	Pente du liquidus	K/% massiques
m_s	Pente du solidus	K/% massiques
n_l	Densité linéaire d'axes dendritiques primaires	m ⁻¹
$n_{p \text{ local}}$	Densité surfacique d'axes dendritiques primaires estimée sur une partie de section	m ⁻²

σ_M	Écart type estimé sur les distances entre dendrites premières voisines sur la durée d'une expérience	m
σ_{moy}	Écart type estimé sur les distances entre dendrites premières voisines sur une photographie	m
t	Temps	s
T_1	Température de la zone chaude	°C
T_2	Température de la zone froide	°C
T_F	Température de fusion	K
T_{Four}	Température de régulation du four monoaube	°C
T_L	Température de liquidus	°C
t_L	Temps de début de solidification	s
T_S	Température de solidus	°C
t_S	Temps de fin de solidification	s
U	Tension électrique délivrée au moteur	V
V_{cs}	Vitesse de croissance d'un bras secondaire	m.s ⁻¹
V_r	Vitesse de refroidissement	K.s ⁻¹
V_T	Vitesse de déplacement (ou de tirage) de la plaque mince	m.s ⁻¹
V_{TF}	Vitesse de tirage de fin d'expérience	m.s ⁻¹
x	Distance par rapport à la sortie de la zone chaude	m
x_1	Position à l'instant 1	m
x_2	Position à l'instant 2	m
Δx	Déplacement du front entre deux clichés	m
ψ	Angle entre la direction de croissance d'une dendrite et le plan du sélecteur	°

Chapitre 1

INTRODUCTION

Dans la nature, l'observateur attentif rencontre de la matière solide aux formes surprenantes, à la fois ordonnée et désordonnée. Les cristaux dendritiques ont une large place. Leur forme évoque naturellement celle d'un arbre. On retrouve cette analogie dans l'étymologie du mot dendrite qui signifie "tel qu'un arbre". On les rencontre à la fois dans les flocons de neige et dans les métaux industriels. Le volume de la production mondiale de métaux et alliages permet d'estimer à mille milliards le nombre de dendrites formées par seconde. C'est pourquoi elles suscitent un intérêt marqué par les scientifiques qui tentent de définir les mécanismes qui donnent naissance à de telles structures au cours d'un processus de cristallisation rapide.

On peut discerner de manière simple deux types de processus de solidification dendritique :

- La solidification équiaxe rencontrée à la fois dans les cristaux de neige et dans les gros lingots d'acier. Dans ce cas, aucune direction de croissance n'est privilégiée. Les cristaux ont schématiquement la forme d'une étoile dont chaque branche est constituée par une dendrite.
- La solidification dirigée utilisée par l'industrie pour la fabrication, par exemple, de matériaux semi-conducteurs très purs, ou de pièces destinées à être placées en sortie de chambre de combustion de turboréacteurs construits pour l'aéronautique.

Ce travail s'inscrit dans le cadre du Contrat de Programme de Recherches "Stabilité Structurale de Superalliages Monocristallins". Il a été initié par la nécessité pour les deux motoristes français que sont la SNECMA et TURBOMÉCA d'introduire des pièces monocristallines en superalliage dans leurs turbomachines dans le but d'améliorer leurs caractéristiques ¹. L'effort économique qu'impose la réalisation de ces pièces est rentabilisé par l'amélioration des performances et du rendement des moteurs ². Ainsi depuis la mise en service

des turbos machines pour la propulsion d'aéronefs, de nombreuses équipes de recherche ont, par leurs contributions, repoussé sans cesse les limites d'utilisation des pièces composant les zones les plus chaudes des moteurs. Pour cela, les procédés de fabrication, la chimie des alliages, la géométrie des pièces et les traitements thermiques se sont avérés être autant d'axes pour augmenter la température d'entrée du gaz dans la turbine, comme le montre la figure 1.1.

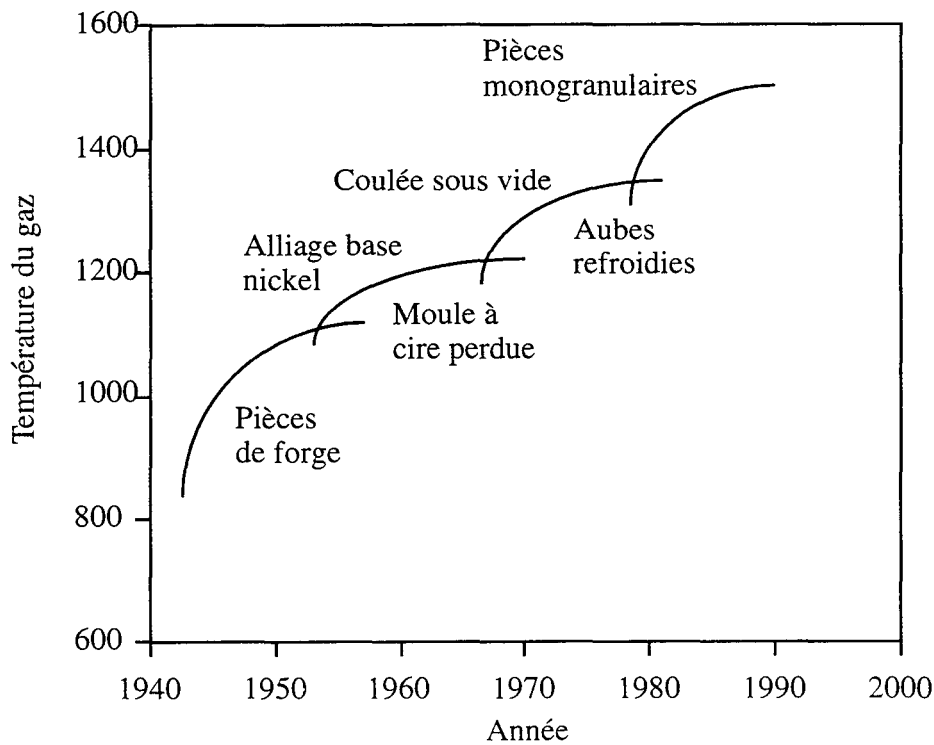


Figure 1.1 : Évolution de la température d'entrée du gaz dans la turbine au cours des cinquante dernières années ³.

L'AM1 ^{4,5} est un superalliage à base de nickel qui a été défini pour la fabrication de telles pièces. Il a été conçu par la SNECMA en association avec IMPHY S.A., le Centre des Matériaux de l'École des Mines de Paris et l'ONERA pour la fabrication de pièces monogranulaires. L'AM1 se durcit par précipitation et contient à température ambiante environ 70 % en volume de précipités. Ce durcissement intense entraîne que la fabrication de pièces aux formes complexes ne peut être réalisée qu'avec la technique de coulée à cire perdue. Les pièces monogranulaires sont obtenues en solidification dirigée, procédé Bridgman ^{6,7}, avec leur axe principal parallèle à la direction cristallographique <001> du matériau. Dans cette direction, le module d'Young est faible. De fait, les superalliages à base de nickel possèdent une grande anisotropie des propriétés mécaniques. Elle est particulièrement favorable vis-à-vis de la fatigue oligocyclique rencontrée dans le fonctionnement des aubes de turbines.

La possibilité de fabrication de pièces monogranulaires fait qu'il n'est plus utile d'introduire dans la composition des superalliages des éléments renforçateurs de joints de grains. Ceux-ci avaient pour inconvénient de baisser les températures de solvus et de solidus du superalliage. Une hausse de la température de fonctionnement des turbines peut être envisagée. Pour que la limite thermique d'utilisation des pièces soit encore plus repoussée, les moules sont équipés de noyaux en céramique qui ménagent un circuit de refroidissement interne ⁸. Ces aubes sont par conséquent composées de parois très fines (voir la figure 1.2), d'épaisseur comparable à quelques distances interdendritiques, dont la section varie souvent.

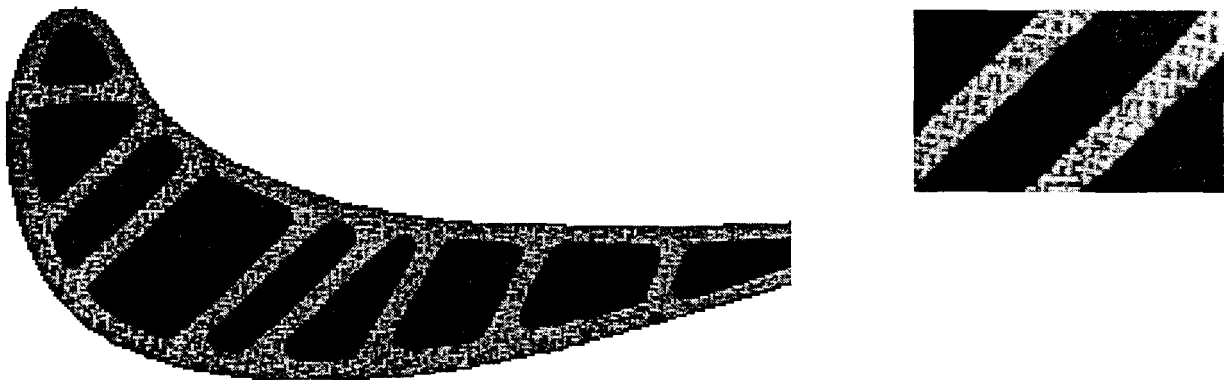


Figure 1.2 : Section partielle d'une aube mobile HP du moteur M88 et agrandissement d'une partie montrant deux parois.

Lors de la solidification, les changements rapides ou ménagés de section, la présence de plates-formes dans la géométrie de la pièce, sont autant de facteurs permettant l'apparition de défauts rédhibitoires. Ils ne seront pas éliminés par les traitements thermiques et peuvent apparaître sous la forme de grains parasites dont l'orientation cristallographique n'a aucun rapport avec le grain principal, ou sous forme de porosités. Nathalie Siredey ² a montré l'existence de désorientations entre dendrites, qui sont à l'origine de la formation de sous-grains dans la zone d'extension du grain et en sortie de sélecteur.

Les études menées au cours de notre travail ont pour but de décrire la croissance des réseaux dendritiques monocristallins lorsqu'ils se développent dans une paroi mince. Cette condition est définie par le fait que la taille caractéristique des structures primaires de solidification est du même ordre que l'épaisseur de la paroi. Elle est effectivement observée dans les aubages

des ailettes à refroidissement interne réalisées par solidification dirigée ou monocristalline, comme le montre la figure 1.2.

Nous étudions dans ce travail la croissance des réseaux dendritiques monocristallins, aussi bien dans les zones à section constante que dans les zones d'extension du grain, en sortie de sélecteur ou dans les plates-formes. On s'intéressera plus particulièrement à l'effet des conditions nominales de croissance, gradient de température et vitesse de tirage, et aux interactions éventuelles entre le réseau dendritique et les parois du moule.

Pour mener à bien cette étude, les deux supports expérimentaux suivants sont utilisés :

- éprouvettes en superalliage AM1, en forme de plaques de 1, 2 et 3 millimètres d'épaisseur, dont certaines sont instrumentées à l'aide de thermocouples.
- observations in situ de la solidification en lames minces, grâce à une installation de solidification dirigée d'alliages organiques transparents ¹⁰.

Une confrontation entre les résultats observés post mortem sur les sections de plaques en AM1 et in situ dans les plaques en alliages transparents permettra de caractériser l'influence des conditions macroscopiques de croissance sur les réseaux formés.

Ce manuscrit est composé de 6 chapitres principaux. Le premier d'entre eux rappellera au lecteur les connaissances acquises dans la littérature sur la solidification dendritique unidirectionnelle, en s'intéressant plus particulièrement à l'espacement dendritique primaire et aux diverses situations qui entraînent son évolution. Nous ferons le point sur les résultats obtenus dans les études du développement des réseaux dendritiques dans des zones d'extension ou de constriction. La solidification en paroi mince sera abordée.

Après avoir présenté les techniques expérimentales utilisées dans ce travail, et avant d'aborder le premier chapitre de résultats, nous décrirons, de manière qualitative, les principales étapes rencontrées lors de la fabrication de monocristaux dendritiques. Ce chapitre permettra de bien préparer le terrain pour les parties suivantes dans lesquelles les aspects quantitatifs seront abordés. Les résultats obtenus avec l'installation de solidification dirigée d'alliages organiques transparents seront présentés dans un premier temps. Nous énoncerons les processus mis en oeuvre lors de la formation de réseaux en sortie de sélecteur et leur évolution à grande distance sans changement de section. Puis, nous montrerons quelques observations complémentaires relatives à la formation et l'évolution des monocouches dendritiques dans diverses conditions

macroscopiques de croissances. Dans un second temps, les résultats obtenus lors de l'étude des réseaux dendritiques des plaques monocristallines d'AM1 seront donnés. Nous nous sommes attachés, autant que possible, à utiliser des méthodes de dépouillement similaires à celles employées pour les expériences effectuées sur les alliages transparents. Ainsi, nous aborderons l'évolution des réseaux à grande distance du sélecteur et leur adaptation en sortie de sélecteur, et aussi leurs irrégularités. Enfin, dans la conclusion, nous nous attacherons à comparer les résultats observés in situ dans les alliages transparents avec ceux obtenus post mortem sur les plaques en superalliage à base de nickel. Nous établirons par exemple l'influence de l'épaisseur de la paroi sur le réseau lors de la solidification monogranulaire en plaque mince telle qu'elle est rencontrée dans la fabrication des aubes à refroidissement interne.

Chapitre 2

ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE

De très nombreux auteurs ^{9, 11, 12, 13, 14, 15} ont présenté dans leurs travaux une revue bibliographique des comportements généraux de la croissance dendritique et des résultats qui s'y rapportent récemment publiés dans la littérature. Ils ont synthétisé les différents modèles définissant les transitions de mode de croissance, front plan-croissance cellulaire, cellulaire-dendritique unidirectionnelle ¹⁶, dendritique-équiaxe et rappelé la théorie qui s'y rattache.

Nous nous intéressons dans ce chapitre aux connaissances de base sur la formation des microstructures et des réseaux dendritiques en solidification dirigée. Cette revue ne se veut pas être exhaustive mais apporte les informations nécessaires et utiles à la lecture des chapitres suivants.

Dans un premier temps, nous rappelons les paramètres importants qui régissent la Société des dendrites. L'influence de la vitesse de croissance, du gradient de température et de la surfusion sont abordés.

Ensuite, nous donnons une revue des nombreux défauts rencontrés lors de solidification de pièces monocristallines, et de leur origine lorsqu'elle est connue.

2.1 La Société des dendrites

Tout au long de ce travail, il est montré que, lors de la solidification dirigée d'une pièce, les dendrites forment un ensemble d'individus régis par les mêmes lois qui, au fur et à mesure, occupe tout l'espace mis à sa disposition. Des paramètres précis définissent les réseaux que forme cette Société.

2.1.1 Principaux paramètres des réseaux et arrangements dendritiques

Comme illustrées par la figure 2.1 qui est une photographie réalisée lors de la solidification dirigée d'un alliage succinonitrile-acétone avec l'installation expérimentale présentée dans le chapitre 3, les dendrites ont une forme complexe comparable à celle d'un sapin. Ainsi est appelé bras, ou axe, primaire (noté P) le tronc principal du "sapin". Les bras secondaires (notés S) prennent naissance sur les axes primaires et grandissent perpendiculairement à ceux-ci. Enfin, les bras tertiaires, ici parallèles aux axes primaires, trouvent leur origine sur les axes secondaires. Les bras tertiaires (notés T) sont difficilement observables dans un réseau qui se solidifie à section constante sans création de dendrites nouvelles. Les directions de croissances associées à ces troncs et branches de dendrites correspondent à des orientations cristallographiques préférentielles. De nombreux auteurs ^{17, 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25} ont montré que la direction de croissance des dendrites de métaux cubiques centrés ou cubiques à faces centrées correspond à une direction cubique du réseau cristallin sous-jacent. C'est pourquoi en solidification dirigée monogranulaire, on parle de croissance $\langle 001 \rangle$ ou $\langle 111 \rangle$.



Figure 2.1 : Définition de la nomenclature couramment utilisée pour définir les bras qui forment un arrangement dendritique.

Cependant de très faibles différences d'orientation cristallographique ont été mises en évidence à l'intérieur d'un même grain ^{26, 27, 28, 29}.

Les principales grandeurs caractéristiques des structures obtenues par solidification dirigée sont indiquées sur la figure 2.2. Entre chaque dendrite, il subsiste une zone liquide en surfusion qui sera comblée par le développement des bras secondaires. On ne remarque pas la présence de bras tertiaires. L'espacement primaire λ_1 correspond en croissance colonnaire à la distance entre axes primaires premiers voisins. Dans la suite de ce travail, c'est sur ce paramètre que se portera notre attention et nous le noterons λ . L'espacement entre bras secondaires premiers voisins est noté λ_2 . Enfin le rayon de courbure R de la pointe de la dendrite est aussi un facteur caractéristique.

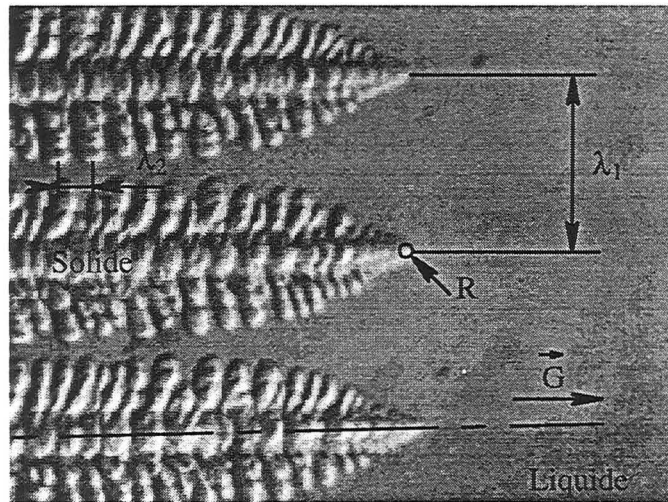


Figure 2.2 : Schéma définissant les principales caractéristiques microstructurales des dendrites colonnaires.

Dans les pièces suffisamment massives pour que plusieurs rangées de dendrites coexistent dans l'épaisseur, leur arrangement les unes par rapport aux autres est un paramètre important, car il détermine, entre autres, la répartition des eutectiques de fin de solidification qui influencent les propriétés mécaniques macroscopiques de la pièce ³⁰. Le réseau formé par les dendrites peut être à symétrie carrée, hexagonale ou mixte. C'est la densité d'axes primaires n_p qui sera définie comme paramètre caractéristique. Les travaux de différents auteurs ^{31, 32} ont permis le passage de la densité d'axes primaires à l'espacement primaire.

Hunt ³³, Kurz et Fisher ³⁴, Trivedi ³⁵ et d'autres auteurs ont exposé des modèles qui proposent de décrire les évolutions de λ_1 et R en fonction de la composition de l'alliage, du gradient de température G et de la vitesse de croissance V_c . Ils donnent :

$$\lambda = c (G.V_c^{1/2})^{-1/2} \quad [2.1]$$

Ces modèles ont été, au moins partiellement, validés par de nombreux auteurs ^{36,37,11,38,39} qui en fonction de leur support expérimental trouvent que leurs résultats expérimentaux s'accordent avec l'un ou l'autre de ces outils numériques.

Esaka ¹² a montré que la composition de l'alliage succinonitrile-acétone avait une grande influence sur l'espacement primaire. La figure 2.3 présente la corrélation obtenue par cet auteur entre la quantité d'acétone dans l'alliage et l'espacement primaire moyen, dans le cas d'une croissance à $16.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ sous un gradient de température de 2000 K.m^{-1} . Une augmentation de la concentration d'acétone dans l'alliage entraîne une augmentation du λ_{moy} .

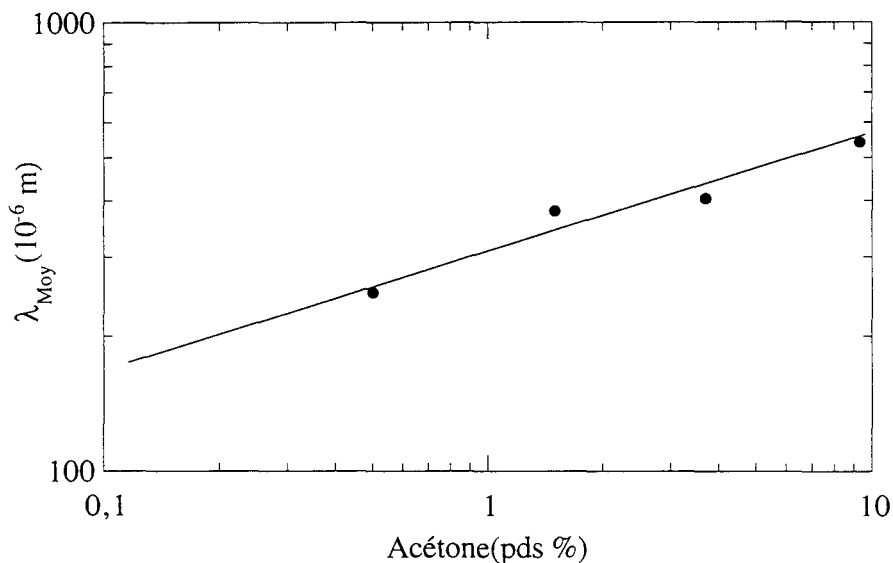


Figure 2.3 : Variation de l'espacement primaire avec la teneur en acétone dans le cas où $V_c = 16.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ ¹².

Trivedi et Mason ³⁶ ont fait le même constat sur un alliage acide pivalic-éthanol. Le facteur c qui apparaît dans l'expression [2.1] de λ en fonction de G et V_c dépend de la concentration de l'alliage étudié. Xia et col. ⁴⁰ ont estimé la composition en acétone du liquide à l'interface solide-liquide dans un alliage transparent par spectroscopie infrarouge. Trivedi et Kurz ⁴¹ ont récemment énoncé les corrélations entre ces grandeurs caractéristiques de réseau que sont la vitesse de

croissance, le gradient de température et la concentration en soluté de l'alliage, et des paramètres de phénomènes physiques tels que la diffusion de soluté, la diffusion thermique et l'effet de capillarité.

Somboonsuk et col. ⁴² ont établi l'influence de l'épaisseur de la paroi sur l'espacement dendritique primaire dans un alliage succinonitrile-acétone. Pour un gradient de température de 6700 K.m^{-1} , ils montrent que l'effet est notable lorsque la vitesse de croissance est inférieure à $60.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et que l'épaisseur de la paroi n'excède pas 150.10^{-6} m . Lu et col. ⁴³ ont dernièrement montré par simulation numérique que, au cours d'une solidification dirigée horizontale de type Bridgman, la convection naturelle est présente même dans le cas de paroi mince (épaisseur comprise entre 175 et 700.10^{-6} m). Pour une épaisseur de 175.10^{-6} m , la convection naturelle est très proche de zéro. Ils ont vérifié expérimentalement leurs résultats en introduisant dans l'alliage un traceur optique qui met en évidence le mouvement du liquide à l'interface. Ils concluent que l'épaisseur de la plaque a une grande influence sur la convection naturelle. Ainsi, un doublement de l'épaisseur entraîne une multiplication par un facteur 8 de la vitesse du fluide.

Jacobi et col. ³¹ ont réalisé une étude détaillée des arrangements dendritiques dans les aciers. Ils ont constaté que plusieurs types d'arrangements pouvaient coexister dans un même grain. C'est pourquoi ils estiment que la densité surfacique d'axes primaires est un paramètre plus objectif que l'espacement primaire. La transformation de n_p en λ peut être faite en considérant que le réseau dendritique est carré ou hexagonal. Dans le premier cas, λ sera égal à $n_p^{-0.5}$, dans le second $\lambda = 1,075.n_p^{-0.5}$. Ils estiment à 7.5 % l'erreur commise entre les deux hypothèses ce qui permet pour tout réseau d'utiliser l'une ou l'autre des relations sans commettre une erreur trop importante. En étudiant par analyse d'image la périodicité des structures, Lacaze ³² montre qu'il existe une certaine régularité de l'arrangement dendritique dans la direction des bras secondaires. Le réseau apparaît alors comme étant intermédiaire entre un arrangement carré et hexagonal, de sorte qu'il n'y a pas de corrélation entre un axe et ses seconds voisins. Lacaze et col. ³⁷ observent que lorsque les structures sont fortement dendritiques, l'arrangement est moins régulier que celui qui apparaît à fort gradient de température ou à faible vitesse de croissance. D'autres auteurs ^{44,45} avaient déjà noté la présence d'alignements de dendrites, s'étendant suivant des directions $\langle 100 \rangle$. Flemings a montré qu'ils se trouvent généralement dans les directions dendritiques $\langle 100 \rangle$ les plus proches de la direction du flux de chaleur. Tenant compte de ces alignements et de leur disposition, Rappaz et Blank ²⁴ ont défini un concept de maille dendritique, par analogie aux mailles de réseaux cristallins rencontrées en cristallographie. Après avoir modélisé en 3 dimensions un réseau orthorhombique centré, ils ont pu simuler les structures obtenues sur des

coupes réelles. Lorsque l'arrangement dendritique ne présente pas une périodicité bien définie, ils considèrent qu'un motif hexagonal représente la meilleure approximation des structures.

Han et Trivedi ⁴⁶ ont présenté des résultats obtenus sur un alliage succinonitrile-acétone où les espacements primaires mesurés se répartissent sur un large intervalle. Ils ont pris soin au cours de leur étude d'utiliser des conditions expérimentales de manière à évoluer dans un domaine libre de convection pour que la large distribution des espacements primaires observée ne trouve pas son origine dans un autre mode de transfert thermique. Simon et col. ⁴⁷ ont étudié les oscillations qui apparaissent au démarrage de la solidification d'une plaque mince de 4-n-octylcyanobiphenyl en alliage avec 1.2 mol % de hexachloroéthane. Ils montrent qu'elles se répartissent sur une distribution assez large. Dans le même temps celle mesurée sur les rayons de tête de dendrite est très faible. Qvested et col. ⁵² ainsi que Lacaze ³² ont fait des observations similaires sur des superalliages à base de nickel. D'autres auteurs ^{48, 49} ont proposé un modèle théorique basé sur des résultats expérimentaux montrant qu'il existe une gamme continue d'espacements dendritiques primaires pour des conditions macroscopiques de croissance données.

Des expériences réalisées ⁵⁰ avec un alliage de succinonitrile-éthanol pour $V_T = 3.10^{-6}$ m.s⁻¹ et $G = 7800$ K.m⁻¹ montrent que, au cours du temps, l'espacement dendritique primaire moyen est constant tandis que l'espacement maximum diminue et que le minimum augmente. Ainsi Weidong et col. définissent un espacement primaire maximum, λ_{max} , et un espacement primaire minimum, λ_{min} . Ils les expriment avec les relations suivantes :

$$\lambda_{max} = a.V^{-b} \quad \text{et} \quad \lambda_{min} = a'.V^{-b'}$$

Où a , a' , b et b' sont des constantes pour un alliage donné qui décroissent avec l'augmentation du gradient de température. Ces formules matérialisent les limites de l'intervalle dans lequel tous les espacements dendritiques primaires sont possibles. Han et Trivedi ⁴⁶ ont fait les mêmes observations. Bechhoefer et Libchaber ⁵¹ donnent une série de 4 photographies qui montrent les 4 mêmes dendrites au cours d'une expérience. Entre chacune d'elles, la vitesse est augmentée de 10.10^{-6} m.s⁻¹. On note que les espacements primaires n'ont pas évolué mais que par contre la morphologie générale de chaque dendrite a changé. En fait ces expériences donnent l'intervalle sur lequel l'espacement dendritique primaire moyen est stable.

2.1.2 Variation de l'espacement dendritique primaire lors d'un changement des conditions de croissance

La majeure partie des études effectuées sur les réseaux dendritiques a porté sur la croissance en régime permanent et la caractérisation des paramètres caractéristiques. Peu d'auteurs se sont penchés sur l'évolution dynamique de l'espacement primaire. La complexité des phénomènes en est sans doute la cause. En effet, beaucoup de critères peuvent obliger le réseau à se modifier. Il peut s'agir d'un changement en cours de solidification de la vitesse de croissance, du gradient de température, de la section de la pièce, ...

Il a néanmoins été montré ^{45,35} que le rayon de courbure à la pointe de la dendrite s'adapte très rapidement à un brusque changement de la vitesse de croissance. Par contre, le temps d'adaptation de l'espacement primaire est beaucoup plus long. Ce temps est faible lorsque c'est le gradient de température qui varie, comme l'ont montré Quested et Mc Lean ⁵². L'étude ^{38,53} du joint entre deux grains dont les directions de croissance sont différentes a montré que la création d'un nouvel axe primaire s'effectue lorsque la distance entre les deux dendrites qui matérialisent la frontière est supérieure à 2λ . Cette création d'un nouvel axe primaire, rendue nécessaire par une augmentation de la vitesse de croissance ou du gradient de température, un changement de la section de la pièce ou une direction de croissance différente entre deux grains voisins, s'effectue par développement latéral d'un bras secondaire sur lequel apparaissent des bras tertiaires qui, après compétition, sont considérés comme bras primaires ^{52,38,53,24,54,55}. Gandin et col. ⁵⁶ ont mis en oeuvre un automate qui, par un calcul aux éléments finis, prédit l'enveloppe du grain dendritique qui s'étend latéralement lors d'un changement de section de la pièce. Par contre lorsque la vitesse de croissance diminue et que, par conséquent, le réseau doit augmenter son espacement primaire, une compétition de croissance s'instaure. Somboonsuk et col. ⁵³ observent une transition du mode de croissance dendritique-cellulaire. Quand la compétition entre les cellules a permis l'adaptation de l'espacement primaire aux nouvelles conditions de croissance, ils notent un retour à une solidification dendritique.

2.1.3 Désorientation de la croissance et compétition entre grains

Des études systématiques ^{57,58} ont été menées pour définir l'influence sur l'espacement dendritique primaire de l'angle entre la direction de croissance et celle du gradient de température. D'autres ont observé les mécanismes de la compétition qui s'instaure au joint de grain quand les

directions de croissance dans les deux grains sont différentes et mis en oeuvre un automate cellulaire simulant la formation de grains dendritiques lors de la solidification ^{59,60,61,62}.

Si les travaux de Ma et col. ⁵⁷ ont porté sur la croissance dendritique dans un superalliage à base de nickel, Grugel et Zhou ⁵⁸ l'ont étudié dans un alliage organique transparent, le succinonitrile-acétone. Trivedi et col. ⁶³ ont étudié l'effet de la désorientation de la croissance par rapport au gradient de température lors de la solidification cellulaire d'alliages acide pivalic-éthanol chargés à 0.22 et 0.6 % massiques d'éthanol. Ils ont défini les angles Φ et Ψ comme indiqués sur la figure 2.4. L'angle Φ est celui entre la direction de croissance cellulaire et la direction du flux de chaleur extrait, l'angle Ψ est défini entre la direction cristallographique $\langle 001 \rangle$ et le flux de chaleur.

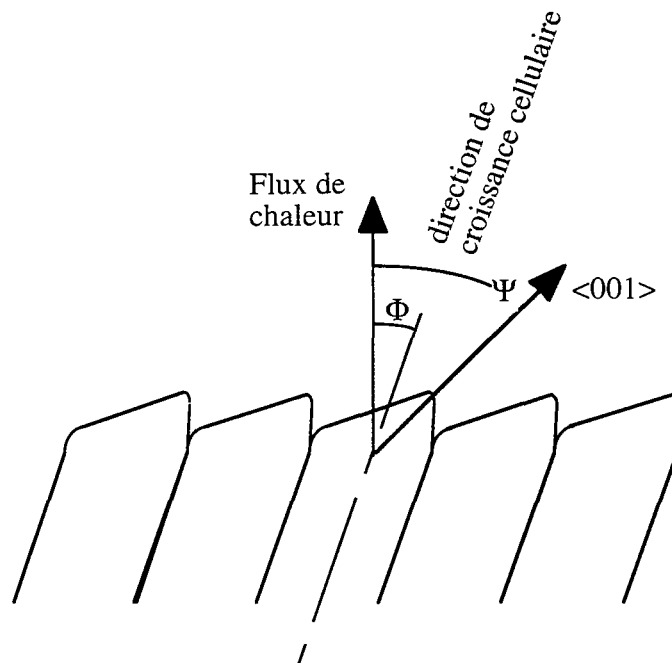


Figure 2.4 : Définition des angles Φ et Ψ .

La figure 2.5 ⁶³ montre la variation de l'espacement primaire en fonction de l'angle Φ lors d'une solidification cellulaire à une vitesse de croissance de $0.5 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Les résultats obtenus pour un alliage 1 avec 0.22 % massiques d'éthanol et un alliage 2 avec 0.6 % d'éthanol, y sont reportés. Trivedi et col. ⁶³ constatent que lorsque l'angle Φ entre la direction de croissance et le flux de chaleur augmente, l'espacement primaire augmente aussi. D'autres auteurs ont fait des observations similaires ⁶⁴.

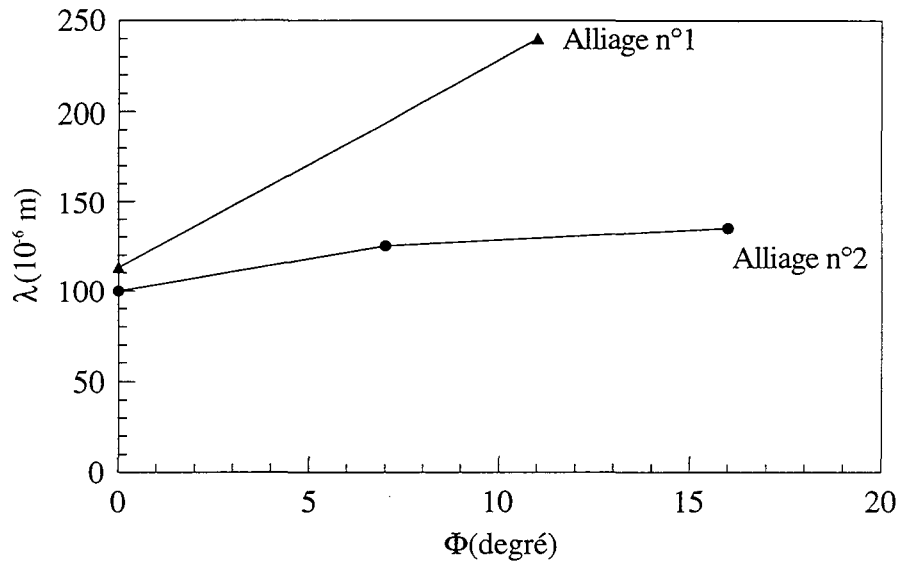


Figure 2.5 : Variation de l'espacement primaire en fonction de Φ pour un alliage n°1 avec 0.22 % massiques d'éthanol, et un alliage n°2 avec 0.6 % massiques d'éthanol.

Cependant, ce type d'études reste suspendu au caractère aléatoire d'obtention d'un grain désorienté dans une plaque, avec une installation de solidification dirigée telle que celle que nous utilisons dans notre étude. Pour explorer plus aisément le domaine de 0 à 45° de l'angle Φ , Grugel et Zhou ⁵⁸ ont adapté l'installation de solidification dirigée présentée par Hunt et col. ¹⁰ en plaçant le bloc chaud et la zone froide sur une platine. Celle-ci permet de donner au gradient de température une orientation différente de celles de la vitesse de tirage et de la direction de croissance et apporte donc une plus grande souplesse expérimentale, en ouvrant l'accès à l'étude de l'influence de l'angle Φ compris entre 0 et 40° sur l'espacement primaire pour des vitesses comprises entre 2 et 50.10⁻⁶ m.s⁻¹, dans un alliage succinonitrile avec 1.4 % massiques d'eau.

Rappaz et col. ⁵⁹ ont étudié la compétition de croissance lors de la solidification en trois dimensions de cordons de soudure sur un monocristal Fe-15Ni-15Cr. Ils observent que certaines directions d'axes dendritiques sont favorisées. Comme les isothermes, et donc le front de solidification ne dépendent pas de la microstructure ⁵⁸ mais seulement du gradient de température imposé, les dendrites qui auront la plus faible vitesse de croissance sont celles dont le chemin à parcourir pour suivre l'isotherme liquidus est le plus court. Celles-ci auront de plus la surfusion la plus faible. Par conséquent, les axes sélectionnés sont ceux dont la direction de croissance $\langle 001 \rangle$ sera la mieux alignée avec la direction du gradient de température. Ce phénomène de compétition sans changement de la direction de croissance imposée par la géométrie de la pièce a

lieu dans le plot d'amorçage situé à la base du sélecteur de grain dont est équipé chaque moule d'aubes de turbine. Il existe alors deux cas de figure en matière de compétition :

- * Deux dendrites voisines ont des directions de croissance convergentes. La surfusion à la pointe est d'autant plus grande que la direction de croissance est éloignée de la vitesse de tirage. De fait, la plus désorientée des deux dendrites est en retrait par rapport à l'autre et viendra "butter" contre sa voisine. Il ne subsiste de cette "collision" que la dendrite dont la direction de croissance est la plus proche de la vitesse de tirage.
- * Au contraire les deux dendrites voisines ont des directions de croissance divergentes. Lorsque la distance entre les deux axes primaires, situés de part et d'autre du joint de grain, est suffisamment importante, on observe l'apparition d'un bras tertiaire qui se transforme très rapidement en bras primaire. Ce bras est né sur un bras secondaire de la dendrite la mieux orientée. Il croit parallèlement à sa dendrite mère. Le grain au sein duquel les axes dendritiques primaires ont une direction [001] la plus proche de celle du gradient de température et de la vitesse de tirage, s'étend latéralement vers l'espace préalablement occupé par le grain de désorientation plus importante.

La figure 2.6, extraite de la thèse de Gandin ¹³, illustre ces deux cas de la compétition entre grains lors de la croissance colonnaire. Le montage photographique, de la figure 2.6.a, est tiré d'un film expérimental réalisé par Esaka lors d'une expérience effectuée avec une plaque telle que celles utilisées dans le chapitre 5, et contenant un alliage de succinonitrile avec 1.3 % massiques d'acétone. Cet échantillon est solidifié de manière unidirectionnelle avec une vitesse de tirage $V_T = 83.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et un gradient de température $G = 1700 \text{ K.m}^{-1}$.

La figure 2.6.a est constituée de trois photographies. La partie inférieure, le premier cliché, permet de visualiser la position des pointes de dendrites au cours de la croissance. L'ensemble du photomontage révèle les frontières entre les grains. La figure 2.6.b donne un schéma de ces frontières entre grains et les angles que fait la vitesse de tirage avec les axes dendritiques primaires. Les grains situés à droite (C) et à gauche (A) croissent quasiment parallèlement à la vitesse de tirage tandis que le grain central (B) a des troncs primaires désorientés qui forment un angle d'environ 30° avec V_T . On peut remarquer que les frontières entre les grains sont assimilables à des droites. La démarcation entre (A) et (B), dont les orientations sont convergentes, est matérialisée par le tronc d'une unique dendrite de (A) contre laquelle viennent butter les dendrites de (B). Ce mécanisme s'explique par le fait que les pointes des dendrites du grain central ont une surfusion plus importante que celles du grain de gauche, dont la direction de croissance est moins, voire pas du tout, désorientée par rapport à la direction

du gradient de température. Ceci implique, comme nous pouvons l'observer sur le cliché inférieur de la figure 2.6.a, que les pointes des dendrites de (B) sont en retrait par rapport à celles de (A). Les dendrites du grain central sont bloquées lorsqu'elles rencontrent le champ de soluté rejeté par les bras secondaires de la dendrite de (A) située sur la frontière.

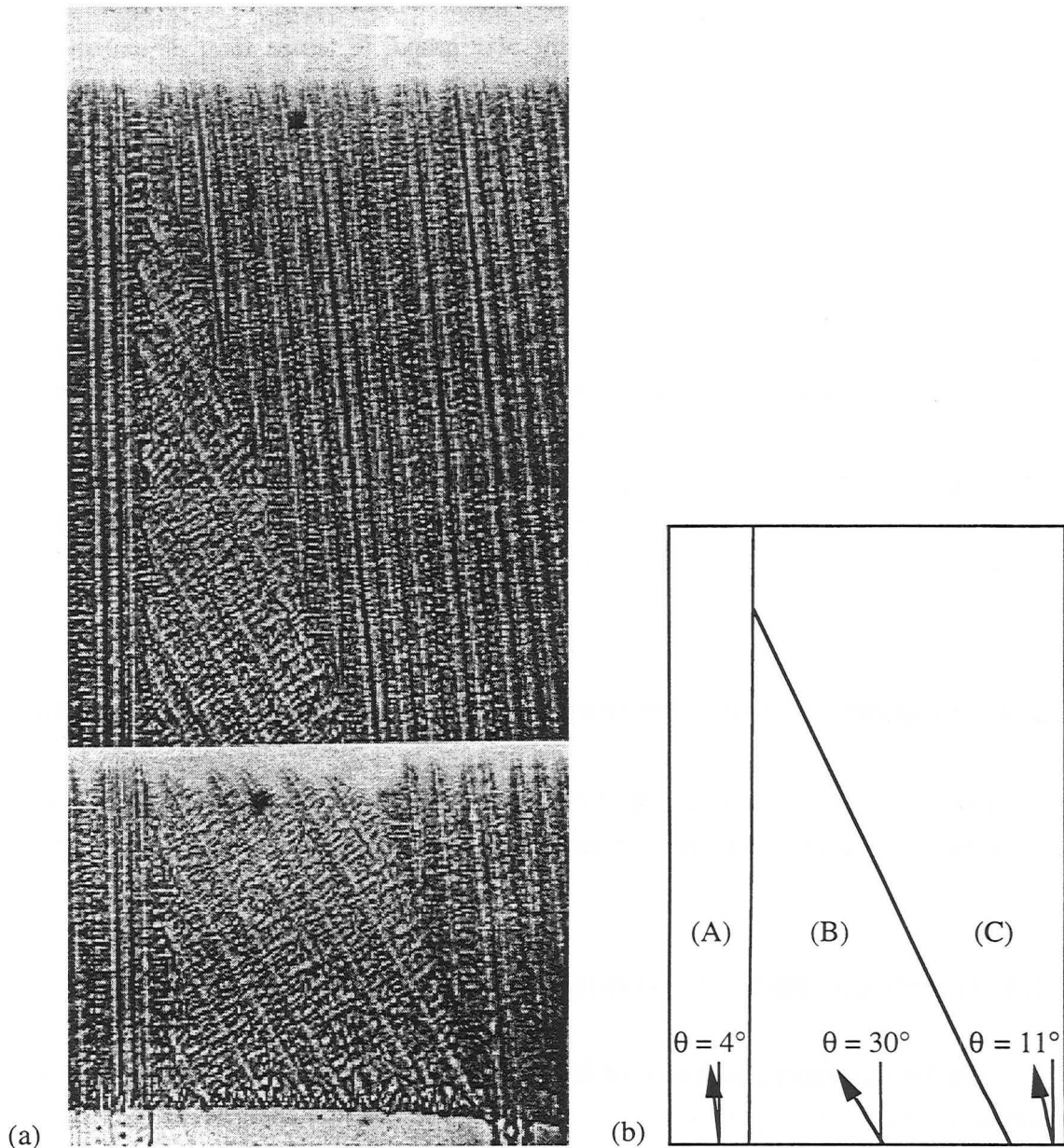


Figure 2.6 : Illustration de la compétition lors d'une croissance colonnaire dendritique.

Dans le grain central et celui de droite, les directions de croissance des dendrites sont divergentes. On peut observer sur la photographie composant la partie basse de la figure 2.6.a, la présence d'une région de liquide au niveau du front de solidification et à la frontière entre (B) et

(C). Des bras secondaires se branchant sur les dendrites frontières du grain central et du grain de droite croissent dans ce "puits liquide". L'apparition de bras tertiaires permet la création de nouveaux troncs primaires. Sur la figure 2.6.a, on peut noter l'apparition de 4 nouveaux axes dendritiques primaires dans le grain central et d'une dizaine dans le grain de droite. On remarque par ailleurs que l'espacement dendritique primaire est beaucoup plus important dans le grain central désorienté que dans les deux grains dont la direction de croissance est proche de celle du gradient de température.

2.1.4 Adaptation du réseau à des contraintes géométriques

De nombreux auteurs ^{65, 66, 67, 68, 69} ont étudié la morphologie dendritique d'un cristal solidifié avec des contraintes géométriques latérales. Sekhar et Trivedi ⁶⁷ étudient l'influence de la largeur, d_c , du canal dans lequel s'effectue la solidification d'un alliage succinonitrile-acétone et mettent en évidence le rapport entre le quotient d_c/λ et la morphologie de l'interface. Fabietti et col. ⁶⁸ ont aussi observé l'adaptation du réseau à un changement, ménagé ou pas, de la section de l'échantillon. Ils notent une augmentation de la vitesse de croissance lors du passage de la constriction qui entraîne un changement de la morphologie de l'interface.

2.2 Principaux défauts rencontrés dans des pièces monocristallines

Dans ce paragraphe, nous rappelons les défauts de coulée les plus souvent rencontrés dans les pièces en superalliage à base de nickel solidifiées avec le procédé Bridgman ^{70, 71, 72}.

2.2.1 Macroségrégations et freckles

Les freckles apparaissent comme des canaux verticaux de petits grains équiaxes ségrégués à la surface de pièces monogranulaires. Ils sont dus à l'apparition de ségrégations dans le liquide présent dans la zone pâteuse. De nombreuses études ont permis de mieux comprendre le mécanisme de leur formation et de le simuler. Smeltzer ⁷² a montré que c'est la ségrégation d'éléments légers de l'alliage qui entraîne l'apparition des freckles et qu'il est possible de les éliminer en diminuant la teneur en silicium dans un alliage réfractaire à base de fer. Giamei et Kear ⁷³ décrivent et étudient la formation des freckles dans les superalliages à base de nickel. Ils n'ont pas observé ce type de défauts dans des échantillons cylindriques de faibles diamètres, leur

nombre diminuant avec la diminution du diamètre du barreau. Les freckles apparaissent à la surface de la pièce à une distance significative de la sole froide dans une région où la vitesse de croissance et le gradient de température diminuent rapidement. Les travaux de Flemings et col. ^{74,75} ont permis une considérable évolution de la compréhension théorique de ce phénomène. Copley et col. ⁷⁶ ont défini en fonction de la vitesse de croissance et du gradient de température le domaine dans lequel les chapelets de grains équiaxes ne se forment pas. De nombreux auteurs ^{77,78} ont développé des modèles permettant de simuler la formation de freckles dans des alliages binaires ou à composants multiples.

2.2.2 Microporosités

Les microporosités sont reconnues comme des défauts qui altèrent la résistance à la fatigue de pièces monocristallines ^{79,80}. Elles peuvent se former tant que le métal n'est pas entièrement solidifié, et ont pour origine la contraction du métal lors de la solidification et l'évolution de l'azote dissout dans l'alliage liquide. Elles sont principalement observées dans les zones d'extension latérale de grain, par exemple au niveau des plates-formes dans les aubes de turbines. Deux facteurs contrôlant la formation de microporosités dans les superalliages à base de nickel ont été identifiés : la fraction volumique d'eutectique en fin de solidification et un effet bouchon associé à la formation de carbure à une température proche du liquidus.

2.2.3 Formation de carbures

La distribution et la morphologie des carbures MC peuvent être influencées par le phénomène de germination hétérogène. Des études ⁸¹ ont montré qu'ils se forment et croissent sur des sites inclusionnaires d'oxydes. Ainsi la quantité et le nombre de carbures peuvent être réduits en contrôlant la quantité d'oxygène et d'azote de l'alliage.

2.2.4 Désorientation du cristal émergent de la constriction

Des calculs de transferts thermiques et des essais lors de coulées ont permis d'améliorer la compréhension des phénomènes qui sont mis en oeuvre lors de la compétition entre grains. Le fonctionnement des sélecteurs qui équipent les moules des pièces monogranulaires est assez bien

compris⁸². La vitesse de tirage lors de la solidification du sélecteur et les températures de coulée de l'alliage et de chauffage du four permettent de contrôler ces désorientations⁸³.

2.2.5 Sous-grains et mosaïcité

De nombreux auteurs⁸⁴⁻⁸⁵ ont mis en évidence une désorientation des axes primaires qui croissent au sein d'un même grain dans des sections constantes. Ce comportement et la rotation du réseau cristallin ont été observés par Siredey⁸⁵. Il semble que ces phénomènes proviennent de contraintes thermomécaniques de la partie solidifiée sur le front de solidification colonnaire dendritique. Cette hypothèse est confortée par le fait que l'on n'observe pas de désorientation suivant la direction de croissance [001] des dendrites. Il a été récemment établi grâce à des calculs thermoélastiques que les contraintes induites par la précipitation de la phase γ' à une température proche du solidus peuvent engendrer des torsions du réseau et des désorientations²⁸. Siredey² a montré que la qualité cristalline se dégrade avec la distance au sélecteur. Elle correspond à une augmentation de la désorientation entre sous-grains et à un accroissement de la courbure divergente du réseau cristallin dans les sous-grains.

2.2.6 Microségrégations importantes et présence d'eutectique hors équilibre entre les dendrites

Siredey² a étudié les ségrégations tant à l'échelle de la dendrite qu'à celle de la section transversale. Il est acquis que la présence d'eutectique γ/γ' hors équilibre réduit les propriétés de fluage⁸⁶ et de ductilité⁸⁷ dans les superalliages à base de nickel.

2.2.7 Effets de l'épaisseur de la paroi sur les propriétés mécaniques des pièces en superalliage

Les propriétés de superalliages solidifiés de façon directionnelle avec des parois de faibles épaisseurs ont été étudiées par différents auteurs. Richards⁸⁸ a utilisé des échantillons de tailles différentes usinés dans des pièces en superalliage à base de nickel. Ses résultats montrent que quel que soit le superalliage utilisé une diminution de la section de l'échantillon entraîne une résistance moins longue à la cassure et une augmentation de la vitesse de fluage, pour des conditions données de traitement thermique. Winstone et Northwood⁸⁹ ont montré en étudiant

des échantillons de faibles épaisseurs coulés aux côtes que la microstructure n'était pas affectée par l'épaisseur de la paroi. De plus, l'influence sur les propriétés de fluage est très faible.

Chapitre 3

TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

Dans le présent chapitre, nous nous attachons à énumérer les techniques expérimentales mises en oeuvre durant cette étude.

Dans une première partie, l'installation de solidification dirigée d'alliage transparent et la fabrication de plaques minces sont présentées. Nous verrons les méthodes que nous utilisons pour la caractérisation de l'alliage contenu dans les plaques, des vitesses de translation de l'échantillon et de croissance, ainsi que du gradient de température dans la zone pâteuse et des échanges thermiques lors des expériences.

Les techniques mises en oeuvre pour l'étude de la solidification dirigée de plaques minces en AM1 sont exposées dans la seconde partie. Après avoir présenté les caractéristiques des échantillons coulés à la fonderie expérimentale de la SNECMA de Gennevilliers, nous définissons la manière avec laquelle les échanges thermiques observés durant la solidification des pièces instrumentées sont quantifiés ainsi que le protocole d'étude des réseaux dendritiques mis en évidence dans les sections.

3.1 Installation de solidification dirigée d'alliages transparents

Pour mieux comprendre les phénomènes entrant en jeu au cours de la solidification, et surtout pouvoir suivre in situ et en temps réel tout le processus de formation des structures de solidification, Hunt et col. ¹⁹ ont conçu une installation de solidification dirigée d'alliages transparents. L'appareillage utilisé au cours de notre étude est dans le principe identique à celui développé par ces auteurs.

3.1.1 Présentation des échantillons et de l'installation expérimentale

3.1.1.1 Choix de l'alliage utilisé et fabrication des échantillons

3.1.1.1.1 Choix de l'alliage transparent

Pour être un modèle adéquat, le composé organique sélectionné doit avoir une bonne transparence dans le visible aux états liquide et solide. Il doit être cristallin à réseau cubique (pour le cas présent) à l'état solide et avoir une faible entropie de fusion afin de présenter des structures de solidification semblables à celles des métaux. De nombreux auteurs ont étudié in situ la formation des structures de solidification en croissance dirigée de composés ayant ces propriétés ²⁰. Les alliages suivants ont été utilisés : succinonitrile-acétone ²¹⁻⁴⁶, succinonitrile-eau ²², NH₄Br ²³, acide pivalic-éthanol ²⁴ ou encore CBr₄-Br₂ ²⁵. Nous avons finalement choisi le mélange succinonitrile-acétone pour cette étude parce que, comme le montre le diagramme de phases de la figure 3.1 la température eutectique est inférieure à 0 °C donc dans un domaine de température bien différent de celui utilisé dans cette étude. Le tableau 3.1 ¹² indique quelques unes des caractéristiques de ce diagramme.

Coefficient de partage k_o (% massiques/ % massiques)	Pente du liquidus m_l (K/% massiques)	Pente du solidus m_s (K/% massiques)	Température de fusion T_F (K)
0.124	-2.8	-25.3	331.083 ± 0.002

Tableau 3.1 : Caractéristiques du diagramme de phases des alliages succinonitrile -acétone ²⁶.

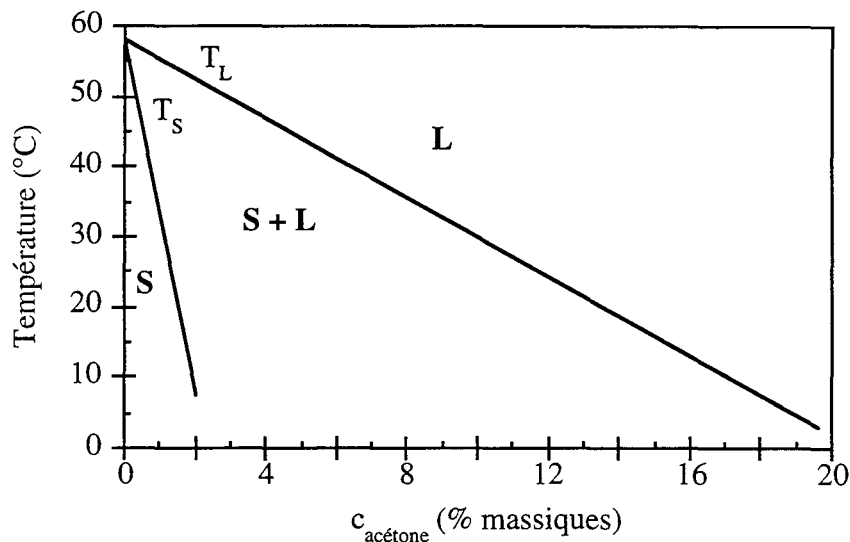


Figure 3.1 : Diagramme de phases du composé binaire succinonitrile-acétone

3.1.1.1.2 Fabrication des plaques minces

Il s'agit de réaliser des échantillons de succinonitrile-acétone sous forme de plaques minces d'épaisseur déterminée. Pour cela, l'alliage est enfermé entre deux plaques de verre dont l'épaisseur doit être suffisante pour éviter qu'elles ne se déforment, et suffisamment faible pour permettre une réponse thermique rapide. Ceci nous a conduits à utiliser des lames de verre de $300 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur. Les plaques minces sont constituées de deux lames de verre de tailles différentes ($150 \times 40 \times 0.3$ mm³ et $130 \times 30 \times 0.3$ mm³) pour faciliter le remplissage. Afin de maintenir un écartement constant, elles sont séparées par un cadre de polyester transparent d'épaisseur calibrée. Le film de polyester est préalablement découpé aux formes désirées, en ménageant un passage, pour le remplissage, à chaque extrémité de la lame. Ces "canaux" seront ultérieurement obturés. L'ensemble est collé sous presse de façon à assurer une épaisseur régulière sans excès de colle. Nous avons instrumenté certaines plaques avec un ou plusieurs thermocouples. Les soudures chaudes des thermocouples ont été réalisées à partir de fils en cuivre et en constantan de diamètre $50 \cdot 10^{-6}$ m. Nous n'avons pu insérer des thermocouples que dans des plaques dont l'épaisseur est supérieure à $100 \cdot 10^{-6}$ m. La figure 3.2 montre sous forme de schémas les deux types de plaques minces qui ont été utilisés au cours de cette étude.

L'épaisseur de la plaque est ensuite mesurée à l'aide d'un palmer micrométrique pour vérifier que sa valeur ne subit pas des variations dimensionnelles supérieures à 10 % de son épaisseur moyenne d'une extrémité à l'autre. Dans un tel cas, l'échantillon est éliminé.

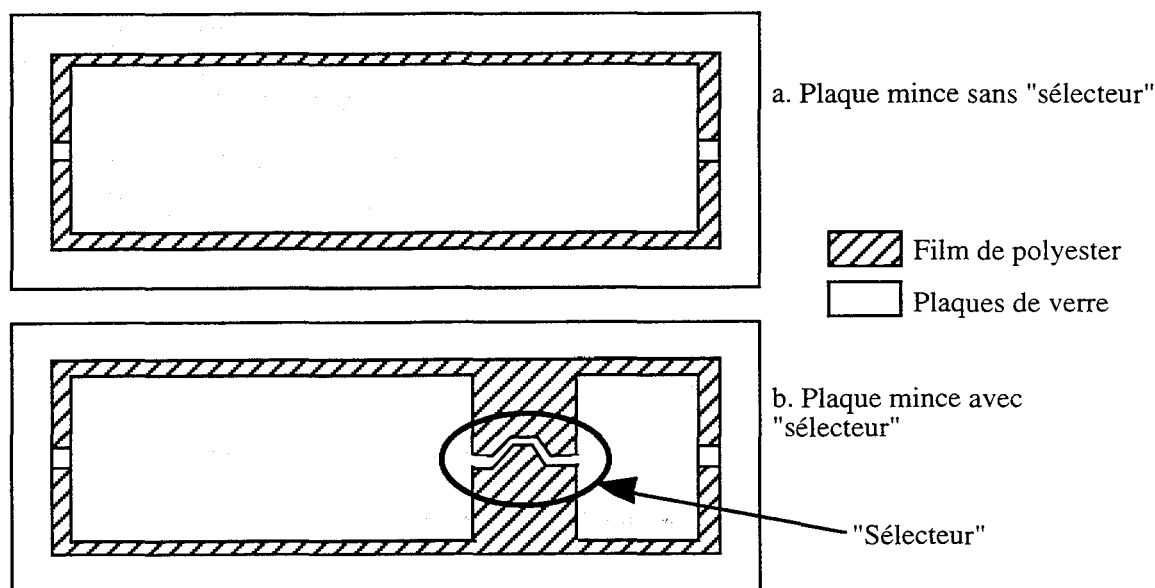


Figure 3.2 : Schéma de montage des plaques minces.

3.1.1.1.3 Préparation de l'alliage

Pour cette étude, nous avons utilisé des produits du commerce, sans chercher à les purifier parce que nous nous intéressons essentiellement aux aspects semi-quantitatifs du développement des structures, contrairement à d'autres auteurs qui ont dû utiliser des alliages purifiés²⁷. Les puretés du succinonitrile et de l'acétone utilisés sont données égales à 99.9 %. La solution est préparée en plaçant tout d'abord du succinonitrile dans un récipient, sur lequel est ensuite versée une faible quantité d'acétone. L'ensemble est homogénéisé par fusion. Il se produit une perte d'acétone par évaporation qui rend difficile le contrôle de la composition exacte de l'alliage.

3.1.1.1.4 Remplissage des plaques minces

Le remplissage de la cellule se fait de la façon suivante. La plaque mince est placée sur une plaque chauffante, dont la température est légèrement supérieure à la température de fusion de l'alliage, l'ensemble étant placé dans une boîte à gants sous atmosphère d'argon. L'alliage posé solide sur la paroi de verre la plus longue, devant une des deux embouchures, fond rapidement. Il pénètre dans la cellule par capillarité. Le gaz contenu entre les parois de verre est évacué par l'extrémité opposée. Afin d'éviter l'emprisonnement de bulles de gaz dans l'alliage, le chauffage

de la plaque et donc le remplissage sont réalisés progressivement en faisant glisser l'échantillon de l'extérieur vers le centre de la plaque chauffante. Durant cette opération, l'acétone continue de se vaporiser. Ainsi, deux lames préparées avec le même alliage de base n'auront pas strictement la même composition. L'alliage une fois solidifié, les deux canaux laissés libres pour le remplissage sont obturés à l'aide d'une résine.

Avec notre méthode, il subsiste dans la lame quelques bulles d'argon même en prenant beaucoup de soins lors du remplissage. Comme nous l'avons indiqué dans le paragraphe précédent, seul l'aspect semi-quantitatif des structures de solidification sera abordé dans cette étude. Nous n'avons donc pas jugé utile de recourir à un appareillage identique à celui utilisé par Esaka ¹² pour le chargement des plaques.

3.1.1.2 L'installation de solidification dirigée

L'installation de solidification dirigée d'alliages transparents employée pour cette étude est présentée de manière schématique à la figure 3.3. La lame mince est placée sur le porte-échantillon en plexiglass entre les deux résistances du bloc chaud et les deux parties de la zone froide. Les températures respectives de ces deux zones et la distance (l) qui les sépare déterminent le gradient de température longitudinal. Après stabilisation thermique de l'installation, la lame mince étant immobile pendant cette période initiale, on peut observer que les parties liquide et solide de l'alliage sont séparées par une interface plane. Pour réaliser la solidification dirigée de l'alliage, on déplace la lame vers la zone froide. Selon la vitesse de déplacement et le gradient de température dans la zone pâteuse, la solidification peut se faire avec maintien d'une interface plane, ou avec apparition de cellules ou de dendrites.

La zone chaude de l'installation est constituée de 2 résistances plates de 50 mm x 40 mm placées en vis à vis, de part et d'autre de la plaque mince, et équipées de thermocouples pour la régulation. Elles permettent d'atteindre une température maximale de 110 °C. Deux thermoéléments en regard constituent la zone froide, dont la température peut être modifiée en changeant leur tension d'alimentation. Des températures comprises entre + 5 °C et + 20 °C sont réalisables. L'évacuation de la chaleur extraite des faces chaudes des thermoéléments est assurée par le support. Les valeurs extrêmes de la température de la zone chaude, T_1 , de la température de la zone froide, T_2 , et de la distance entre ces deux zones, l , conduisent à des valeurs du gradient de température comprises entre 500 K.m⁻¹ et 10⁴ K.m⁻¹. La translation est assurée par un moteur Crouzet.

Ce dispositif est collé sur une boîte à circulation d'eau, dont la température n'est pas contrôlée. Son rôle est d'absorber la chaleur transmise à l'ensemble par les résistances et les thermoéléments.

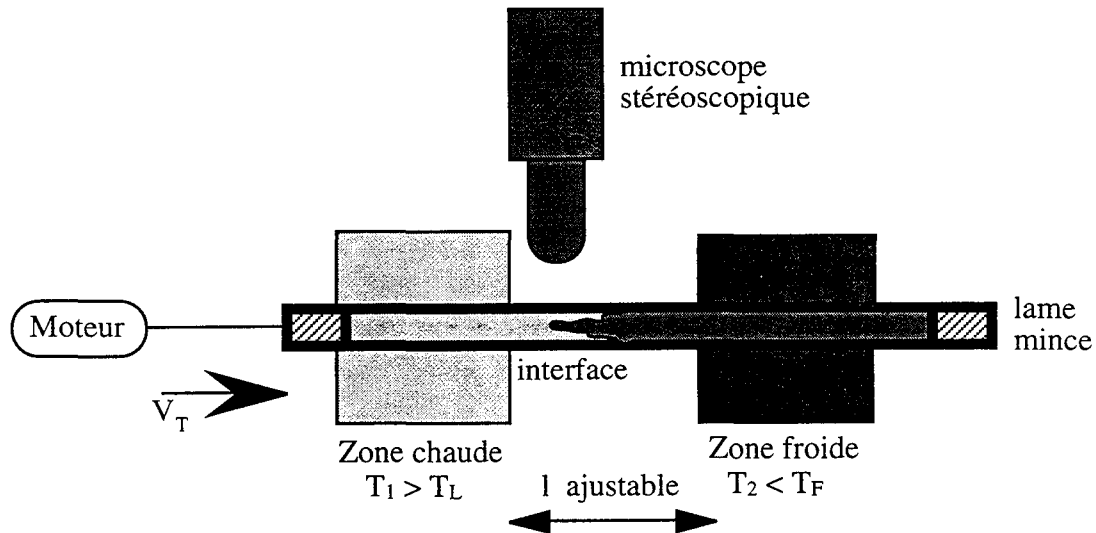


Figure 3.3: Schéma de l'installation de croissance dirigée d'alliages organiques transparents.

L'interface solide-liquide est observée à l'aide d'un microscope stéréoscopique équipé d'un zoom. Deux objectifs qui permettent d'atteindre des grossissements allant de $x6$ à $x66$ et de $x15$ à $x165$, sont disponibles. La profondeur de champ des objectifs, de l'ordre de $75 \cdot 10^{-6}$ m, est plus faible que l'épaisseur des lames minces, ce qui facilitera, le cas échéant, l'observation de plusieurs alignements de dendrites dans l'épaisseur de la lame. Une caméra vidéo est installée sur le microscope. Elle permet de suivre l'expérience sur un écran de contrôle et de l'enregistrer avec un magnétoscope de type HI8. Après expérimentation, l'enregistrement est utilisé pour le choix des images de travail et pour l'analyse des phénomènes rapides.

3.1.1.3 Caractérisation de l'alliage après le remplissage

Comme nous l'avons exposé précédemment, l'acétone est un composé chimique qui se volatilise très facilement. De fait, lors du chargement de la lame, une quantité non négligeable se gazéifie. Il est donc nécessaire, une fois l'échantillon totalement scellé, de caractériser l'alliage succinonitrile-acétone qu'il contient.

Deux méthodes ont été utilisées. La première comparative consiste à placer la cellule sur le porte échantillon de l'installation de solidification dirigée, la température de la zone chaude étant réglée à 70°C et celle de la zone froide à 10°C. Sans imposer aucune translation à la plaque, nous observons la position de l'interface solide-liquide et la distance qui la sépare de la zone chaude. Cette observation est faite lorsque l'équilibre thermique est atteint, c'est-à-dire que l'interface a une position stable depuis une dizaine de minutes. En considérant que l'évolution de la température dans la plaque entre les zones chaude et froide suit une loi linéaire, on en déduit la température de solidus. On caractérise alors la composition de l'alliage en reportant cette température sur le diagramme de phases. Cette méthode est utilisée pour évaluer la quantité d'acétone contenue dans l'alliage, dans le cas de plaques non équipées de thermocouple et dont l'épaisseur est inférieure à $100 \cdot 10^{-6}$ m. La caractérisation de la distance entre la sortie de la zone chaude et la position de l'interface est peu précise, car les différents points nécessaires à la mesure sont situés dans des plans différents séparés par une distance supérieure à la longueur de champ de notre appareillage.

Pour les plaques équipées de thermocouples, nous utilisons une méthode d'analyse thermique pour caractériser l'alliage. Nous plaçons dans la zone chaude la partie de l'échantillon contenant la soudure chaude du thermocouple de façon à effectuer un chauffage plus ou moins rapide en modifiant la température des résistances. La figure 3.4 présente un exemple de l'évolution au cours du temps de la température indiquée par le thermocouple.

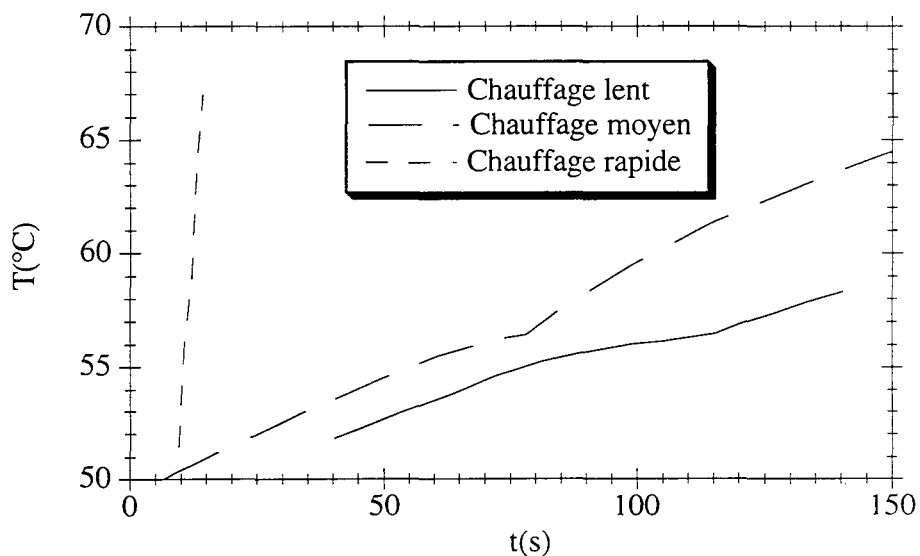


Figure 3.4 : Enregistrements de température réalisés au cours de chauffages plus ou moins rapides d'une plaque d'épaisseur égale à $200 \cdot 10^{-6}$ m.

À partir de ces enregistrements, le calcul de la dérivée permet d'obtenir l'évolution de la vitesse de chauffage de l'échantillon. La figure 3.5 montre les variations de la vitesse de chauffage avec la température. On note une forte diminution de cette quantité au cours de la fusion de l'alliage. Nous avons indiqué, pour chaque type de chauffage, la température pour laquelle la vitesse de chauffage est à son minimum, que l'on associe au liquidus de l'alliage ou plus exactement à la température de fin de fusion.

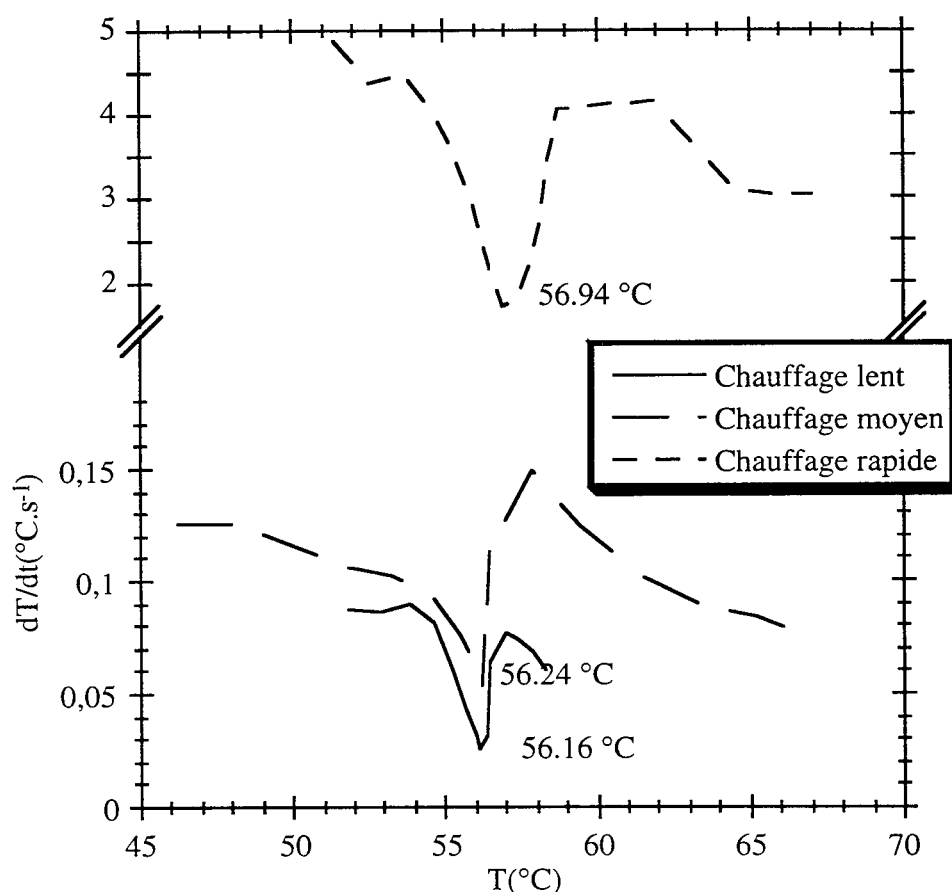


Figure 3.5 : Variation de la vitesse de chauffage de l'échantillon avec la température pour les trois courbes de la figure 3.4.

On peut remarquer que la température pour laquelle la vitesse de chauffage atteint son minimum dépend du type de chauffage utilisé. La température de liquidus finalement retenue est obtenue par extrapolation à vitesse de chauffage nulle de la température de fin de fusion estimée pour les différentes vitesses de chauffage. Cette extrapolation est présentée sur la figure 3.6 pour les données estimées sur la figure 3.5.

La température de liquidus de l'alliage constituant la plaque étudiée est ainsi trouvée égale à $T_L = 56.15 \text{ °C}$. En reportant cette valeur sur le diagramme de phases, on estime que l'alliage est composé de 0.55 % massiques d'acétone.

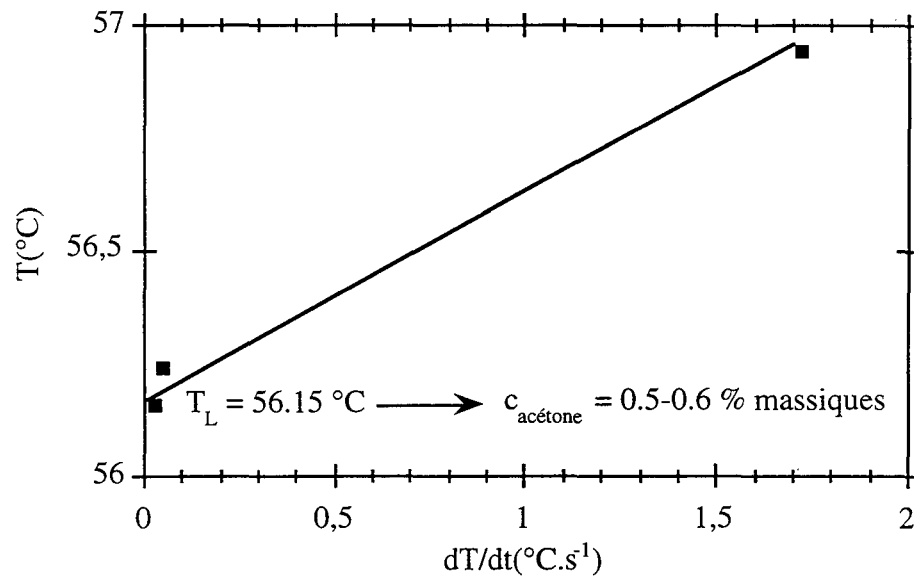


Figure 3.6 : Estimation de la température de liquidus par extrapolation de la température de fin de fusion à vitesse de chauffage nulle

Les sources d'erreurs les plus importantes proviennent de la détermination des températures de fin de fusion et du positionnement de la droite extrapolée sur la figure 3.6. En reportant cette erreur sur le diagramme de phases, on estime à 0.05% massiques l'incertitude sur la teneur en acétone de l'alliage.

Esaka ¹² place son échantillon instrumenté sur une résistance en forme de couronne de sorte que la soudure chaude du thermocouple soit au centre de celle-ci. La plaque est chauffée lentement et il considère la température de liquidus atteinte lorsqu'il subsiste un minuscule cristal autour de la soudure du thermocouple. Notre méthode nous paraît plus simple de mise en œuvre, car d'une part elle ne nécessite pas l'utilisation d'un appareillage spécifique et d'autre part le système d'Esaka impose une détermination fine du centre géométrique de la résistance de façon à éliminer une partie de l'incertitude.

3.1.2 Contrôle de la vitesse de translation des plaques et du gradient de température dans celles-ci.

3.1.2.1 Mesure de la vitesse de tirage

Au cours de la mise en oeuvre de nos expériences, nous devons effectuer de nombreux essais dans des conditions macroscopiques de croissance que nous désirerons identiques ou différentes. En dehors de l'interaction sur le gradient de température qui est possible en modifiant la températures du bloc chaud et/ou celle de la zone froide, ou de la distance l , nous pouvons modifier la vitesse de translation (ou de tirage) de l'échantillon.

La caractérisation de la vitesse de tirage est faite en prélevant deux photographies du film de l'expérience. Le magnétoscope permet l'incrustation à l'image de son horloge interne. Nous repérons sur la première photographie la position (x_1) d'une poussière ou imperfection située sur la plaque de verre. Nous mesurons sur la seconde la position (x_2) de la même tache. Connaissant le temps (t) séparant ces deux clichés, nous obtenons la vitesse de tirage de la plaque :

$$V_T = \frac{(x_2 - x_1)}{t} \quad [3.1]$$

Nous avons construit l'abaque de l'évolution de la vitesse de tirage en fonction de la tension électrique appliquée au moteur, illustrée sur la figure 3.7.

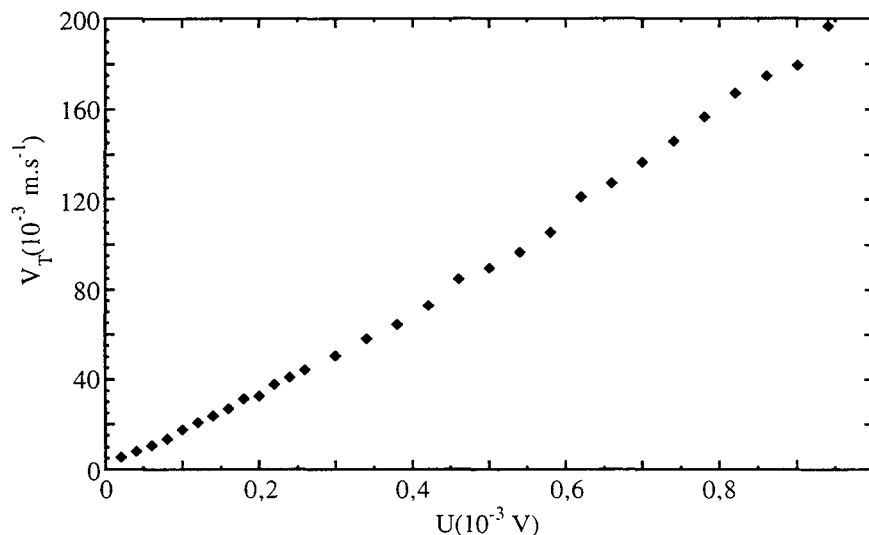


Figure 3.7 : Évolution de la vitesse de tirage en fonction de la tension appliquée au moteur.

La vitesse de déplacement peut être modifiée de manière continue de $20.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ à $300.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Nous avons étudié les images enregistrées au cours des expériences dans le but de vérifier la stabilité de la vitesse de tirage au cours des expériences. Nous avons constaté une variabilité de $\pm 15 \%$ qui provient en majeure partie de la mécanique de notre appareillage et de frottements importants.

3.1.2.2 Mesure du gradient de température

Pour estimer le gradient de température, nous devons connaître le profil de température entre les zones chaude et froide de l'installation. Pour ce faire, nous avons équipé certains de nos échantillons d'une (ou plusieurs) soudures chaudes de thermocouple cuivre-constantan. Le succinonitrile-acétone n'altérant pas le bon fonctionnement du thermocouple, nous utilisons des plaques chargées en alliage. Au cours des expériences faites avec des plaques ainsi équipées, nous avons enregistré le profil de température avec une table traçante. Les enregistrements sont digitalisés ce qui permet de convertir le temps en distance parcourue par le thermocouple et la f.e.m. en température. Le tracé $T(x)$ obtenu est illustré sur la figure 3.8.

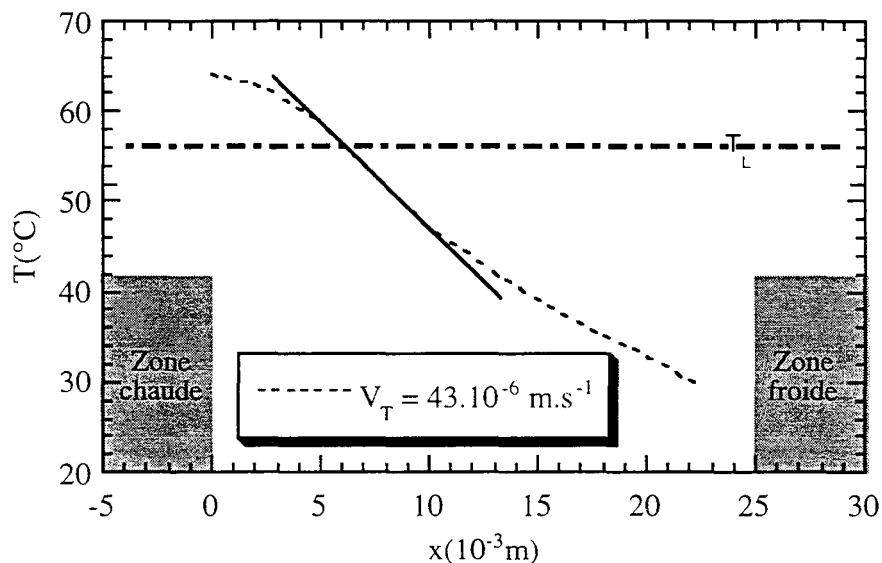


Figure 3.8 : Profil de température entre les zones chaude et froide au cours d'une expérience

Nous avons porté sur la figure 3.8 la position des zones chaude et froide. On peut observer que le gradient de température est différent du gradient moyen $(T_1 - T_2)/l$. Cependant sur

une portion importante de l'échantillon et dans la zone où a lieu la solidification, le profil de température est linéaire pour les faibles vitesses. Le gradient de température est donné par :

$$G = \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{T_L} \quad [3.2]$$

mesuré sur la figure 3.8. Après avoir quantifié l'incertitude sur le tracé de la tangente à la courbe lors de la transition, nous évaluons l'erreur commise à moins de 5 % sur cette caractérisation.

3.1.3 Étude expérimentale des échanges thermiques

Pour mieux comprendre les échanges thermiques durant la solidification dirigée, la plaque mince, d'épaisseur $200 \cdot 10^{-6}$ m, dont l'alliage a été précédemment caractérisé, est équipée de 2 thermocouples distants de $40 \cdot 10^{-3}$ m. La température de liquidus est égale à 56 °C, ce qui correspond à une teneur en acétone de 0.5 % massiques. La comparaison des enregistrements des deux thermocouples permet d'étudier l'évolution du profil de température dans les lames au cours du tirage, pour différentes conditions de croissance.

Nous avons fixé les conditions expérimentales suivantes :

- la distance entre les zones chaude et froide $l = 20 \cdot 10^{-3}$ m
- la température de la zone chaude $T_1 = 64$ °C
- la température de la zone froide $T_2 = 15$ °C

À l'arrêt, une fois l'équilibre thermique atteint, le gradient de température moyen dans la plaque est donc de $2450 \text{ K} \cdot \text{m}^{-1}$.

Les expériences ont été réalisées pour des vitesses de 22, 90 et $300 \cdot 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. La caméra permet l'enregistrement sur support vidéo du développement des structures de solidification. L'étude de ces images donne les vitesses de tirage et les vitesses de croissance des dendrites. Les enregistrements de température sont digitalisés avec le logiciel Digigraph développé au Laboratoire de Science et Génie des Matériaux Métalliques par Pierre Archambault. Connaissant la vitesse de défilement du papier de l'enregistreur et la vitesse de tirage, les enregistrements bruts

de température obtenus au cours des expériences sont transformés de manière à obtenir l'évolution de la température en fonction de l'abscisse x entre les zones chaude et froide.

La figure 3.9 montre les résultats obtenus pour les vitesses de tirage suivantes : $V_T = 22 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, $90 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et $300 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

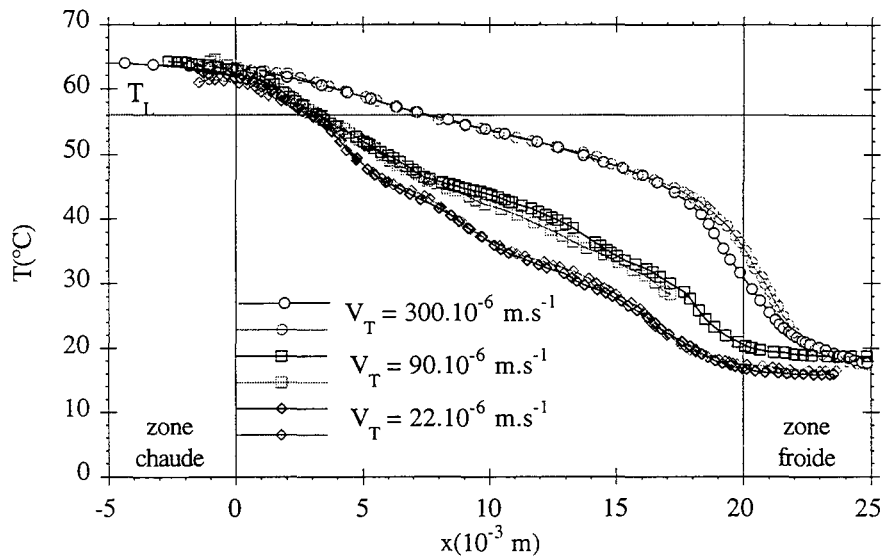


Figure 3.9 : Variation de la température en deux points d'une lame de $200 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ d'épaisseur au cours des expériences à $V_T = 22 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, $90 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et $300 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Pour chaque vitesse de tirage, on note que les températures prélevées en deux points de la plaque sont identiques bien qu'à l'origine le premier thermocouple se trouvait dans la zone chaude et le second avant celle-ci. Nous sommes donc assurés que la longueur de la zone chaude est suffisante pour permettre le chauffage homogène d'une plaque en translation. On observe par ailleurs une variation importante des pentes de chaque courbe, donc du gradient de température dans la zone pâteuse, au voisinage de la température de liquidus de l'alliage. Nous verrons dans le paragraphe 5.2 l'influence de la vitesse de croissance sur le gradient de température dans la zone pâteuse.

3.1.4 Méthodologie expérimentale

3.1.4.1 Choix du grain

Lorsque l'on commence la translation d'un échantillon dans des conditions conduisant à une structure dendritique, après un temps d'adaptation dû à la mise en mouvement des isothermes, au moins deux à trois grains d'orientations différentes sont présents dans la largeur de la plaque. Nous choisissons, parmi eux, un grain contenant au moins une dizaine de dendrites et dont la direction des troncs primaires est parallèle à la vitesse de tirage et au gradient de température.

3.1.4.2 Préparation des expériences

Lorsqu'un échantillon est placé sur le porte-échantillon, la température des résistances étant supérieure à la température de fusion de l'alliage, la partie de l'échantillon qui se trouve dans la zone chaude fond et l'on peut observer l'interface solide-liquide, initialement proche de la sortie de la zone chaude, se déplacer lentement vers la zone froide. Un état stationnaire d'échanges thermiques est atteint lorsque les isothermes s'immobilisent et que le mouvement de l'interface stoppe. À ce moment-là, nous pouvons débiter une expérience et mettre en action le moteur. Il s'ensuit une période de transition, dont la durée est proportionnelle à la vitesse de tirage, nécessaire à la mise en mouvement des isothermes et au début de solidification, elle sera exposée au chapitre 5. Nous avons observé que lors de l'initialisation de la solidification, ou pour des vitesses de tirage élevées, la vitesse de croissance est inférieure à la vitesse de tirage.

Pour calculer la vitesse de croissance, nous mesurons le déplacement relatif (Δx) du front entre deux clichés. Si ce déplacement est nul, alors, la vitesse de croissance est égale à la vitesse de tirage. Sinon, on calcule la vitesse de déplacement du front de solidification dans le référentiel du microscope ($\Delta x / t$) d'où la vitesse de croissance :

$$V_c = \frac{(x_2 - x_1)}{t} \pm \frac{\Delta x}{t} \quad [3.3]$$

Quand nous observons que la vitesse de croissance des dendrites est égale à la vitesse de tirage et que l'espacement dendritique primaire paraît être stable, nous admettons que le système est redevenu stationnaire. Le temps nécessaire à son l'établissement dépend de la vitesse de tirage. Il sera égal à près de 300 secondes pour le cas d'une vitesse de tirage de $30 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et

de 30 s pour $200.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Au contraire, la période d'adaptation, en début de solidification, ou dans le cas d'un changement de la vitesse de tirage en cours d'expérience, sera définie comme état dynamique.

3.1.4.3 Étude d'une expérience

Chaque expérience est filmée et les images sont enregistrées avec un magnétoscope. Le grandissement du microscope stéréoscopique est choisi pour qu'une dizaine d'axes soit présente dans le champ d'observation. Nous pouvons visionner de nouveau chaque séquence et en extraire des photographies, uniformément réparties dans le temps de l'expérience, sur lesquelles sont indiquées le temps de l'horloge interne du magnétoscope. Sur chaque photographie, nous mesurons tous les espacements entre dendrites premières voisines. Ces valeurs sont appelées espacements dendritiques primaires et nous en déduisons l'espacement primaire moyen λ_{moy} à l'instant t , et l'écart type associé σ_{moy} . Nous pouvons ainsi tracer l'évolution de l'espacement dendritique primaire moyen et de son écart type au cours d'une expérience. La moyenne de l'ensemble des λ_{moy} mesurés au cours d'une expérience sera notée λ_{Moy} et l'écart type correspondant σ_{M} .

3.2 Solidification dirigée monocristalline de plaques minces en AM1

3.2.1 Présentation

L'objectif principal de ce travail étant de mettre en évidence l'influence de l'épaisseur de la paroi sur la structure solidifiée, des plaques en AM1 ont été coulées selon le procédé Bridgman ^{6,7} à la fonderie expérimentale de la SNECMA de Gennevilliers.

3.2.1.1 Fabrication et préparation des moules

Le procédé de fabrication des moules de coulée utilisé est dit "à cire perdue". Les plaques ont les dimensions suivantes : $(130.10^{-3} \times 30.10^{-3} \text{ m}^2)$ de 1, 2 et 3.10^{-3} m d'épaisseur. Les épaisseurs ont été choisies de façon à obtenir un faible nombre d'alignements de dendrites dans une section. Pour produire ces plaques, il a été nécessaire de construire trois moules métalliques (un pour chaque type d'échantillon) destinés à la réalisation des modèles en cire. Chaque plaque

est équipée d'un sélecteur de grain disposé dans le même plan. Ces modèles sont alors assemblés pour obtenir une grappe (voir la figure 3.10) qui est ensuite plongée dans des bains d'alumine de granulométries croissantes. La grappe est ainsi enrobée d'une carapace de matériaux réfractaires de 5 mm d'épaisseur. Le moule est enfin vidé de la cire par chauffage.

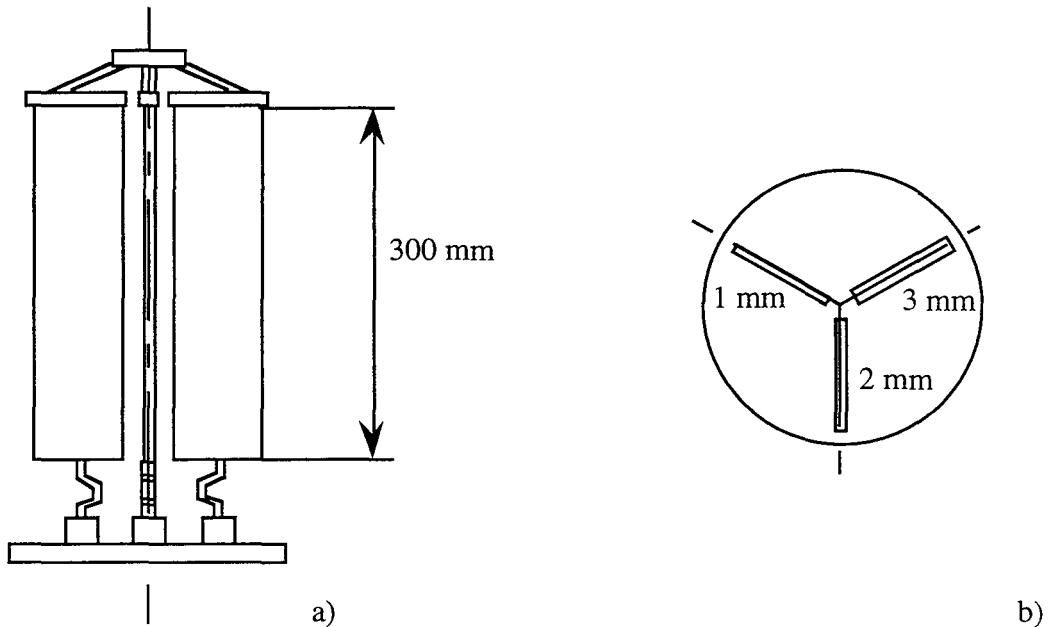


Figure 3.10 : Schéma de la vue de face (a), et de dessus (b) d'une grappe constituée de trois plaques d'épaisseur 1, 2 et $3 \cdot 10^{-3}$ m disposées à 120° .

Quatre des six moules qui ont été fabriqués sont équipés de gaines d'alumine de $1 \cdot 10^{-3}$ m de diamètre extérieur et $5 \cdot 10^{-4}$ m de diamètre intérieur qui ménagent les accès nécessaires pour l'instrumentation. 26 emplacements de thermocouples ont été prévus dans chacun des moules instrumentés. Les positions des prises de température sont indiquées sur la figure 3.11. Les chiffres en italique placés à côté des points symbolisant les thermocouples sont les indices utilisés dans la suite de ce travail pour les référencer. Les thermocouples sont réalisés avec des fils platine-30 % rhodium et platine-6 % rhodium de $3 \cdot 10^{-4}$ m de diamètre. Un repère sur le fil permet de placer la soudure au centre de la plaque. Une fois le thermocouple correctement positionné, on l'enduit avec une solution de chlorure d'alumine qui est ensuite séchée avec un pistolet à air chaud. Le thermocouple est enfin enrobé et collé au moule. Les fils sont amenés à la base du moule. Le moule instrumenté est alors prêt à être placé dans le four de coulée.

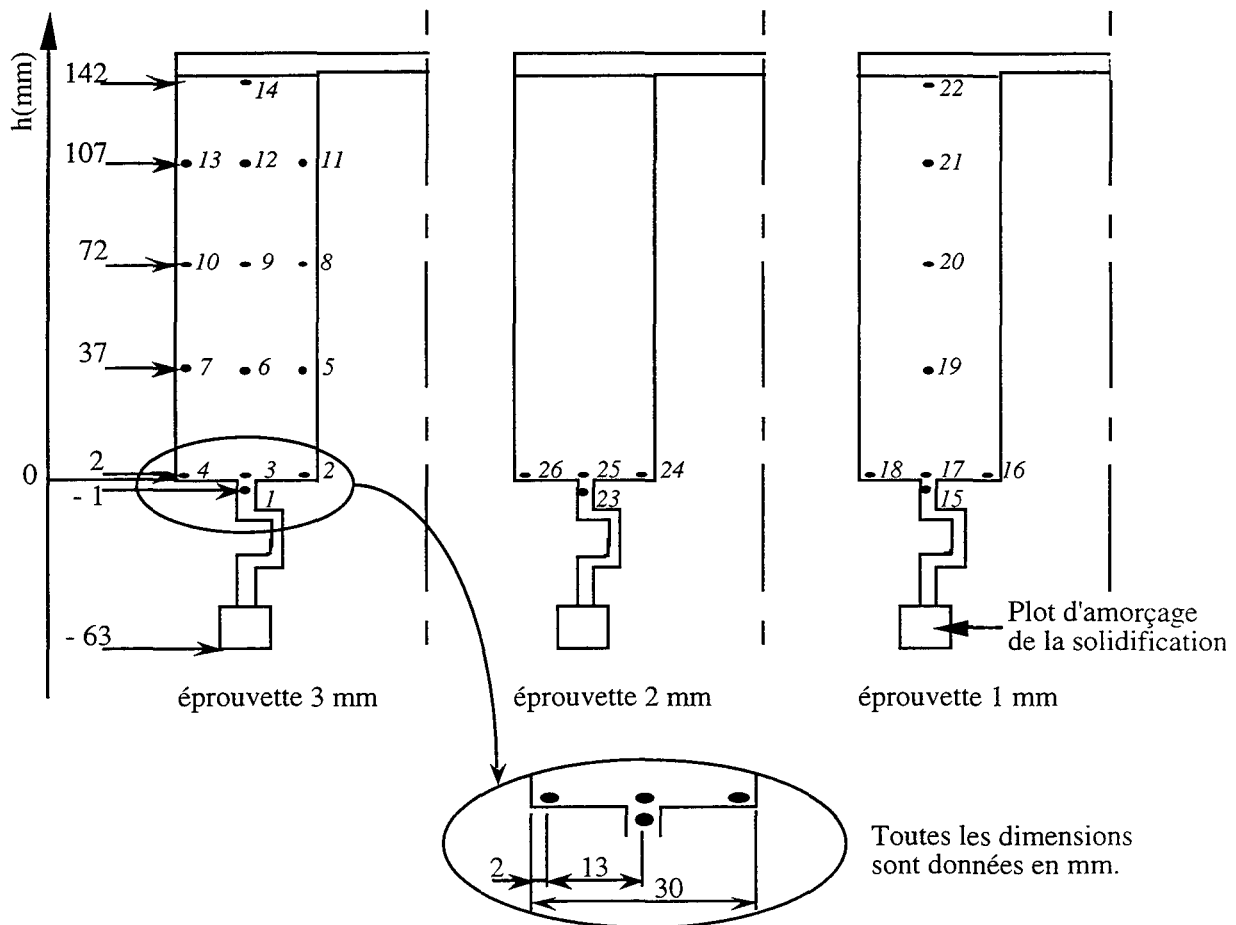


Figure 3.11 : Emplacement des thermocouples dans les plaques de 1, 2 et $3 \cdot 10^{-3}$ m d'épaisseur.

3.2.1.2 Matériau brut de solidification

Siredey a donné, dans sa thèse², la composition de l'AM1 ainsi que quelques paramètres du diagramme de phase. Pour s'affranchir d'une légère variation chimique de l'alliage d'une coulée à l'autre, toutes les charges nécessaires aux expériences reportées ici ont été prélevées dans un même lingot d'AM1.

Nous avons prélevé un petit cylindre d'AM1, d'une masse de $1 \cdot 10^{-3}$ g, pour réaliser des expériences d'analyse thermique différentielle (ATD) consistant en un chauffage sous argon de 1250 °C à 1450 °C.

Trois expériences ont été réalisées, respectivement à la vitesse de chauffage de 2, 5 et 10 °C/min. La figure 3.12 montre l'évolution du flux de chaleur extrait de l'alliage avec la

température dans le domaine de la transition de phases solide-liquide. L'extremum du signal est associé au liquidus de l'alliage. On remarque que l'amplitude du signal ATD et la position de l'extremum dépendent de la vitesse de chauffage.

* Détermination de la température de liquidus :

Nous avons tracé les tangentes aux courbes de part et d'autre du minimum. L'intersection de ces droites donne la température de liquidus de l'alliage pour chaque vitesse de chauffage. Les résultats de ces mesures sont reportés sur la figure 3.13.

* Détermination de la température de solidus :

La température de solidus est estimée par la température à laquelle le signal ATD s'éloigne de la ligne de base, comme indiqué sur la figure 3.12.

Sur la figure 3.13, nous avons fait passer une droite par chacun des deux groupes de trois points. Les températures de solidus et de liquidus sont obtenues par extrapolation de ces droites à vitesse de refroidissement nulle.

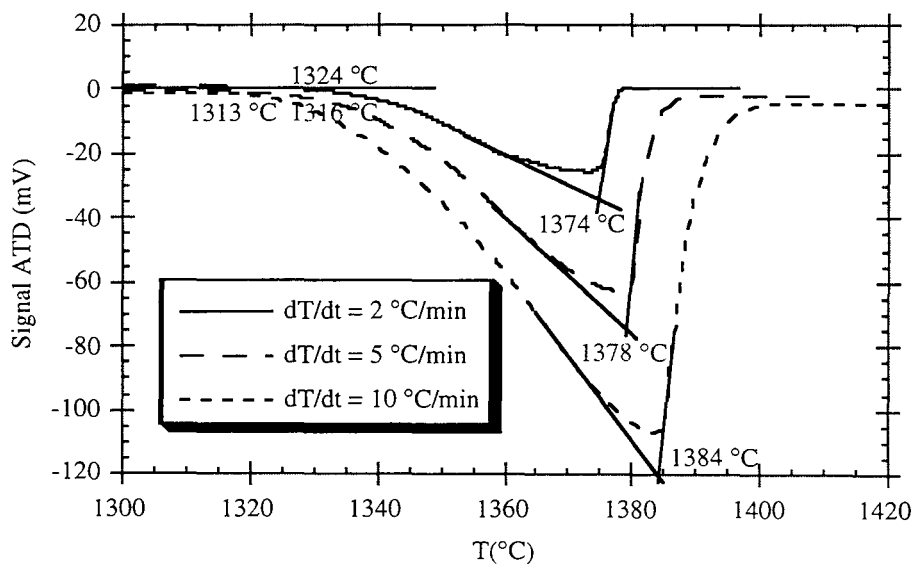


Figure 3.12 : Enregistrements d'ATD obtenus sur un échantillon d'AM1 pour 3 vitesses de chauffage imposées.

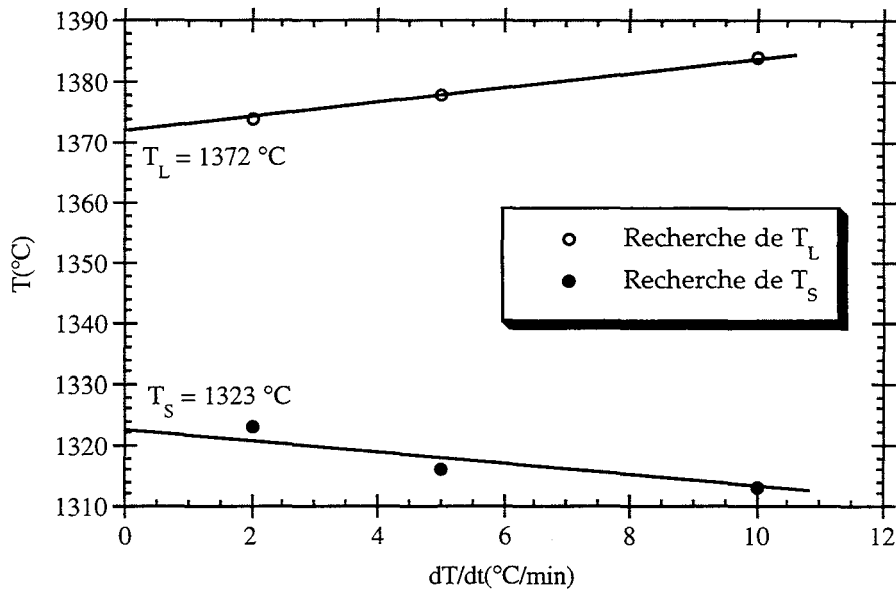


Figure 3.13 : Extrapolation des températures de solidus et de liquidus de l'AM1 utilisé dans nos expériences.

Pour l'alliage d'AM1 que nous utilisons dans ce travail, les températures de liquidus et de solidus obtenues par extrapolation à vitesse de refroidissement nulle sont :

$$T_L = 1372 \text{ °C et } T_S = 1323 \text{ °C.}$$

3.2.1.3 Coulées des moules

Les moules ont été coulés dans le four monoaube de la fonderie expérimentale de la SNECMA de Gennevilliers. Le procédé de coulée utilisé est de type Bridgman. Le four est constitué de deux parties (figure 3.14) :

- * une partie chaude en haut du four, chauffée grâce à deux résistors cylindriques en graphite dont les consignes de pilotage sont ajustées séparément. Un gradient de température dans le moule peut être imposé en réglant ces deux éléments à des températures différentes.
- * une partie froide, en bas du four, constituée d'un refroidisseur composé d'un serpentin en cuivre refroidi par circulation d'eau.

Les deux parties sont séparées par un écran thermique qui limite les échanges entre elles et dont le rôle est de maintenir un gradient de température longitudinal (suivant l'axe vertical du four) le plus élevé possible. La forme de cet écran est un des paramètres qui détermine le gradient de température au niveau de la zone pâteuse. La zone chaude fournit de la chaleur à l'ensemble moule-métal par rayonnement des résistors, la zone froide extrait cette chaleur par rayonnement du moule vers le refroidisseur et par conduction du solide vers la sole.

Le moule est placé, comme indiqué sur la figure 3.14 , sur la sole en cuivre refroidie par circulation d'eau. Les thermocouples sont branchés sur les broches de connexion qui sont isolées à l'aide d'un matériau réfractaire. Les enregistrements de température sont effectués avec une centrale d'acquisition Hewlett Packard. La période temporelle de mesure est adaptable en fonction de la durée de l'expérience et de la rapidité du phénomène étudié. Dans notre cas, nous avons employé deux vitesses d'acquisition différentes selon la vitesse de tirage. La charge d'AM1 nécessaire à la coulée des trois plaques est placée dans un godet à ouverture automatique ⁹⁸ situé en haut du four. L'embouchure de celui-ci est obturée par une pastille de nickel indiquée sur la figure 3.14, dont l'épaisseur a été choisie pour qu'elle soit entièrement fondue lorsque la température de l'alliage est portée à 1500 °C, d'où l'appellation d'ouverture automatique. L'enceinte du four est fermée pour être mise sous vide secondaire. Pour aider au dégazage de la carapace du moule et des éléments réfractaires, on chauffe le moule à 600 °C. Le vide voulu est atteint en 2 heures environ.

Les consignes de température définies pour la coulée sont affichées sur les régulateurs des deux inducteurs de chauffage. Le moule ayant atteint la température d'expérience, le chauffage de la charge d'alliage est lancé. Il faut environ deux minutes pour que la pastille de nickel, qui obture la sortie du godet de coulée, fonde et que l'AM1 s'écoule dans le moule. La solidification débute lorsque l'alliage entre en contact avec la sole refroidie. Après un temps d'attente de deux minutes, nécessaire à l'homogénéisation des températures du bain liquide et du moule, l'ensemble moule-métal-sole est tiré vers le bas, de la zone chaude vers la zone froide du four. La vitesse de tirage est imposée par l'opérateur sur un pupitre de commande, elle peut être modifiée en cours d'expérience. Pour les coulées que nous avons effectuées, elle est de 4 mm/min au début du tirage, durant la solidification du sélecteur, puis de 2 ou 10 mm/min.

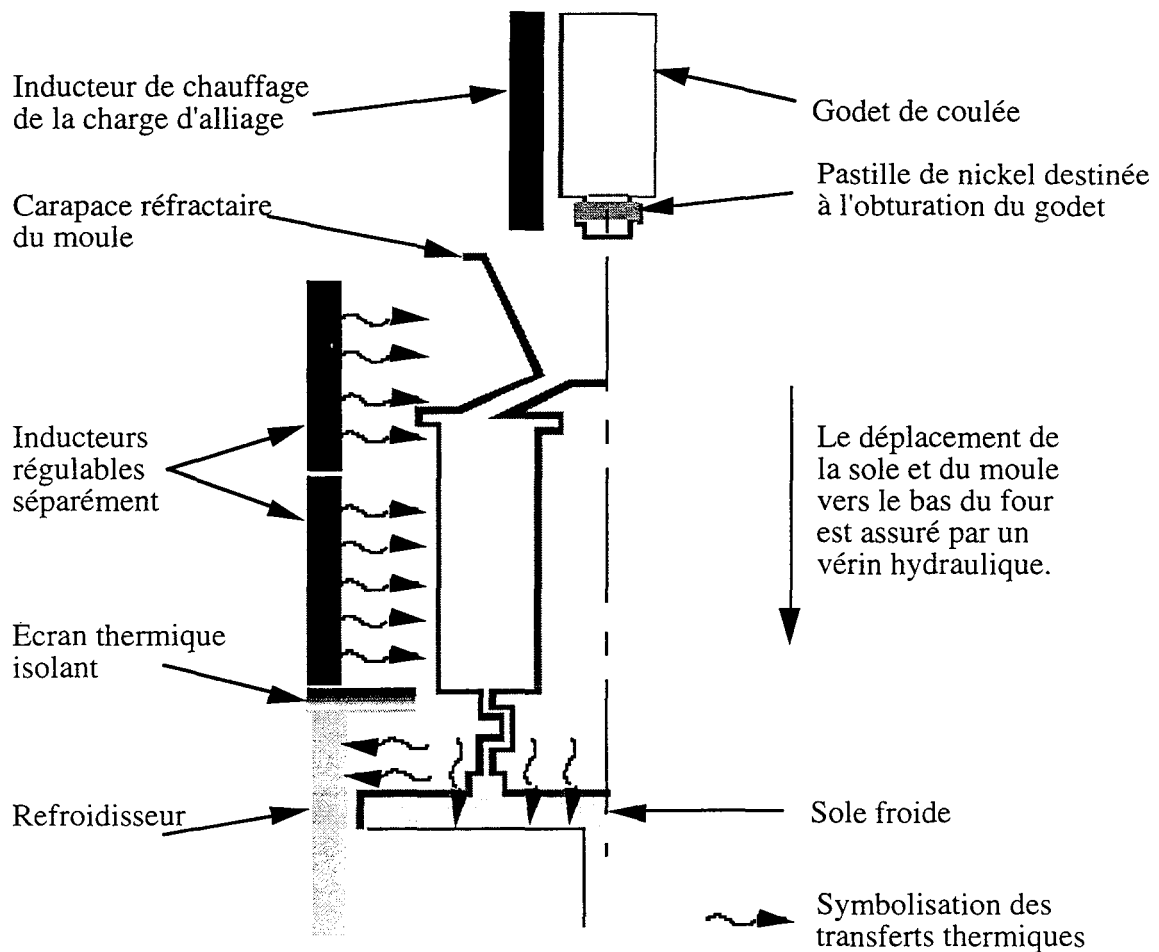


Figure 3.14 : Schéma d'un moule placé dans un four de solidification dirigée.

3.2.1.4 Conditions nominales de coulées

Les conditions nominales de coulées de cette étude ont été choisies de façon à cerner les conditions utilisées en milieu industriel. Elles sont présentées dans le tableau 3.2. Les notations *i* ou *o* indiquent que la coulée a été, respectivement, instrumentée ou non. Dans la suite de ce travail, nous utiliserons les notations suivantes pour définir la coulée : 1500/2/*i*, pour référencer l'expérience coulée à une température du moule et du bain de 1500 °C, tirée à une vitesse de 2 mm/min après le passage du sélecteur, et instrumentée. Les termes *i1* et *i2* différencient deux expériences instrumentées effectuées avec des conditions nominales identiques.

	$V_T = 2 \text{ mm/min}$	$V_T = 10 \text{ mm/min}$
$T_{\text{Four}} = 1500 \text{ °C}$	i	i, o
$T_{\text{Four}} = 1550 \text{ °C}$	i1, i2, 0	

Tableau 3.2 : Conditions nominales de coulées des pièces en AM1 utilisées au cours de ce travail.

Quelques problèmes sont survenus lors de des expériences suivantes :

- * En raison du débordement du métal lors de la coulée, les plaques de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/10/i et de 2 mm de l'expérience 1550/2/o n'ont pas été remplies.
- * Du fait d'une surchauffe des câbles de l'alimentation électrique du four au cours de l'expérience 1550/2/i1, le tirage a été achevé four éteint. Les plaques obtenues présentent une structure de solidification dirigée mono-cristalline dans leur partie basse, et polycristalline dans leur partie haute.
- * Les enregistrements de température effectués lors de l'expérience 1550/2/i2 n'ont pas pu être exploités.

3.2.2 Méthode de détermination de la vitesse de croissance et du gradient de température dans la zone pâteuse

3.2.2.1 Cas général

La discrétisation assez large de l'éprouvette ne permet pas une détermination fine des vitesses de croissance locales, en chaque point où l'on a placé un thermocouple. C'est une estimation de la vitesse moyenne de déplacement du front de solidification et du gradient de température dans la zone pâteuse aux différents points de mesure de température dans les plaques que nous faisons. Pour cela, nous étudions les enregistrements de température effectués au cours des expériences, et plus particulièrement l'intervalle compris entre les températures de liquidus et de solidus de l'alliage définies précédemment. Sur la figure 3.15, nous montrons les temps de passage des isothermes liquidus et solidus et la vitesse moyenne de refroidissement entre ces deux instants. Ces mesures et calculs servent à la détermination de la vitesse moyenne de

croissance en un point de mesure de température. Les courbes présentées, par la figure 3.15, sont issues des enregistrements faits avec les thermocouples 3, 6 et 9 de l'expérience 1500/2/i.

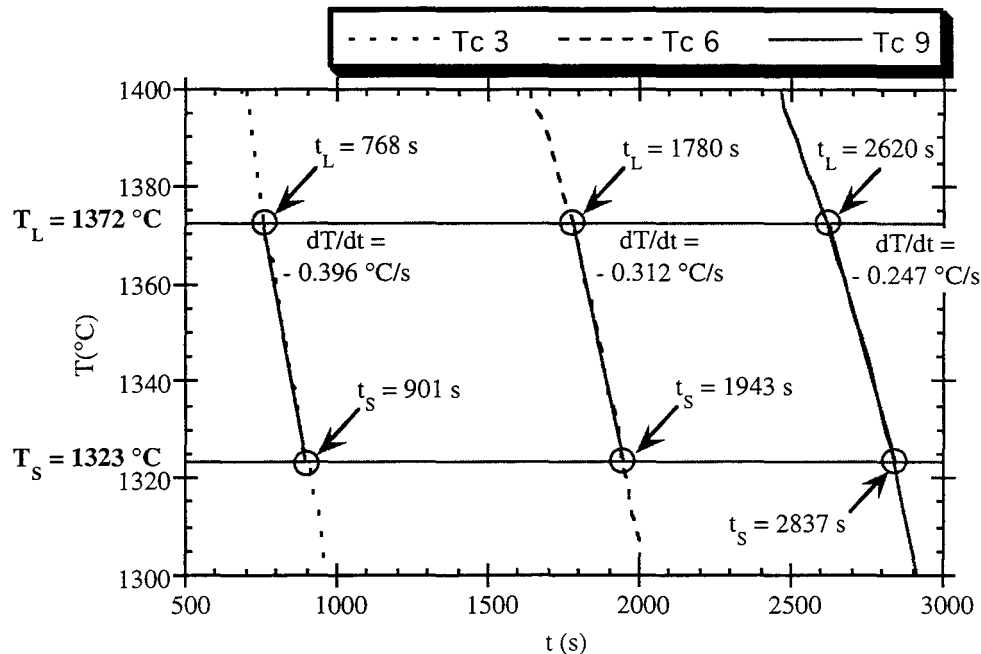


Figure 3.15 : Présentation des calculs effectués sur les courbes de refroidissement pour déterminer les vitesses de croissance et les gradients de température dans la zone pâteuse.

À titre d'exemple, nous estimons la vitesse de croissance au niveau du thermocouple 6. Sur les enregistrements de température obtenus avec les thermocouples 3 et 6, nous déterminons les temps de début de solidification au niveau des thermocouples 3 et 6, c'est-à-dire les abscisses des points dont les ordonnées sont 1372 °C. On obtient la vitesse moyenne de la croissance que l'on considère égale à la vitesse de déplacement de l'isotherme liquidus, entre les points 3 et 6, notée $V_c^{3,6}$:

$$V_c^{3,6} = \frac{(h_6 - h_3)}{(t_{L6} - t_{L3})} \text{ en m.s}^{-1}. \quad [3.4]$$

où t_{L_i} est le temps de début de solidification au point i , et h_i la hauteur du point i dans la plaque. Dans la suite de ce travail, nous attribuerons cette vitesse de croissance moyenne entre les points 3 et 6, à mi-hauteur entre 3 et 6.

Le calcul de la pente de la courbe de refroidissement de l'alliage entre les températures de liquidus et de solidus, respectivement 1372 °C et 1323 °C, enregistrée avec le thermocouple 6, permet d'obtenir la vitesse de refroidissement dans la zone pâteuse

$$V_{r6} = \frac{dT_6}{dt} \text{ en K.s}^{-1} \quad [3.5]$$

On peut alors estimer le gradient de température moyen, entre les points 3 et 6, $G_{3,6}$ dans la zone pâteuse :

$$G_{3,6} = \frac{V_{r6}}{V_c^{3,6}} \text{ en K.m}^{-1} \quad [3.6]$$

De même que pour le cas de la vitesse de croissance, nous considérons que ce gradient de température moyen $G_{3,6}$ est le gradient de température dans la zone pâteuse entre les points 3 et 6.

3.2.2.2 Cas particulier des points situés juste au dessus de l'extension

Les expériences réalisées avec la maquette transparente ont permis de montrer le chemin suivi par le front de solidification dans la zone d'extension, voir paragraphe 5.1. La figure 3.16 montre le parcours suivi par le front de solidification lors de l'extension.

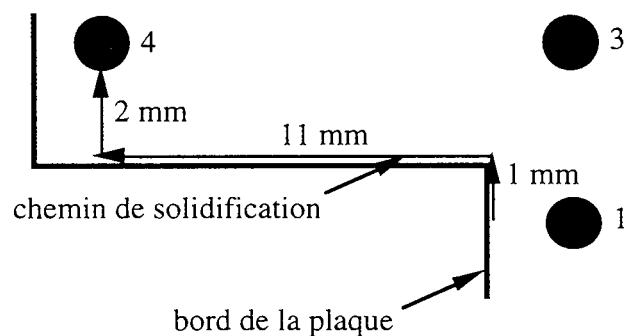


Figure 3.16 : Chemin de solidification lors de l'extension du grain en sortie de sélecteur.

Pour estimer la vitesse moyenne de croissance au point 4, nous avons comme précédemment repéré les temps de début de solidification en 1 et 4 et nous avons divisé la différence de ces deux temps par la distance parcourue par le front, soit $15 \cdot 10^{-3}$ m.

3.2.3 Métallographie

Un paramètre largement employé dans la littérature pour décrire la microstructure est la densité d'axes dendritiques primaires. Pour faciliter l'analogie avec les résultats obtenus sur alliages transparents, on peut comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, en déduire l'espacement dendritique primaire moyen. Pour réaliser cette étude, nous avons prélevé des sections transversales et longitudinales à la direction de tirage dans les plaques précédemment décrites et dans leur sélecteur, à différentes hauteurs.

3.2.3.1 Attaques métallographiques et préparation des échantillons

Après avoir été enrobées de cire, les sections sont montées sur le porte-échantillons d'une polisseuse automatique Abrapol-2 commercialisée par la Société STRUERS. Nous avons fait des essais avec la gamme de polissage conseillée par le fabricant pour des superalliages à base de nickel. Ayant observé la subsistance d'un nombre important de rayures en fin de polissage, nous avons modifié ces paramètres. Nous appliquons une pression de 10 N pendant 20 min (150 N pendant 3 min sont préconisés par le fabricant). Ces réglages pression-temps, qui donnent des résultats convenables, sont conservés pour tous les papiers de polissage utilisés : papiers Si-C de taille de grains 320, 500, 800, 1200. Un feutre Pan-W avec une pâte diamant de granulométrie 3 μm est utilisé pour le polissage de finition.

Pour révéler la structure solidifiée, les sections sont attaquées avec le réactif de "FRY" : 80 ml HCl, 10 g CuCl_2 , 60 ml H_2O , 30 ml $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$. Les phases γ et γ' sont attaquées différemment par ce réactif qui fait apparaître la structure dendritique et met en évidence d'éventuelles désorientations cristallographiques dans une section. Ces échantillons sont observés et photographiés avec un microscope optique.

3.2.3.2 Mesure de la densité d'axes dendritiques primaires

Les mesures de densité d'axes dendritiques primaires sont effectuées par comptage systématique de toutes les dendrites visibles sur les micrographies étudiées, y compris celles incomplètes touchant l'un des cotés de la surface.

L'erreur commise au cours de la mesure provient de deux sources :

- le nombre important de bras dendritiques primaires à compter. On peut estimer que sur le millier d'axes recensés sur une section d'une plaque de 3 mm d'épaisseur, il y en a au plus 5 qui sont oubliés. Cette estimation a été obtenue en renouvelant plusieurs fois le comptage sur une même section.
- la prise en compte des dendrites incomplètes qui se trouvent en contact avec les bords de la section, comme des axes dendritiques primaires à part entière.

Nous avons observé la position de ces axes tronqués en notant leur situation et leur répartition sur le périmètre des sections. La figure 3.17 présente, à titre d'exemple, une section prélevée dans une plaque de 3 mm d'épaisseur.



Figure 3.17 : Section d'une plaque de 3 mm d'épaisseur. Les dendrites incomplètes en contact avec un des bords de la plaque sont complétées en gris à l'extérieur de la surface par effet miroir.

Sur cette section dont la photographie a été retouchée pour que les dendrites réellement présentes se distinguent en noir sur fond blanc, les axes incomplets situés aux bords de la section ont été complétés en gris par leur image obtenue avec un effet miroir. Nous avons utilisé le logiciel Adobe Photoshop pour effectuer cette opération. Ainsi, nous avons pu définir la surface qu'il faudrait ajouter à la section pour que les axes dendritiques primaires soient complets

(parties hachurées sur la figure 3.17). On peut remarquer sur cet exemple que des deux bords de la section, il y en a un qui semble privilégié et sur lequel on note un nombre plus important de dendrites incomplètes. Il serait possible de placer les trois dendrites grisées situées en bas de la figure dans les trous de la surface définie dans la partie supérieure. De fait dans l'estimation de l'erreur, sur le comptage, due à la prise en compte de tous les axes dendritiques primaires complets ou non, nous estimerons l'erreur faite sur la mesure de la densité d'axes dendritiques primaires en considérant que le comptage a été fait sur la surface définie par la section, puis sur cette surface à laquelle nous aurons ajouté une demi-couronne telle que définie sur la figure 3.17. Les mesures représentent ainsi des valeurs respectivement par excès et par défaut de la densité d'axes primaires.

Chapitre 4

PRINCIPALES ÉTAPES DE LA FABRICATION DE MONOCRISTAUX EN PLAQUES MINCES

Dans ce chapitre, nous rappelons les différentes étapes de croissance et de sélection de grains permettant la réalisation de monocristaux en plaques minces.

Dans un premier temps, nous décrivons la méthode utilisée dans l'industrie pour obtenir un monograin dendritique et le phénomène de compétition entre grains qui y est mis à profit.

Puis, nous montrons de quelle manière un réseau occupe tout l'espace qui est mis à sa disposition au cours de sa solidification. Cette étape importante est rencontrée en sortie de sélecteur ou dans les plates-formes des aubes. On observe souvent l'apparition de grains parasites dans ces zones.

4.1 Observations d'une section verticale d'un sélecteur

Nous avons réalisé une section verticale du sélecteur de la plaque 1500/2/i/1 mm suivant son axe vertical. Pour mettre en forme la figure 4.1, nous avons fait quatre photographies de cette coupe et nous les avons montées en utilisant un logiciel de traitement de l'image, Adobe Photoshop, et de dessin, Macdraw Pro.

La figure 4.1 montre les différentes étapes de compétition de grains lors de la solidification d'un sélecteur. Le plot d'amorçage est présenté et discuté avec la figure 4.2. On remarque un élargissement des grains de leur base vers leur sommet qui se poursuit dans le bras (A). Ce phénomène de compétition entre grains est discuté dans le paragraphe 2.1.3. Au cours du premier changement de direction (B), on observe la subsistance d'un seul grain et l'apparition de bandes claires périodiques et inclinées qui mettent en évidence un effet de moiré. Il est dû au fait que la coupe n'est pas exactement parallèle aux axes primaires des dendrites. Rappaz et Blank ²⁴ ont simulé cet effet en considérant que les dendrites sont agencées selon un réseau orthorhombique centré. Siredey ² a réalisé un programme informatique destiné à simuler les moirés qui permet de montrer que chaque bande claire de l'effet de moiré correspond à une rangée de dendrites alignées suivant un axe [010] ou [100]. L'extension verticale (C) conserve cet effet de moiré oblique. Après le troisième changement de direction, dans le bras (D), les bandes claires sont verticales. Le sélecteur de grain paraît avoir bien fonctionné dans ce cas.

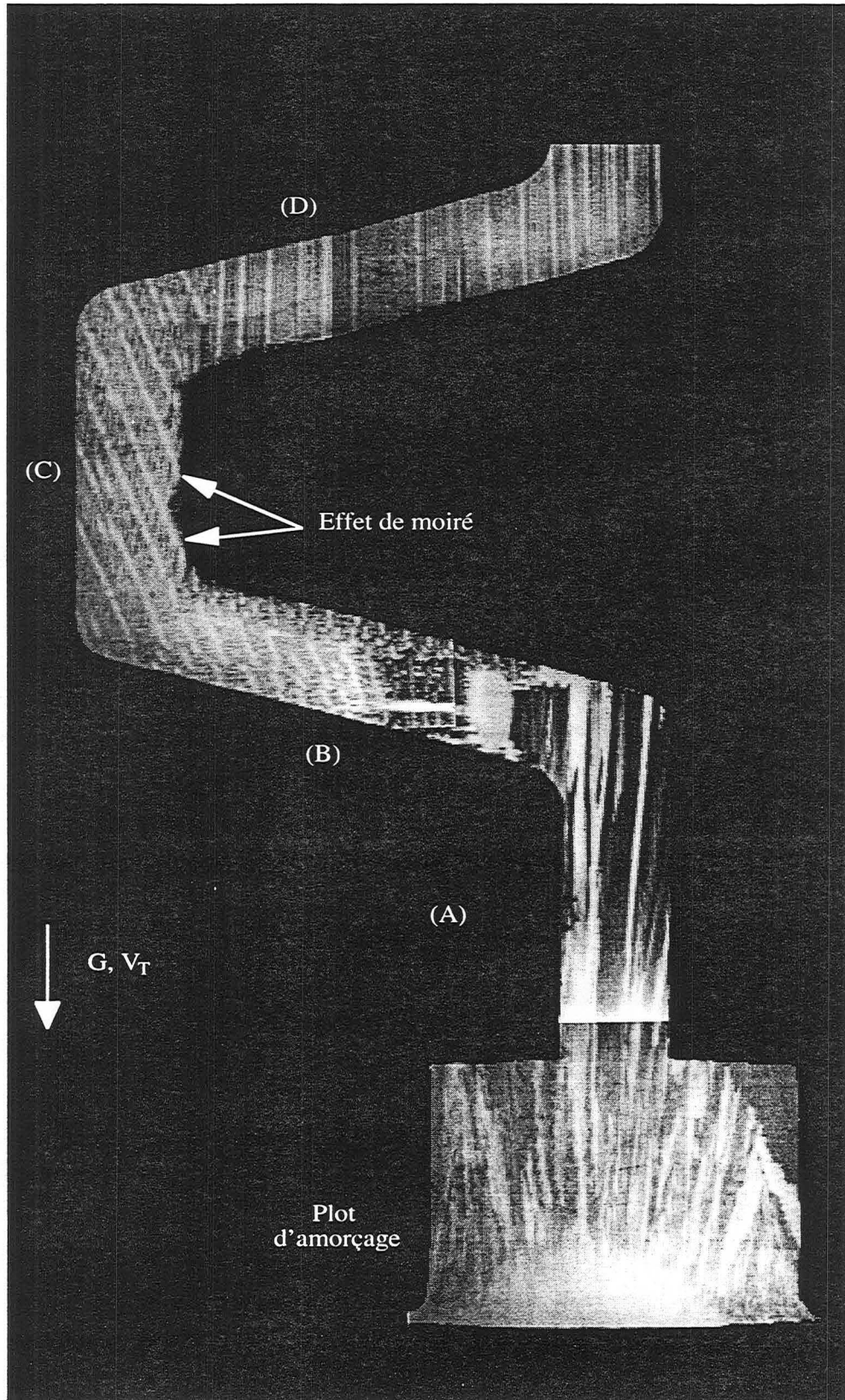


Figure 4.1 : Macrographie du sélecteur de la plaque 1500/2/i de 1 mm d'épaisseur.

4.2 Germination des grains au contact d'une surface refroidie

Lors de la fabrication d'une pièce monocristalline en superalliage à base de nickel, la solidification débute dans le plot d'amorçage, dès que l'alliage est au contact de la sole froide du four (figure 3.14). La solidification est initialisée par la germination d'un grand nombre de grains sur le refroidisseur. Cette étape nécessite que le métal liquide ait été amené dans un état de surfusion élevée, probablement plusieurs dizaines de degrés Kelvin. Au cours des premiers instants suivant la germination, la vitesse de croissance est bien plus importante que la vitesse de tirage, ce tant que la température du front de solidification n'a pas, à peu près, rejoint l'isotherme liquidus. Le déroulement de l'initiation de la solidification a pu être simulé à l'aide de l'installation de solidification d'alliages transparents. Cette expérience est décrite à l'annexe 8.1.

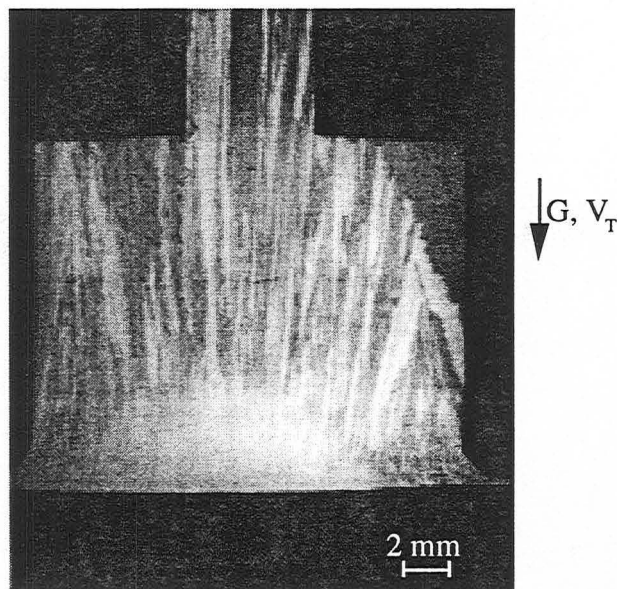


Figure 4.2 : Micrographie d'une section du plot de la plaque 1500/2/i/1 mm, prélevée parallèlement à la direction de tirage.

La figure 4.2 présente la micrographie d'une section d'un plot d'amorçage, prélevée parallèlement à son axe vertical. On peut remarquer la présence d'une multitude de grains dont les orientations diffèrent ainsi qu'en témoignent les variations de contraste métallographique. La distribution des orientations des axes dendritiques primaires solidifiés dans les premiers instants après la coulée est aléatoire²². Sur la partie droite de la photographie, on observe l'extension latérale d'un grain. Certains grains ont une base plus étroite que leur partie supérieure ; il s'est produit une présélection ou plutôt une compétition entre grains d'orientations primaires différentes.

4.3 Mécanisme d'extension et de compétition dans le sélecteur

Le principe de fonctionnement des sélecteurs de grain est basé sur la compétition entre dendrites. Constitué d'une chicane, le sélecteur impose des extensions latérales successives qui facilitent cette compétition. La figure 4.3 montre un schéma du sélecteur utilisé par la SNECMA et qui a équipé nos plaques expérimentales. Des études réalisées par la SNECMA ont montré que la vitesse de tirage optimum pour la solidification du sélecteur est de 4 mm/min.

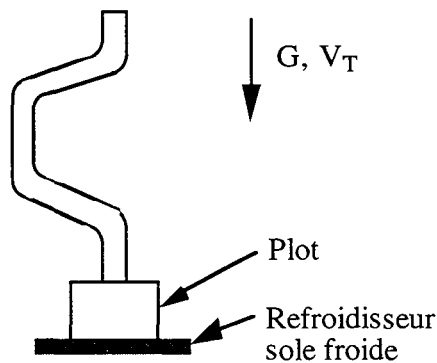


Figure 4.3 : Schéma du sélecteur utilisé par la SNECMA lors de la fabrication de pièces monocristallines.

Le sélecteur est semblable à une chicane qui impose 2 changements de direction de croissance latérale au cours de la solidification. Lorsque l'un d'eux survient, les grains présents dans la pièce ont, latéralement, un volume mis à leur disposition pour qu'ils s'étendent. Cette extension ne peut se faire qu'à partir des bras secondaires issus des bras primaires. Leur orientation est donc un paramètre important du phénomène de la compétition. L'extension des bras secondaires est illustrée sur la figure 4.4 qui est un agrandissement du second changement latéral de direction du sélecteur montré à la figure 4.1. Sur la figure 4.4, nous pouvons observer que les bras secondaires qui s'étendent latéralement sont issus du premier tronc primaire situé à gauche de l'extension. Ils donnent naissance à des bras tertiaires qui, après compétition, deviennent des bras primaires. Comme nous sommes ici en présence d'une extension ménagée, le nouvel axe dendritique primaire donne rapidement naissance à un axe secondaire qui assure l'extension latérale.

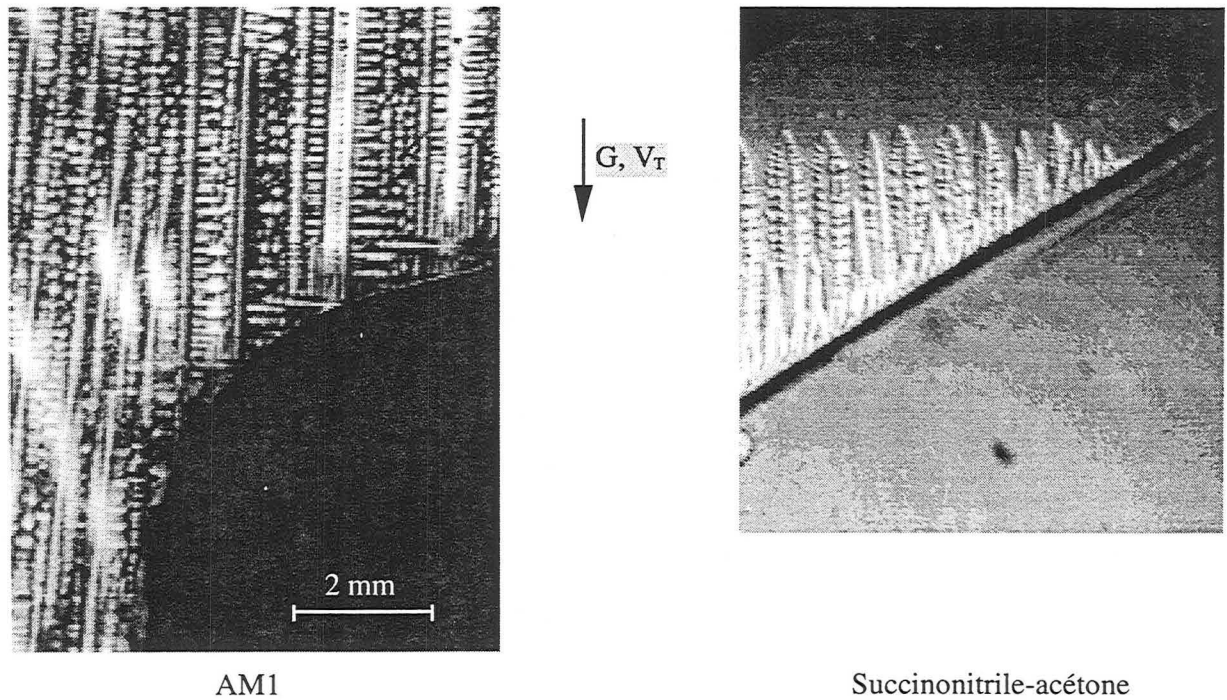


Figure 4.4 : Illustration d'un changement de direction ménagée prélevée dans le sélecteur de la pièce 1500/2/i/1 mm en AM1 et dans une chicane d'une plaque mince en alliage transparent.

La figure 4.5 montre une micrographie d'une section transversale d'un sélecteur prélevée au niveau du premier coude de changement de direction.

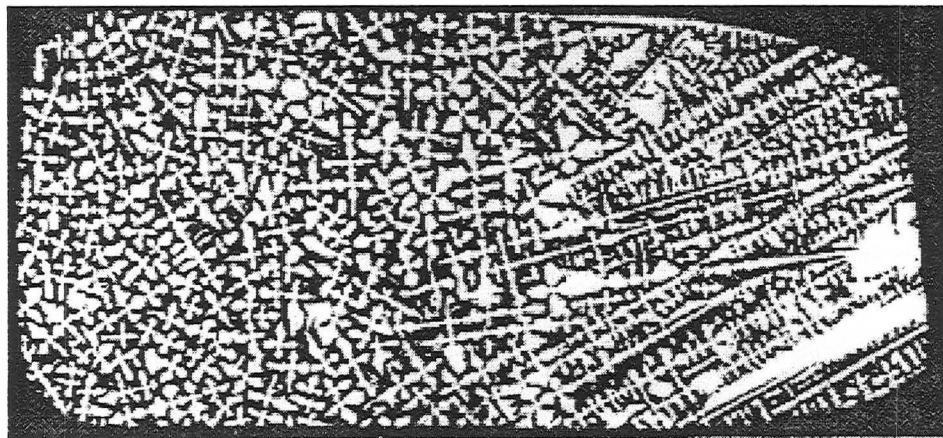
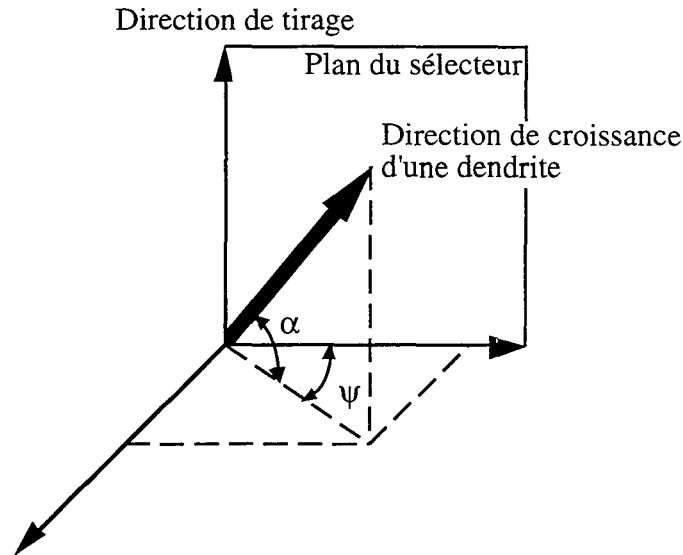


Figure 4.5 : Micrographie d'une section transversale d'un sélecteur au niveau du premier coude de changement de direction ⁸².

On observe sur cette photographie l'extension latérale d'un nombre limité de bras secondaires. Ils sont issus des axes primaires les plus proches du coude. Il existe une compétition liée à la géométrie de la pièce.

Ph. Baouche ⁸² a étudié la compétition lors d'un changement de direction. La figure 4.6 schématise le principe de détermination de la vitesse de croissance d'un bras dendritique qui se développe dans une partie du sélecteur inclinée d'un angle de $(\pi/2 - \alpha)$ par rapport à la direction de tirage. Elle fait, en outre, un angle ψ avec le plan du sélecteur.



α : angle d'inclinaison du sélecteur

ψ : angle entre la direction des bras dendritiques primaires et le plan du sélecteur

Figure 4.6 : Définition des angles de repérage de la direction de croissance d'une dendrite qui croît dans une partie inclinée du sélecteur.

Dans une zone oblique du sélecteur, la vitesse de croissance du bras dendritique peut s'écrire en fonction de la vitesse de tirage V_T :

$$V_c = \frac{V_T}{\sin \alpha \cdot \cos \psi} \quad [4.1]$$

La figure 4.7 montre les variations de la surfusion à la pointe de la dendrite en fonction de l'angle ψ pour deux valeurs de α . On prédit qu'une augmentation de la désorientation (ψ) de 0° à 45° conduit à une augmentation de la surfusion de l'ordre d'un demi degré quelle que soit la valeur de α . On remarque que plus l'angle α est grand, plus la surfusion est élevée. Pour la mise au point de ce type de sélecteur en chicane, il faut trouver un compromis entre une inclinaison faible qui provoque une surfusion minimale mais pas trop proche de zéro pour être certain de ne pas risquer de germination parasite. À la vue des écarts calculés de surfusion, il est probable

qu'une variation du gradient radial de température peut avoir une grande incidence sur la surfusion à la pointe des dendrites et donc sur leur comportement au cours de la sélection.

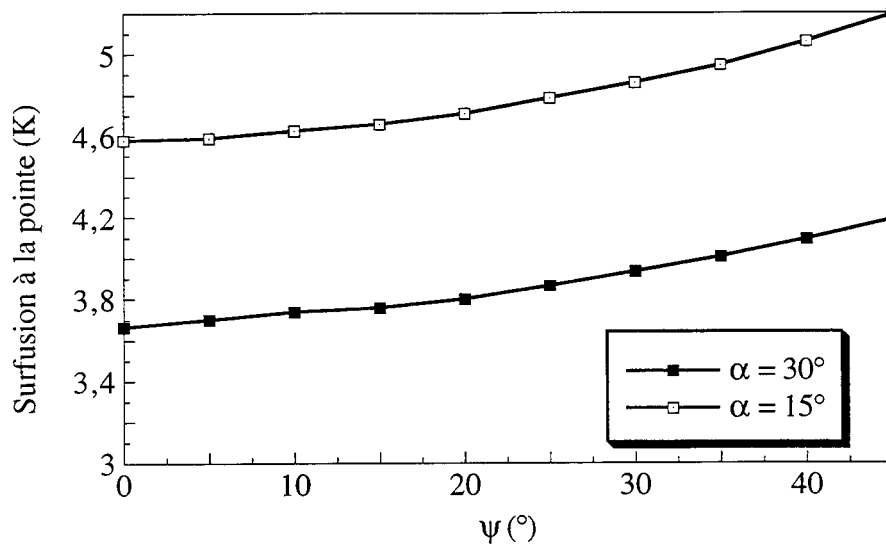


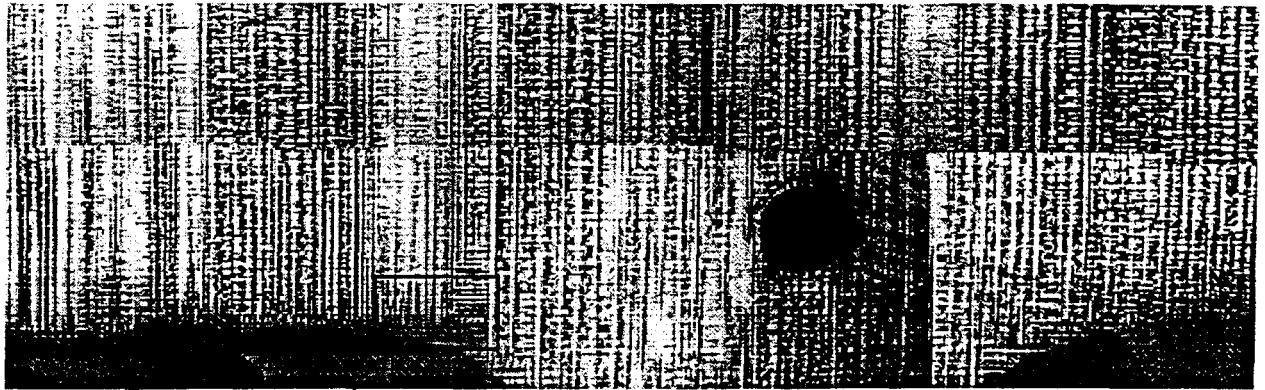
Figure 4.7 : Variation de la surfusion à la pointe des dendrites en fonction de l'angle ψ pour deux valeurs de α ⁸².

4.4 Extension en sortie de sélecteur

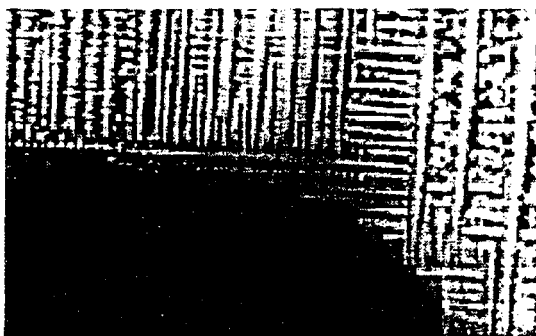
À l'extrémité supérieure du sélecteur, la géométrie définie par le moule offre un large espace d'extension latérale des microstructures de solidification. Nous avons poli puis attaqué par voie chimique une face de la plaque 1500/10/i de 1 mm d'épaisseur. Des photographies de la zone d'extension ont été faites. Le montage de ces clichés a permis d'obtenir la figure 4.8.a. Au centre, on note la présence du trou permettant le passage d'un thermocouple. Celui-ci n'a qu'une très faible influence sur le réseau de dendrites, limitée à l'apparition d'une couronne de solidification cellulaire dans toutes les directions, d'une épaisseur de quelques dizaines de microns autour de la gaine (voir à l'annexe 8.2). On peut suivre les bras primaires sur une distance de plusieurs millimètres, voire centimètres. La structure dendritique présente à la surface de la plaque admet une grande régularité. D'autre part, il n'apparaît pas de différences structurelles remarquables entre les dendrites issues de l'extension et celles émergentes du sélecteur.

On remarque dans la partie inférieure gauche l'extension latérale d'un seul bras secondaire (voir l'agrandissement présenté à la figure 4.8.b). De cet axe, des bras tertiaires se développent

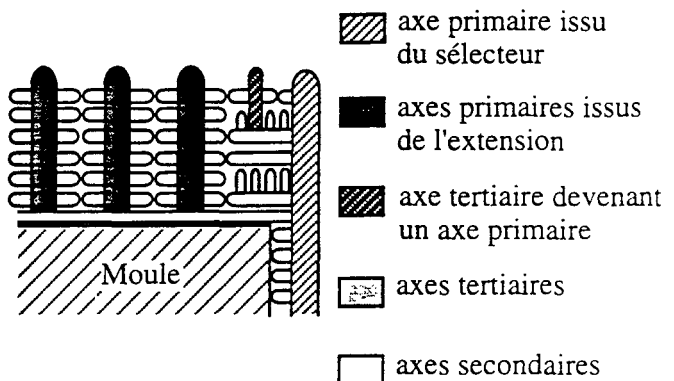
de façon régulière. Après compétition entre eux, certains deviennent des troncs primaires. Cependant, ce mécanisme est perturbé sur une distance de quelques espaces interdendritiques primaires, aux abords de la dendrite issue du sélecteur qui est à l'origine du solide qui s'étend. En effet, sur celle-ci, on observe l'extension latérale de bras secondaires sur une longueur de trois à quatre espaces interdendritiques primaires. Il semble que dans cette zone le réseau éprouve des difficultés à laisser se développer un nouvel axe primaire. La figure 4.8.c illustre ce phénomène.



a) : Montage de micrographies de la surface de la plaque 1500/10/i/1 mm



b) Agrandissement de la zone encadrée



c) schéma illustrant l'extension du réseau en sortie de sélecteur

Figure 4.8 : Illustrations du mécanisme d'extension en sortie du sélecteur.

Le phénomène d'extension rencontré en sortie de sélecteur ou dans les plates-formes des aubes monocristallines a pu être simulé sur l'installation de solidification dirigée d'alliages transparents. Des plaques telles que celles dont le schéma est montré sur la figure 3.2.b ont été confectionnées pour cet usage. Nous avons observé l'influence de la vitesse sur le réseau créé et la morphologie du front lors de l'extension. Ces expériences ont été filmées. Nous avons extrait des photographies de ces films dans le but de quantifier les différents paramètres du réseau. Ces

résultats sont présentés dans le chapitre 5. La figure 4.9 montre les débuts de l'extension d'un grain solidifié avec une vitesse de tirage $V_T = 20.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et un gradient de température $G = 2200 \text{ K.m}^{-1}$.

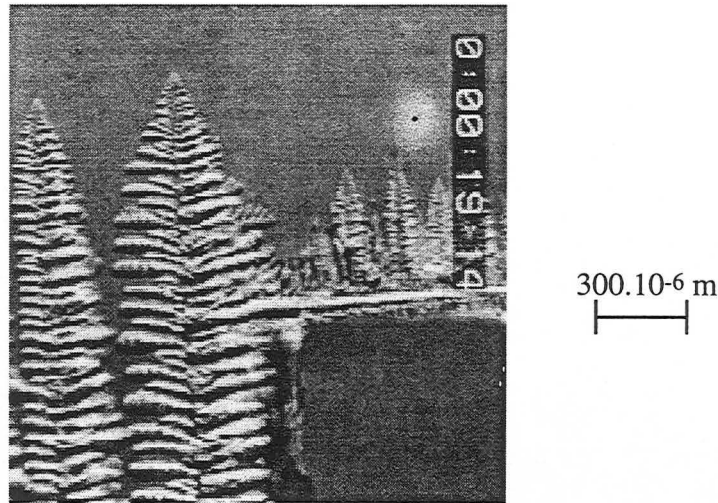


Figure 4.9 : Extension latérale d'un grain dans un échantillon auquel on applique une vitesse de tirage de $20.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Nous observons que l'extension latérale d'un grain ne se produit pas dès que la pointe de la dendrite sort du canal. Dans le cas présenté, ici, la pointe de la dendrite a dépassé la sortie du sélecteur de 1 mm avant qu'un bras secondaire ne s'étende latéralement. Il donne très rapidement naissance à des bras tertiaires dont un grand nombre disparaît rapidement pour ne laisser subsister que les axes primaires. Par ailleurs, on note la présence d'un "puits liquide" entre la dendrite sortant du sélecteur et le premier axe primaire créé. Ce phénomène est dû au rejet de soluté lors de la solidification des bras secondaires situés au-dessus du bras qui s'étend, rejet qui retarde la solidification des bras tertiaires issus de l'extension.

La figure 4.10 montre la forme du front de solidification quand les dendrites issues du sélecteur ont dépassé l'extension de 1.10^{-3} m , dans le cas d'une vitesse de tirage $V_T = 180.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et un gradient de température $G = 1500 \text{ K.m}^{-1}$. Le "puits liquide" que nous avons précédemment observé, sur la figure 4.9, n'apparaît pas ici. Nous étudions dans le chapitre 5 l'influence de la vitesse de tirage et du gradient de température sur la vitesse de croissance du bras secondaire qui s'étend et sur la courbure du front. Nous présentons les résultats de l'étude de l'évolution de la densité d'axes après l'extension et le retour à un état quasi stationnaire.

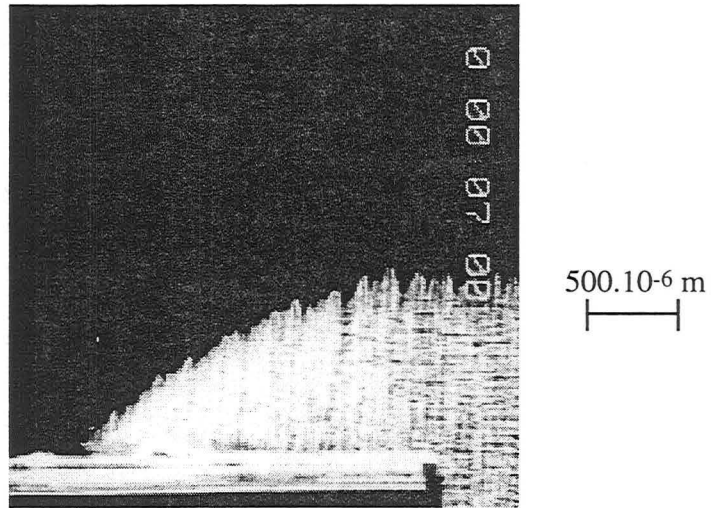


Figure 4.10 : Extension latérale, forme du front de solidification.

Chapitre 5

**ÉTUDE DES RÉSEAUX DENDRITIQUES
EN PAROIS MINCES
D'ALLIAGES TRANSPARENTS**

Cette partie de notre travail porte sur l'étude des réseaux dendritiques en parois minces d'alliages succinonitrile-acétone. Elle a été réalisée avec l'installation de solidification dirigée d'alliages transparents présentée au paragraphe 3.1.1.

Nous nous intéressons tout d'abord aux mécanismes de formation des réseaux en sortie de sélecteur et nous caractérisons la variation de la densité linéaire d'axes dendritiques primaires. Puis, nous étudions l'évolution des réseaux à grande distance du sélecteur, et nous cherchons plus particulièrement à définir la dispersion des valeurs d'espacements dendritiques primaires moyens. Dans ces deux premières parties, l'influence de la vitesse de tirage et du gradient de température sur le réseau dendritique est examinée.

Enfin, des observations complémentaires relatives à la formation des monocouches de dendrites sont faites. Elles mettent en évidence l'effet de la distance entre les parois de verre de l'échantillon, de la désorientation des grains, du réseau sous-jacent dans le cas d'une croissance en épitaxie sur un solide partiellement refondu, et aussi l'influence d'un changement brusque ou lent de la vitesse de tirage.

5.1 Formation des réseaux en sortie de "sélecteur"

Nous nous intéressons à l'étude du réseau formé à la sortie d'un canal de sélection. Pour l'étude de l'extension latérale, nous utilisons une plaque présentée de manière schématique sur la figure 3.2.b et dont les caractéristiques géométriques dans la zone d'extension sont précisées sur la figure 5.1.

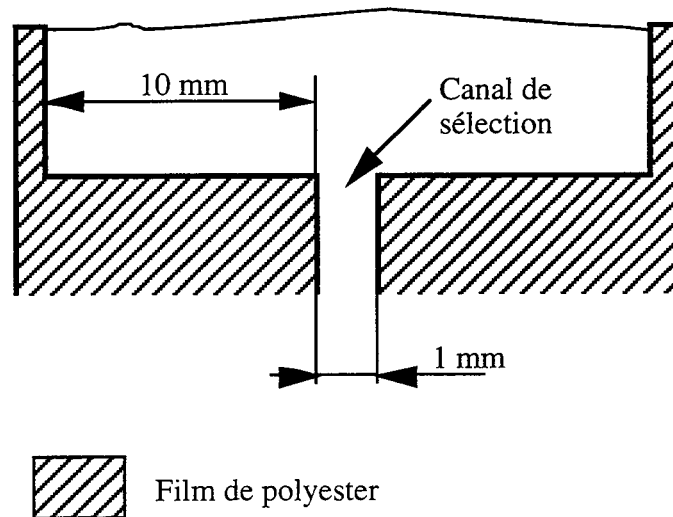
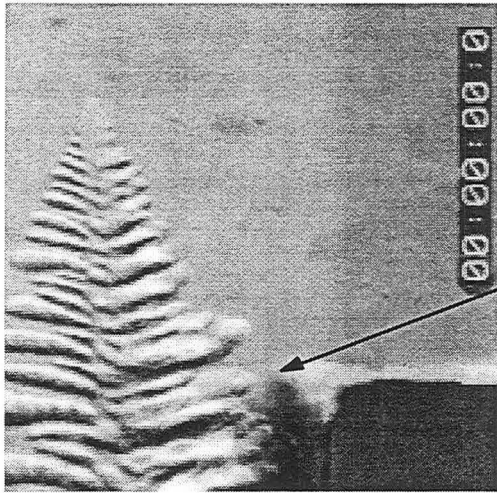


Figure 5.1 : Présentation de la zone d'extension.

La solidification est initialisée dans le canal, dit de sélection, sur un solide à l'équilibre avec le liquide. Nous nous sommes assurés préalablement de la présence d'un grain unique dont l'une des directions $\langle 001 \rangle$ est parallèle au gradient de température et à la vitesse de tirage de la plaque. L'initialisation de la croissance est réalisée en un point suffisamment éloigné de la zone d'extension pour que l'on puisse considérer que la solidification s'effectue en régime permanent lorsque le front atteint la sortie du canal.

La figure 5.2 présente trois photographies successives illustrant le mécanisme d'extension. Elles ont été extraites d'un film expérimental réalisé lors d'un essai effectué avec une vitesse de tirage de $20 \cdot 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et un gradient de température de $2200 \text{ K} \cdot \text{m}^{-1}$. Le grossissement des clichés a et b est deux fois plus important que celui de la photographie c.



$t = 0$ s, nous avons choisi cette origine des temps à l'instant où la pointe du bras secondaire qui va s'étendre arrive à l'extrémité supérieure du canal de sélection.

1.10^{-4} m

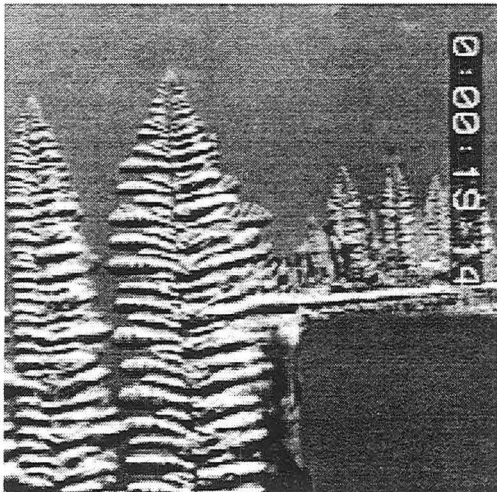
a)



$t = 12.76$ s, l'axe secondaire s'étend latéralement, des bras tertiaires apparaissent.

1.10^{-4} m

b)



$t = 19.56$ s, la compétition entre les bras tertiaires est déjà effective : certains d'entre eux sont devenus des axes primaires.

2.10^{-4} m

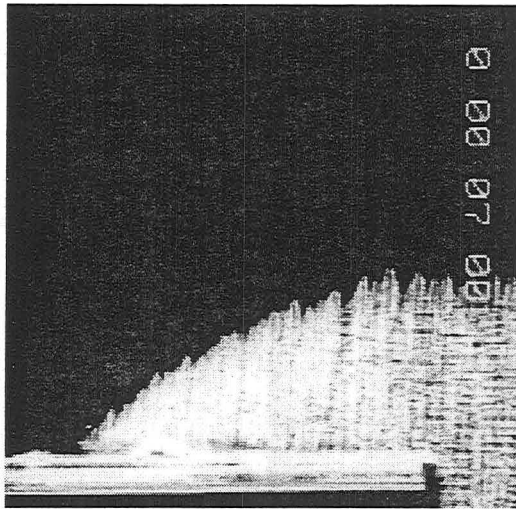
c)

Figure 5.2 : Décomposition du mécanisme de l'extension lors de la solidification d'une plaque avec une vitesse de croissance de 20.10^{-6} m.s⁻¹ et un gradient de température de 2200 K.m⁻¹.

La photographie a) montre que l'extension d'un bras secondaire n'a pas débuté, bien que la pointe de la "dendrite mère" est à environ 400.10^{-6} m au delà de la sortie du canal. Si l'on considère que les isothermes restent perpendiculaires à la direction de tirage, nous estimons l'écart de température ΔT entre la pointe de la "dendrite mère" et la sortie du canal grâce à la mesure de la distance entre la pointe de la dendrite et la sortie du sélecteur, et nous la multiplions par le gradient de température appliqué. À cet instant, ΔT y est de l'ordre de 0.85 K. Le cliché b) présente l'extension latérale du premier bras secondaire au-dessus de la sortie du canal. L'écart de température entre la pointe de la "dendrite mère" et la pointe de "l'axe secondaire fils" est alors de 1.22 K. Sachant, que la vitesse de croissance varie selon le carré de la surfusion, nous devrions observer une accélération de la croissance de l'axe secondaire au cours de son développement. Cet aspect de l'extension sera étudié dans le prochain paragraphe. On note aussi le branchement de bras tertiaires de part et d'autre de cet axe secondaire. Après les quelques instants nécessaires à la compétition entre les bras tertiaires, certains se transforment en axes primaires. On peut les observer sur l'image c). L'écart de température entre la pointe des dendrites issues du canal et la pointe des dendrites issues de l'extension est d'environ 0.71 K. La vitesse des axes primaires provenant de l'extension augmente et devient supérieure à la vitesse de croissance des "dendrites mères". Lorsque ces nouveaux axes primaires auront "rattrapé" les "dendrites mères", leur vitesse de croissance diminuera pour devenir égale à la vitesse de déplacement des isothermes. Cette partie sera étudiée plus en détail dans la suite de ce chapitre.

5.1.1 Étude de l'extension latérale d'un axe secondaire

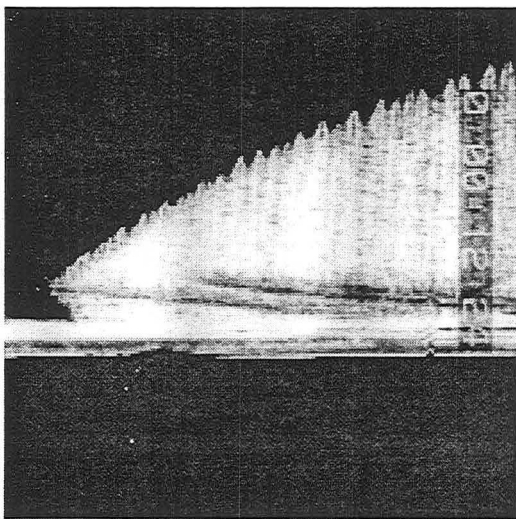
La figure 5.3 montre une séquence de trois clichés prélevés successivement dans le film expérimental d'une l'extension effectuée avec une vitesse de tirage de 120.10^{-6} m.s⁻¹. Sur la photographie a, on observe la propagation d'un seul bras secondaire dont la direction de croissance admet une divergence sensible par rapport à l'extension. Celle-ci offre un espace de plus en plus important aux bras tertiaires qui se développent entre le bras secondaire et la sortie de sélecteur. Ainsi sur la figure 5.3.b, on note la propagation d'un deuxième bras secondaire qui a pris naissance sur un bras tertiaire lorsque le premier axe secondaire est à environ 100.10^{-6} m de la paroi. Ce bras, qui est d'abord en retard, rattrape le premier bras et le dépasse. La croissance de bras tertiaires, depuis ce nouvel axe, entraîne l'arrêt de la solidification du premier axe secondaire. La photographie c montre la naissance d'un troisième bras secondaire.



Au début de l'extension, un bras secondaire unique se propage latéralement.

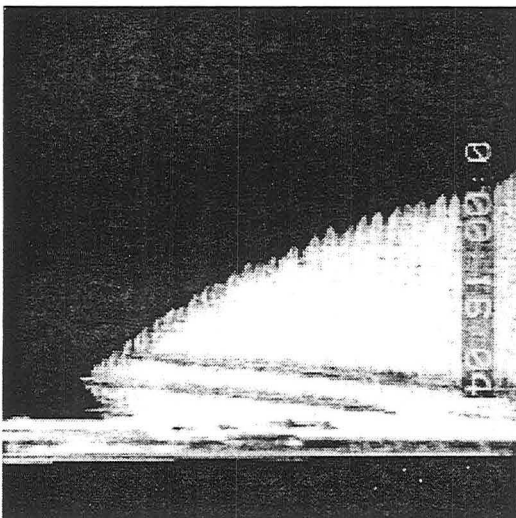
5.10^4 m

a)



La création d'un deuxième bras secondaire et la croissance sur celui-ci de bras tertiaires stoppent la solidification du bras à l'origine de l'extension.

b)



Pour des vitesses de tirage suffisamment élevées, on observe une succession de création de bras secondaires sous l'axe qui assure l'extension et l'arrêt de celui-ci quelques instants plus tard.

c)

Figure 5.3 : Séquence d'apparition d'un axe secondaire lors d'une extension latérale.

Nous avons effectué des expériences avec une lame de $200 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur pour deux vitesses de tirage, V_T , $20 \cdot 10^{-6}$ et $60 \cdot 10^{-6}$ m.s $^{-1}$. Au cours de chaque expérience, nous avons suivi l'extension latérale d'un bras secondaire, en déplaçant par saccades l'installation par rapport à l'axe optique du microscope stéréoscopique, le champ d'observation de celui-ci étant trop réduit pour l'étude de ce phénomène.

Les clichés extraits des enregistrements vidéo, prélevés à des temps uniformément répartis sur la durée de l'extension, nous ont permis de mesurer la position (d) du front dendritique durant l'extension latérale. La sortie de sélecteur est prise comme origine de l'abscisse d . Avec ces relevés, nous avons calculé de point en point la vitesse moyenne d'extension du bras secondaire, notée V_{cs} . Dans le cas de la présence simultanée de deux bras secondaires, le bras considéré pour la mesure de d est celui qui est le plus en avance et qui par conséquent matérialise le front dendritique. Les résultats sont portés sur la figure 5.4.

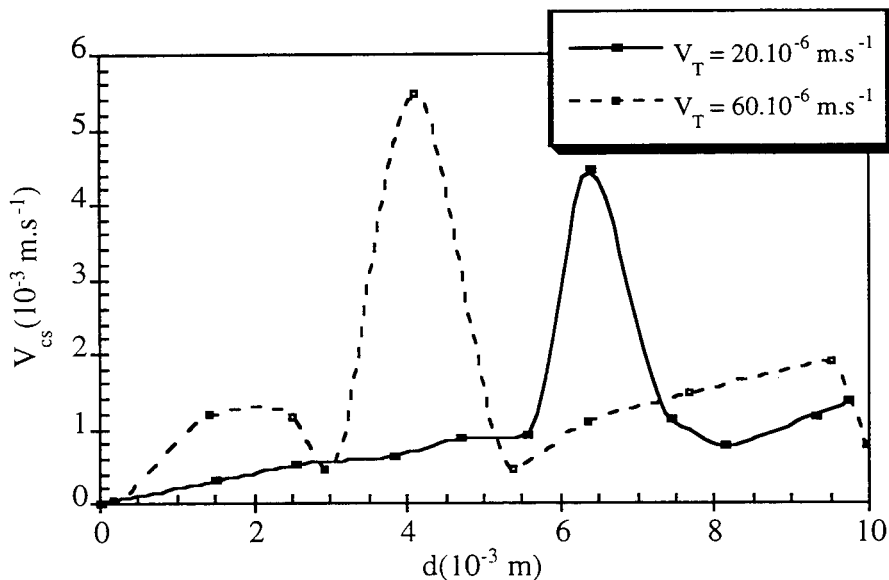


Figure 5.4 : Évolution de la vitesse de croissance du bras secondaire en fonction de la position de sa pointe par rapport à l'origine, au cours d'une extension latérale.

On remarque que la vitesse moyenne de croissance augmente globalement. Elle présente des zones d'accélération brusque et des zones d'accroissement constant. Esaka et col. ³⁸ observent un comportement identique lors de l'extension latérale d'un bras secondaire à un joint de grain. Pour chaque vitesse de tirage, on note la présence d'un pic de vitesse d'extension. Il provient de la création d'une deuxième dendrite au-dessous du premier axe secondaire, apparition permise à cause d'une direction de croissance légèrement divergente de l'extension. D'autre part, une augmentation de la vitesse de tirage entraîne le rapprochement de la création d'un nouveau

bras secondaire de l'origine de d. Ainsi les photographies de la figure 5.3 montrent que pour une vitesse de tirage plus élevée un troisième bras secondaire peut apparaître. Le phénomène d'extension dans ce cas est trop rapide pour pouvoir être étudié de façon précise et donc aucun résultat n'a pu être porté sur la figure 5.4.

Nous avons observé au cours des différentes expériences une succession d'accélération puis de décélération de l'extension latérale coïncidant avec l'apparition d'un nouvel axe secondaire, ce phénomène "cyclique" possédant une fréquence d'autant plus importante que la vitesse de tirage est grande.

5.1.2 Étude de la croissance des bras tertiaires et de leur compétition au cours d'une extension latérale

Dans le but d'étudier l'extension du réseau, nous avons suivi le développement des axes tertiaires, leur compétition et leur "transformation" en axes dendritiques primaires. Cependant l'extrême rapidité des phénomènes, qui dépend de la vitesse de tirage appliquée à la plaque, rend l'observation très difficile voire impossible avec les moyens techniques qui sont à notre disposition. C'est pourquoi les résultats qui sont présentés ici sont tirés d'expériences effectuées avec une vitesse de tirage lente de $12 \cdot 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ et un gradient de $2000 \text{ K} \cdot \text{m}^{-1}$.

Nous avons défini une démarche aussi voisine que possible de celle mise en oeuvre pour l'étude de l'évolution de la densité surfacique d'axes primaires dans les échantillons en AM1. Nous avons compté de manière systématique tous les bras présents à une distance h de la sortie du sélecteur et qui prennent naissance sur le bras secondaire qui s'étend. La figure 5.5 montre l'évolution de la densité linéaire d'axes dendritiques, primaires et tertiaires, avec la distance (h) à la sortie du sélecteur. Le point porté en $h = 0 \text{ m}$, représente la valeur de la densité linéaire d'axes, notée n_l , dans le canal de sélection quelques instants avant la sortie. On peut remarquer que n_l est très grand après l'extension et qu'il diminue rapidement pour retrouver une valeur proche de celle mesurée avant la sortie de sélecteur. Pour tenir compte du nombre très important de bras tertiaires qui se forme sur l'axe secondaire qui s'étend, nous avons relié les points à $h = 0$ et $h = 0,3 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ par un trait interrompu.

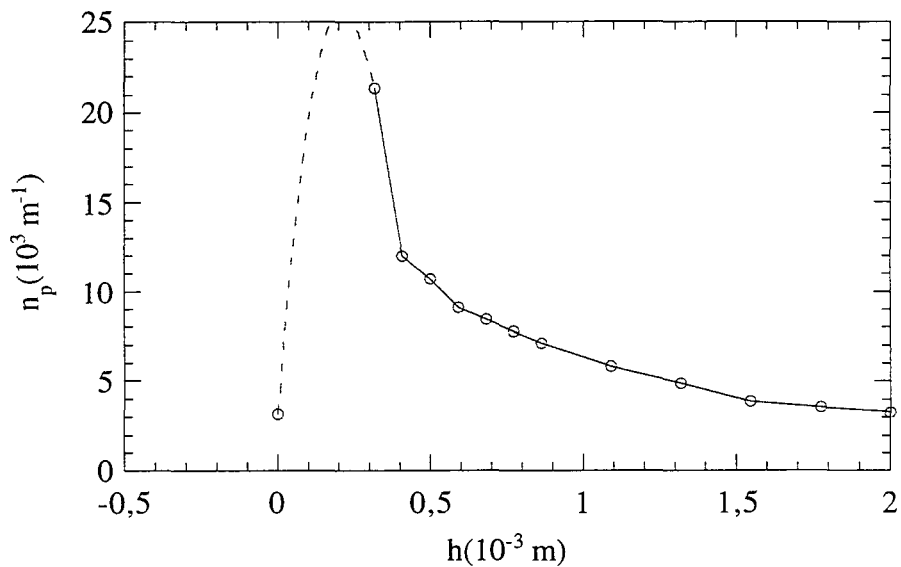


Figure 5.5 : Variation de la densité linéaire d'axes, en comptant aussi bien les axes primaires que tertiaires, en fonction de la distance à la sortie de sélecteur.

Nous avons par ailleurs suivi la croissance du premier axe primaire créé lors de l'extension du réseau. La figure 5.6 montre l'évolution de la taille de ce bras au cours du temps et met en évidence trois domaines dans lesquels la vitesse de croissance du bras est différente.

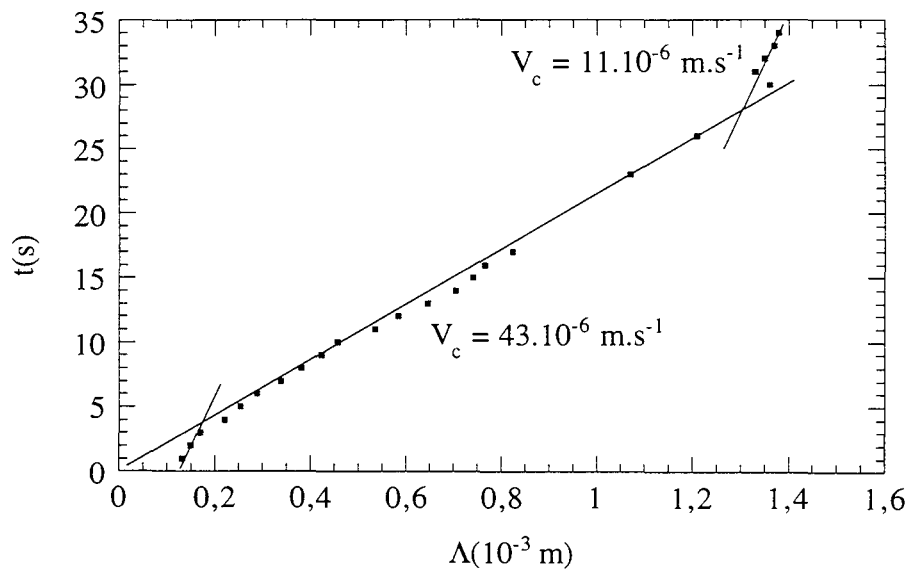


Figure 5.6 : Évolution de la taille (Λ) d'un axe primaire créé lors de l'extension.

Dans les premiers instants de sa croissance ($t < 3$ s), le bras tertiaire se développe à une vitesse proche de la vitesse de tirage avec une morphologie cellulaire. Lorsqu'il se transforme en

axe dendritique primaire, sa vitesse augmente jusqu'à une valeur moyenne de $43 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Il rattrape les dendrites issues du canal. Quand sa pointe est proche de ce front, sa vitesse décroît pour tendre vers une vitesse de $11 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ égale à la vitesse de tirage.

5.2 Étude de l'influence de la vitesse de tirage sur le gradient de température

Dans le cas de plaques équipées d'un thermocouple, nous avons quantifié pour différentes vitesses de tirage le gradient de température dans la zone pâteuse. Pour ce faire, nous avons utilisé la démarche donnée au chapitre 3. La figure 5.7 montre cette l'évolution. On note que le gradient de température est divisé par 2 lorsque la vitesse de tirage augmente d'un facteur 6.

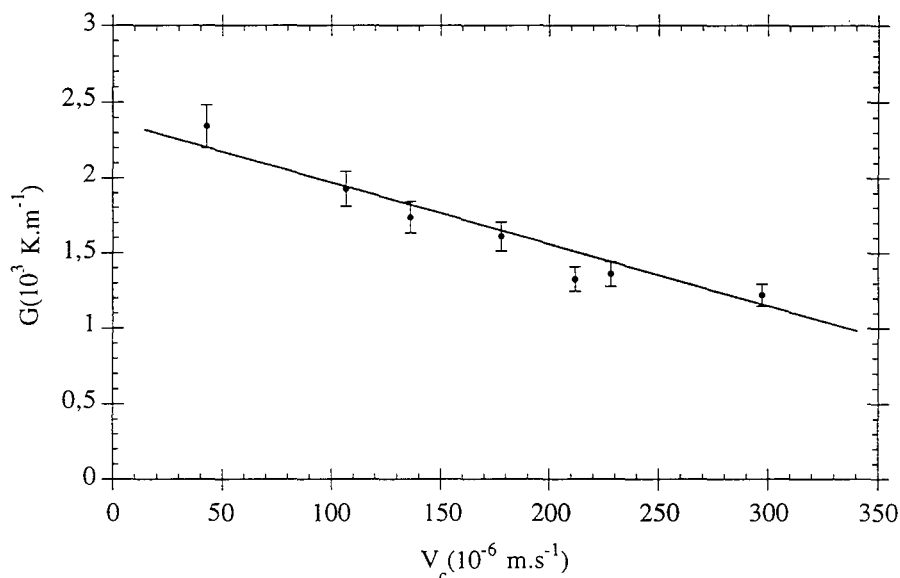


Figure 5.7 : Variation du gradient de température estimée dans la zone pâteuse en fonction de la vitesse de tirage.

5.3 Évolution des réseaux à grande distance

Dans toutes les expériences dont les résultats sont présentés ici, la température de la zone chaude est réglée à $70 \text{ }^\circ\text{C}$ et les thermoéléments maintiennent la zone froide à $10 \text{ }^\circ\text{C}$. La distance l entre les deux zones est fixée à $25 \cdot 10^{-3} \text{ m}$. Dans ces conditions, le gradient moyen de température est égal à 2200 K.m^{-1} pour les vitesses de tirage les plus faibles.

Chaque expérience consiste à suivre l'évolution du réseau dendritique dans un grain dont la direction de croissance $\langle 001 \rangle$ des axes primaires est parallèle à la vitesse de tirage et au gradient de température imposés à la plaque. Le grossissement sélectionné pour l'observation du grain choisi fait en sorte que l'on puisse mesurer au moins une dizaine d'espacements dendritiques primaires. On mesure toutes les distances entre axes premiers voisins présents sur la photographie tirée du film expérimental. La moyenne de l'ensemble des espacements mesurés sur une photographie, prise à l'instant t , sera notée λ_{moy} et l'écart type associé σ_{moy} . Un ensemble de photographies prises à des temps de croissance régulièrement espacés permet d'obtenir l'évolution de l'espacement dendritique primaire au cours de la solidification.

5.3.1 Croissance en épitaxie sur un solide partiellement fondu

Les plaques utilisées sont du type indiqué par le schéma de la figure 3.2.a. Elles ne possèdent pas de canal de "sélection".

Nous avons porté sur les figures 5.8 et 5.9 les mesures d'espacements entre axes primaires premiers voisins faites avec une cellule de 100.10^{-6} m d'épaisseur contenant un alliage avec 0.2 % massique d'acétone, respectivement pour une vitesse de tirage de 11.10^{-6} m.s⁻¹ et de 210.10^{-6} m.s⁻¹. Plusieurs expériences similaires ont été réalisées, les résultats sont différenciés par l'utilisation de symboles aux niveaux de gris différents. On remarque une très grande dispersion des valeurs, qui paraît peu sensible à l'instant de la mesure. Les variations sont telles que l'on peut noter des rapports de 1 à 3 entre les valeurs extrêmes des espacements primaires. Des expériences identiques ont été faites avec la même plaque pour des vitesses de tirage de 33 et 90.10^{-6} m.s⁻¹ ¹⁰⁰. En comparant les résultats présentés sur ces deux figures, nous remarquons que l'augmentation de la vitesse de tirage a pour effet de translater vers des valeurs plus basses les espacements dendritiques primaires mesurés.

Les histogrammes de distribution des espacements primaires des figures 5.10 et 5.11 ont été construits à partir de l'ensemble des données des graphes précédents. Les expériences y sont différenciées comme précédemment. Les histogrammes obtenus, du fait du regroupement par classes de valeurs d'espacements dendritiques primaires, présentent un pic centré sur la valeur moyenne $\lambda = 412.10^{-6}$ m et 212.10^{-6} m, respectivement. Les espacements dendritiques moyens calculés pour chacune des deux expériences sont donnés, ils sont proches de la valeur moyenne des distributions.

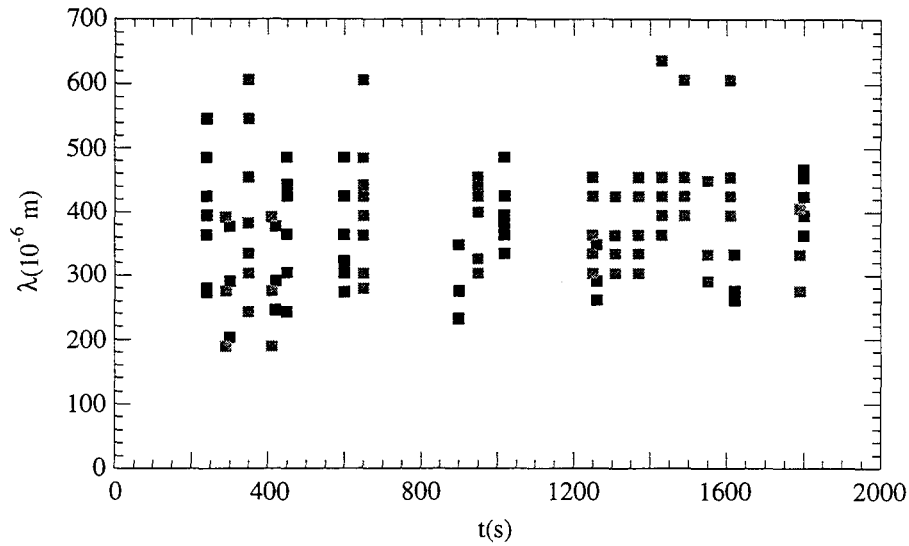


Figure 5.8 : Mesures de l'espacement primaire dans le cas d'un échantillon d'épaisseur $100 \cdot 10^{-6}$ m, $V_T = 11 \cdot 10^{-6}$ m.s $^{-1}$.

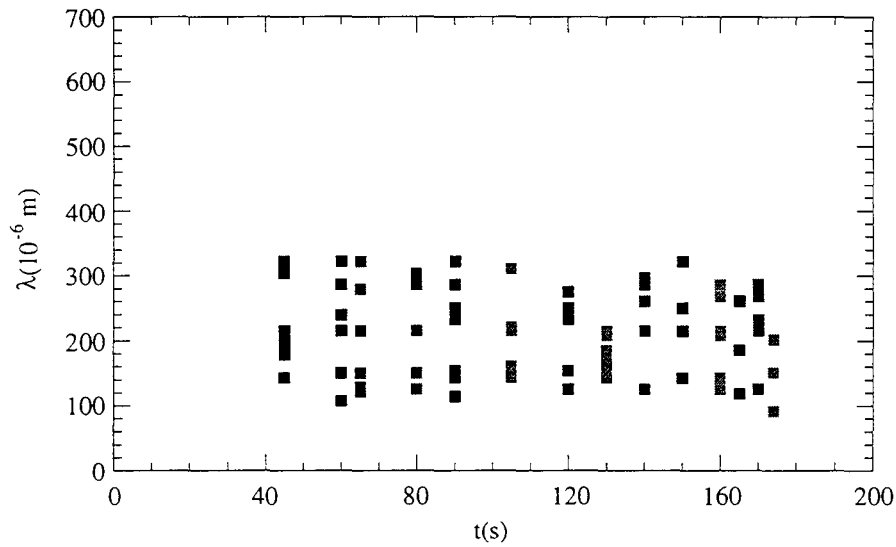


Figure 5.9 : Mesures de l'espacement primaire dans le cas d'un échantillon d'épaisseur $100 \cdot 10^{-6}$ m, $V_T = 210 \cdot 10^{-6}$ m.s $^{-1}$ et $G = 1300$ K.m $^{-1}$.

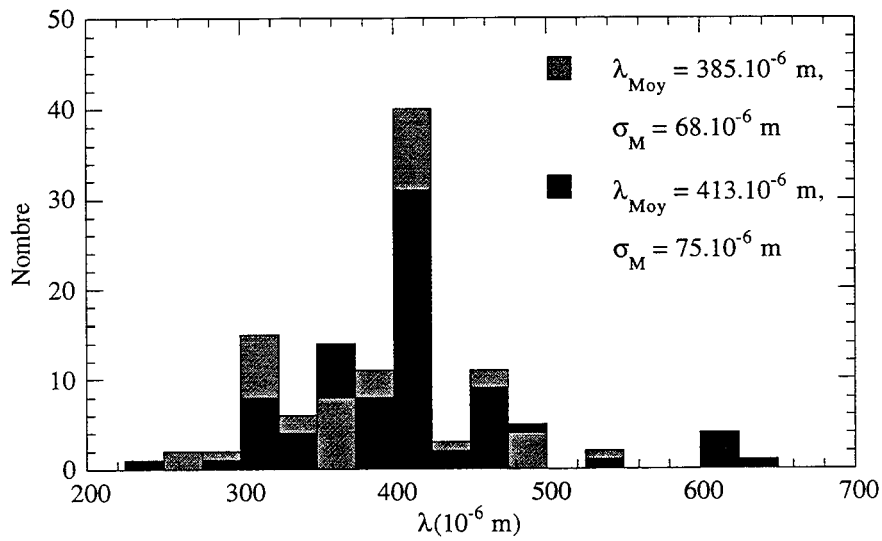


Figure 5.10 : Histogramme des espacements primaires dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m, $V_T = 11.10^{-6}$ m.s⁻¹.

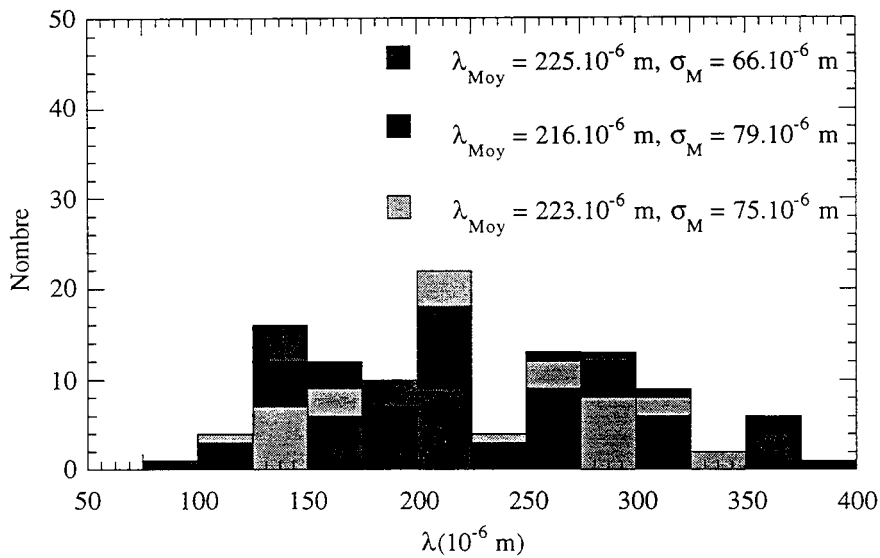
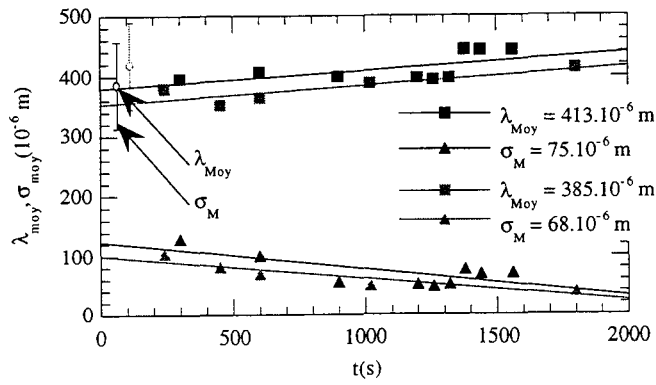


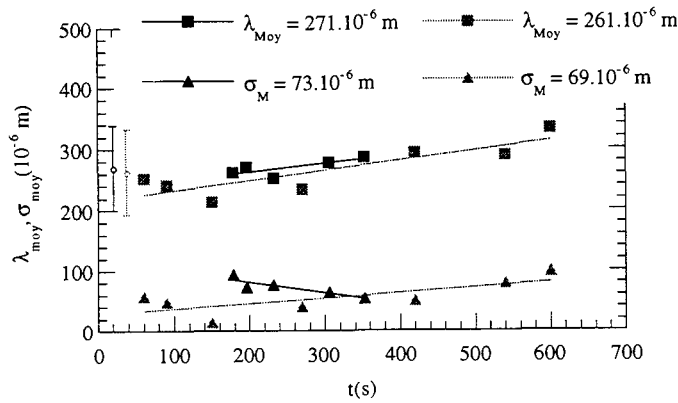
Figure 5.11 : Histogramme des espacements primaires dans le cas d'un échantillon d'épaisseur 100.10^{-6} m, $V_T = 210.10^{-6}$ m.s⁻¹.

Les écarts types calculés sur les distances entre premiers voisins mesurées sont du même ordre dans les deux cas présentés ici. Dans pratiquement toutes les expériences que nous avons réalisées, quelle que soit l'épaisseur de l'échantillon, la teneur en acétone de l'alliage, ou encore la vitesse de tirage et le gradient de température, nous avons constaté que la valeur de l'écart type moyen est comprise entre 60 et $80 \cdot 10^{-6}$ m. Les seuls cas dérogeant à cette "règle" résultent de mesures effectuées sur un réseau de dendrites dont la direction de croissance primaire est différente de celle du gradient de température dans la plaque où l'on note un écart type deux fois plus important.

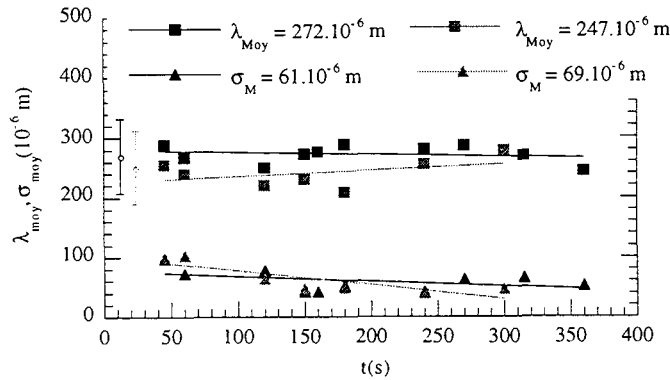
La définition des valeurs moyennes et des écarts types sur l'ensemble des mesures n'ont de sens que s'il n'y a pas d'évolution dans le temps des caractéristiques de distribution. Les figures 5.8 et 5.9 ont été obtenues en prenant la photographie du front de solidification à un instant t donné et en y mesurant tous les espacements primaires. Nous avons calculé pour chaque cliché la moyenne de ces mesures et l'écart type moyen correspondant qui seront notés λ_{moy} et σ_{moy} . Les résultats sont reportés sur les graphiques de la figure 5.12. Nous donnons de plus les résultats des expériences réalisées avec des vitesses de tirage de 33 et $90 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹. Nous avons indiqué les valeurs des espacements dendritiques moyens et des écarts types moyens calculés sur toute la durée des l'expériences et illustré ces résultats en les apposant sur chaque courbe. Ces figures mettent en évidence une lente évolution dans le temps de la valeur moyenne de l'espacement dendritique primaire (λ_{moy}) et de l'écart type (σ_{moy}). Il est remarquable de constater que dans le cas des Figure 5.12.a et b, λ_{moy} augmente de manière régulière au cours du temps. Par contre, λ_{moy} semble rester constant pour des vitesses de tirage plus importantes (Figure 5.12.c et d). Pour les vitesses de tirage de 11 et $33 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹, si l'on réduit notre observation des courbes aux 300 premières secondes des expériences, on note que λ_{moy} peut être aussi considéré constant. Il est par conséquent raisonnable d'envisager que le faible temps de l'expérience, imposé par les limites géométriques de notre plaque, est à l'origine de l'apparente constance de l'espacement primaire moyen aux vitesses de tirage les plus grandes. La valeur moyenne de la distance séparant les axes primaires premiers voisins augmente lentement au cours du temps pour converger vers une valeur finie. La diminution de l'écart type, observée dans pratiquement tous les cas, paraît donner crédit à cette hypothèse. Malgré l'importante dispersion sur la valeur de l'espacement primaire, ou du fait même de cette dispersion, on peut constater que la reproductibilité des mesures est satisfaisante. Cette reproductibilité concerne aussi bien l'amplitude de variation et l'écart type des mesures que la valeur moyenne, λ_{Moy} , dont on note qu'elle ne varie pas de plus de 10 % entre deux essais réalisés pour les mêmes conditions nominales de croissance. Dans la suite, cette quantité est utilisée pour étudier l'effet des conditions de croissance sur le réseau dendritique.



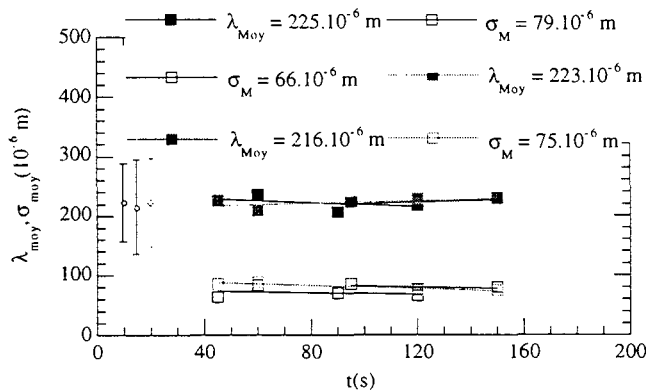
a) $V_T = 11.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$



b) $V_T = 33.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$



c) $V_T = 90.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$



d) $V_T = 210.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$

Figure 5.12 : Variations de λ_{moy} et de σ_{moy} pour différentes vitesses de tirage.

5.3.2 Cas de plaques équipées d'un canal de "sélection"

Nous utilisons ici une plaque de $100 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur équipée d'un canal de "sélection" et d'une soudure chaude de thermocouple dont le schéma est montré à la figure 3.2.b. L'analyse thermique a permis d'estimer à 6.5 % massiques la quantité d'acétone présent dans l'alliage. Nous avons mesuré une dizaine d'espacements entre dendrites premières voisines à environ $5 \cdot 10^{-2}$ m de la sortie du canal. Nous supposons qu'à cette distance l'adaptation du réseau et la compétition entre bras primaires sont terminées. La figure 5.13 montre la variation des espacements primaires moyens avec la vitesse de croissance. Les barres de variation correspondent à $\pm \sigma_M$, l'écart type moyen calculé à partir de la dispersion des espacements mesurés. Il varie de 50 à $70 \cdot 10^{-6}$ m pour les vitesses de croissance mesurées. S'il existe un effet régulateur du "sélectionneur" sur le réseau, il n'est présent qu'à faible distance de l'extension. Lorsque l'on s'en éloigne, l'apparition et la disparition successives de bras primaires entraînent que les espaces entre dendrites premières voisines admettent une dispersion similaire à celle observée précédemment sur des plaques non équipées de canal de "sélection". L'espacement dendritique primaire paraît diminuer par paliers avec l'augmentation de la vitesse de croissance.

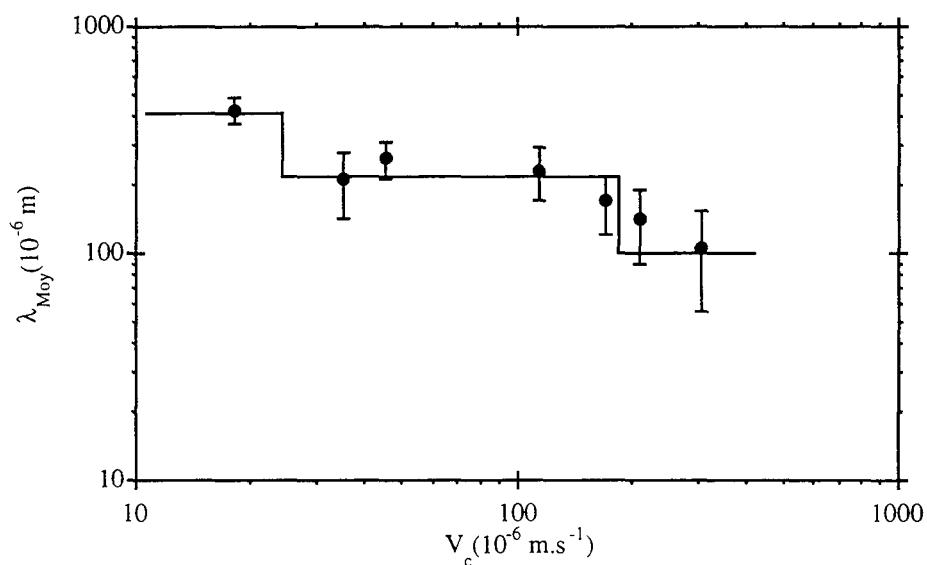


Figure 5.13 : Variation de l'espacement primaire moyen, λ_{Moy} , avec la vitesse de tirage loin de la sortie du canal, dans le cas d'une plaque de $100 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur.

5.3.3 Évolution locale de l'espacement dendritique primaire lors de l'apparition d'un nouvel axe primaire

Au cours d'expériences telles que celles présentées précédemment, il se crée et il disparaît des axes dendritiques primaires. Nous avons suivi l'évolution de l'espacement dendritique primaire de deux dendrites premières voisines suffisamment éloignées pour qu'un bras tertiaire issu de l'une d'elles se développe et engendre un nouvel axe primaire.

Nous avons distingué deux origines d'apparition d'un nouvel axe primaire :

- * Création à un joint de grains lorsque leur direction de croissance est divergente.
- * Création au coeur d'un grain lorsque la distance interdendritique est localement beaucoup plus importante que la moyenne.

La figure 5.14 illustre ces deux cas. Nous distinguons l'apparition d'un axe à un joint de grain en le notant c_1 , ou au coeur d'un grain en le notant c_2 . On appelle ici λ_0 l'espacement dendritique primaire mesuré entre les pointes des deux dendrites originelles et λ_t l'espacement dendritique primaire entre la "dendrite mère" et la "dendrite fille".

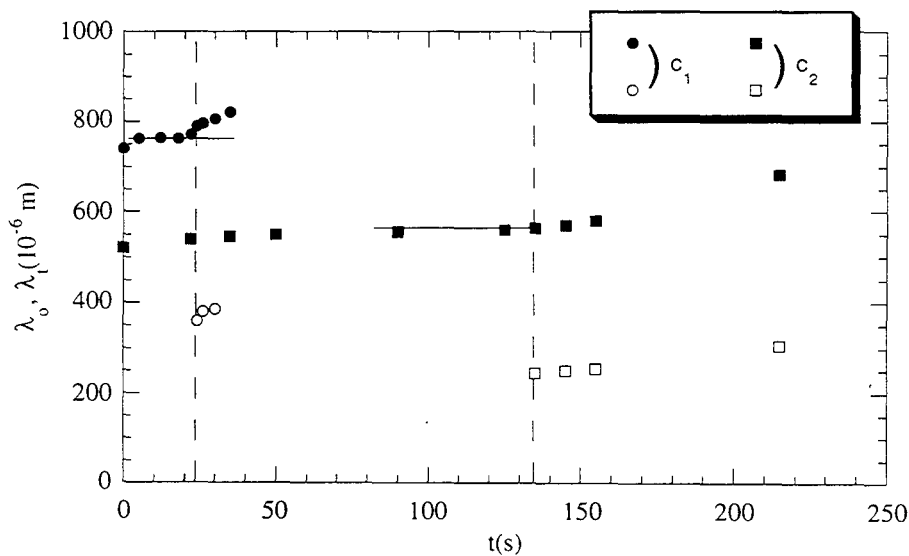


Figure 5.14 : Évolution locale de l'espacement primaire au cours de la création d'un nouvel axe primaire.

On remarque que, dans les deux cas, λ_0 est constant avant la création de la nouvelle dendrite. Par contre, lorsqu'un bras tertiaire apparaît et se transforme en axe primaire, λ_0 augmente avec une amplitude identique à celle de λ_1 . La présence d'une nouvelle dendrite entraîne une "distorsion" locale du réseau préexistant. Des observations identiques ont été faites par Han et col. ⁴⁶. Dans le cas présenté par ces auteurs, l'origine de la création d'un nouvel axe primaire résidait dans la présence d'une bulle dans le liquide interdendritique. Ce défaut oblige un réarrangement local de l'interface et facilite la création d'un nouvel axe primaire.

5.3.4 Influence de la vitesse de tirage et du gradient de température

Dans le paragraphe 3.1.3, lors de l'étude des échanges thermiques qui s'effectuent au sein des plaques d'alliage transparent, nous avons observé la forte variation du gradient de température avec la vitesse de tirage de l'échantillon. Aussi, pour la caractérisation de l'influence de la vitesse de tirage et du gradient de température sur l'espacement dendritique primaire, nous utilisons une plaque équipée d'un thermocouple de cuivre-constantan. L'enregistrement de la température permet de mesurer le gradient de température à l'interface au cours de chaque expérience, avec la méthode indiquée dans le chapitre 3. La plaque a une épaisseur de $200 \cdot 10^{-6}$ m et contient un alliage dont la composition en acétone déterminée par l'analyse thermique est environ $C_{\text{acétone}} = 5$ % massiques.

Trois séries d'expériences ont été réalisées. Les distances l , entre les zones chaude et froide, imposées sont : 10, 17 et $30 \cdot 10^{-3}$ m. Dans chaque cas, nous faisons varier la vitesse de tirage de 17 à $180 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹. L'enregistrement vidéo de ces expériences permet de prélever des images en différées sur lesquelles nous mesurons tous les espacements dendritiques primaires dans le but de calculer l'espacement dendritique moyen, λ_{Moy} .

La figure 5.15 montre les variations de $(\text{Log } \lambda_{\text{Moy}})$ avec $(\text{Log } G)$. Nous avons ajouté en gris des résultats obtenus par d'autres auteurs ^{42,12}. Somboonsuk et col. ⁴² ont utilisé une plaque de $150 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur contenant un alliage succinonitrile avec 5.5 mol % d'acétone pour $V_c = 8.3$ et $33 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹. Celle utilisée par Esaka ¹² a la même épaisseur mais l'alliage est du succinonitrile avec 1.3 % massiques d'acétone pour $V_c = 10$ et $65 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹. À vitesse de croissance constante, les points reportés sont alignés. On remarque que les résultats que nous avons obtenus pour une vitesse de croissance de $33 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹ sont en accord avec ceux de Somboonsuk et col.

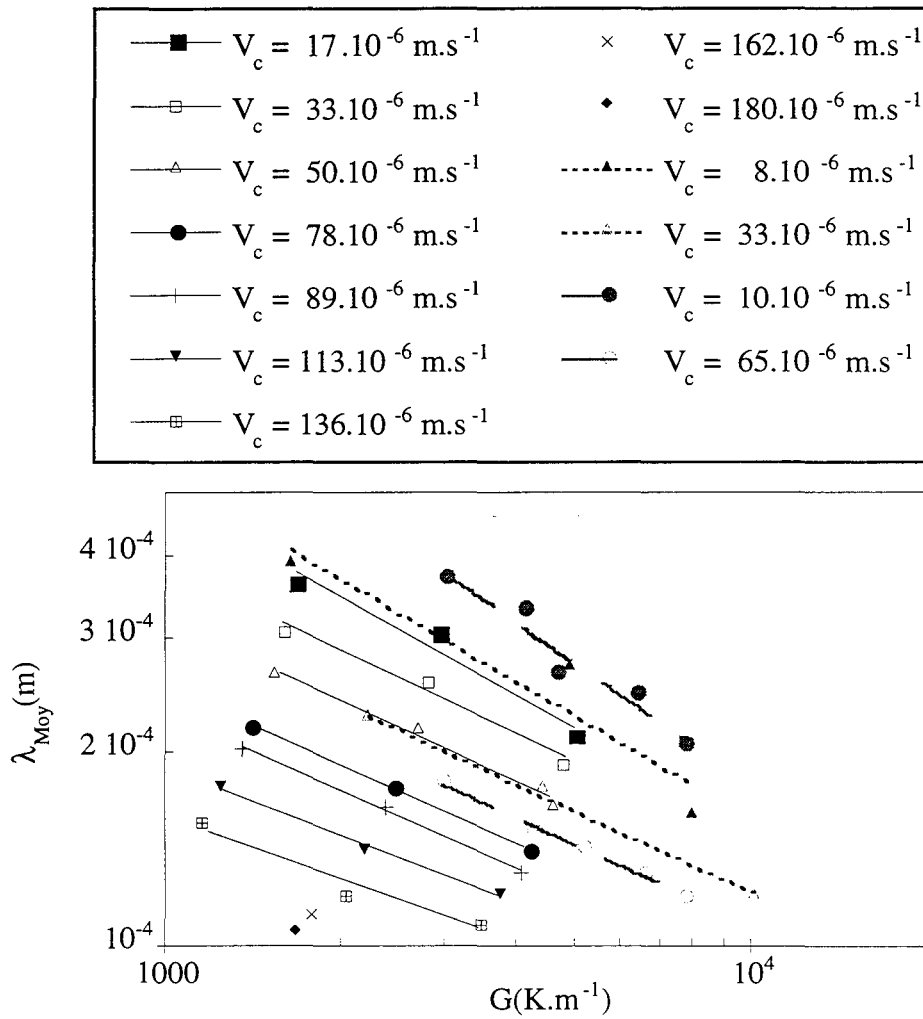


Figure 5.15 : Variation de l'espacement dendritique moyen, λ_{Moy} , en fonction du gradient de température, pour différentes vitesses de croissance.

Nous pouvons décrire ces résultats avec une relation de la forme suivante :

$$\lambda_{Moy} = A.G^{-a}$$

Le tableau 5.1 rassemble les résultats des estimations de A et a pour chacune des vitesses de croissance y compris ceux donnés par d'autres auteurs.

$V_c(10^{-6} \text{ m.s}^{-1})$	A	a
17	0.014222	0.49096
33	0.007411	0.42929
50	0.0057861	0.41991
78	0.0040491	0.40291
89	0.0036567	0.40065
113	0.0020987	0.34924
136	0.001533	0.32828
8.3 ¹²	0.01958	0.52289
33 ¹²	0.00566	0.41683
10 ⁴²	0.05346	0.61938
65 ⁴²	0.00494	0.41504

Tableau 5.1 : Résultats des calculs de a et A de la relation $\lambda_{Moy} = A.G^{-a}$ obtenus avec les données présentées sur la Figure 5.15.

La figure 5.16 montre les variations de l'exposant a en fonction de la vitesse de croissance, tirées du tableau 5.1.

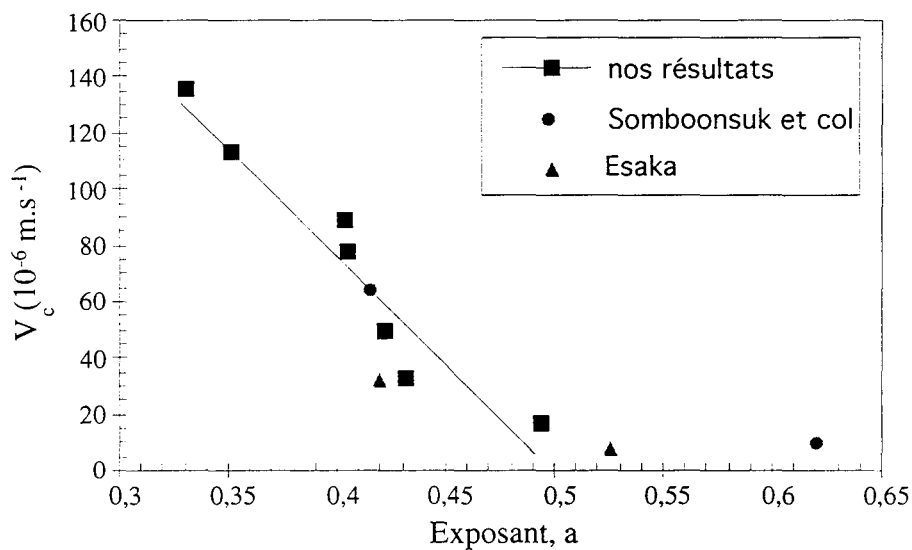


Figure 5.16 : Évolution de l'exposant a avec la vitesse de croissance.

On remarque une diminution continue de l'exposant a avec la vitesse de croissance. Les résultats d'Esaka sont assez proches des nôtres. L'observation de ceux issus des figures

présentées par Somboonsuk et col.⁴² montre que dans le cas d'une vitesse de $65 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ le point se trouve exactement sur la droite extrapolée à partir de nos expériences, alors que celui obtenu par ces auteurs à $V_c = 10 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ en est bien éloigné.

Sur la figure 5.17, nous montrons les variations de l'espacement dendritique primaire en fonction de la vitesse de croissance pour différents gradients de température. Comme précédemment, nous avons porté des résultats obtenus par d'autres auteurs^{42,12}.

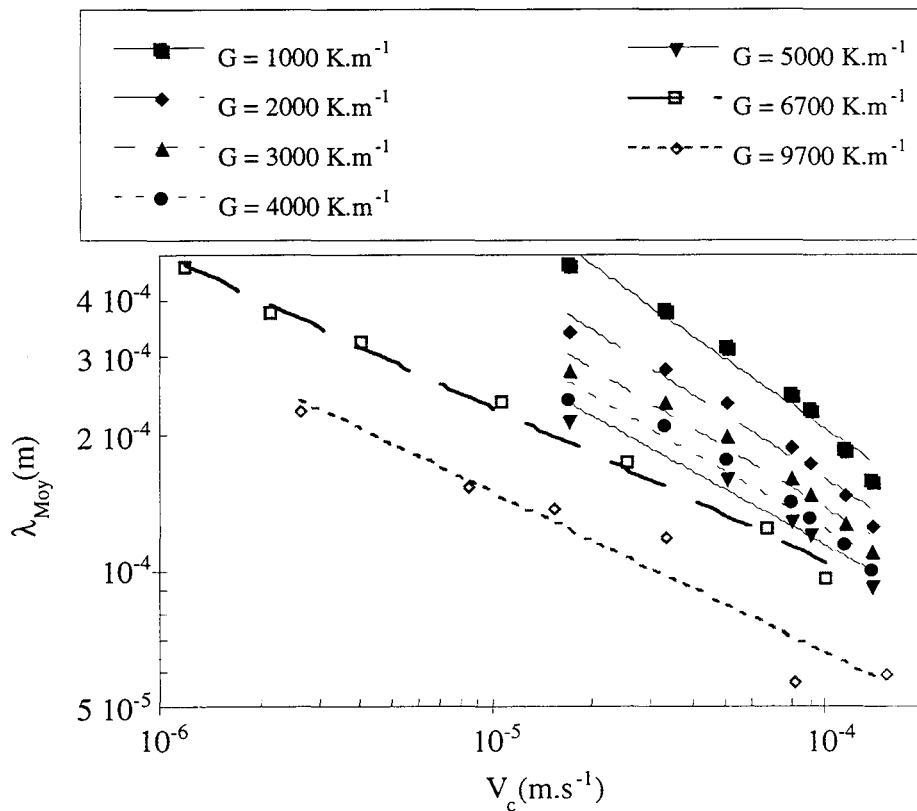


Figure 5.17 : Variation de l'espacement dendritique primaire avec la vitesse de croissance pour différents gradients de température. Les points portés pour $G = 6700 \text{ K.m}^{-1}$ ont été mesurés par Somboonsuk et col.⁴² et ceux où $G = 9700 \text{ K.m}^{-1}$ viennent d'Esaka¹².

Pour chaque gradient de température, les points reportés sur la figure sont alignés. Nous pouvons décrire ces résultats avec une relation de la forme suivante :

$$\lambda_{\text{Moy}} = B \cdot V_c^{-b}$$

Le tableau 5.2 rassemble les résultats des extrapolations de B et b pour chacun des gradients de température.

G(K.m ⁻¹)	B	b
1000	1.719 10 ⁻⁶	0.51999
2000	2.0249 10 ⁻⁶	0.47437
3000	2.3067 10 ⁻⁶	0.44418
4000	2.4951 10 ⁻⁶	0.42419
5000	2.597 10 ⁻⁶	0.41064
6700 ⁴²	4.4644 10 ⁻⁶	0.34296
9700 ¹²	1.25 10 ⁻⁶	0.358

Tableau 5.2 : Résultats des calculs de b et B de la relation $\lambda_{Moy} = B.V_c^{-b}$ obtenus avec les données présentées sur la Figure 5.17.

La figure 5.18 montre les variations de l'exposant b en fonction de la vitesse de croissance, les résultats sont extraits du tableau 5.2. Les points de Somboonsuk et col.⁴² et d'Esaka¹² qui y sont portés sont en accord avec la courbe extrapolée de nos valeurs. On note que comme l'exposant a, b diminue lorsque le gradient de température augmente.

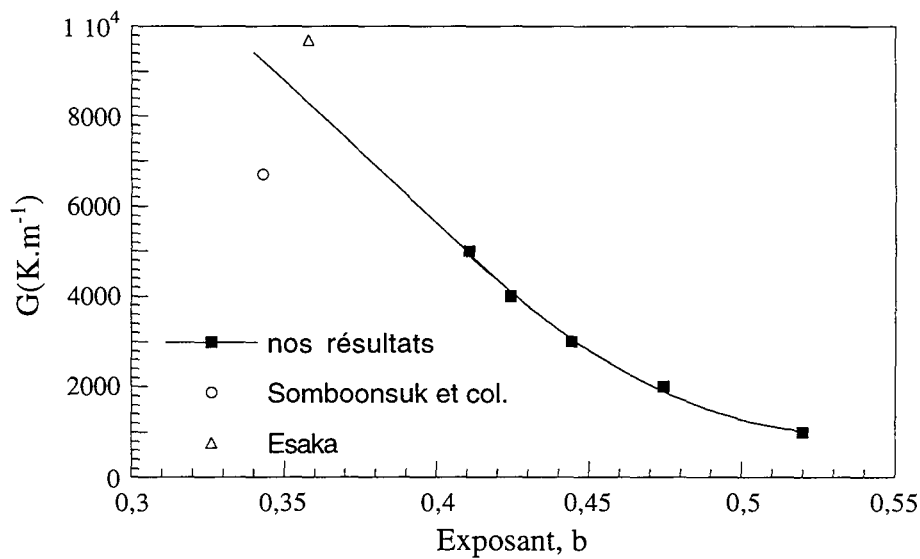


Figure 5.18 : Variation de l'exposant b avec le gradient de température.

Les résultats obtenus à partir des expériences réalisées à vitesse de croissance ou gradient de température constant nous ont permis de vérifier que l'espacement dendritique primaire dépend de ces deux paramètres de croissance.

Nous cherchons à définir les inconnus c , m , n de l'équation générale :

$$\lambda = c \cdot V_c^{-m} \cdot G^{-n} \quad [5.1]$$

Cela revient à chercher c , m et n tels que :

$$\text{Log } \lambda = \text{Log } c - m \cdot \text{Log } V_c - n \cdot \text{Log } G \quad [5.2]$$

Pour ce faire, à partir de chacune des fonctions définies dans les tableaux 5.1 et 5.2, et avec la collaboration de Monsieur Thierry VERDEL du Laboratoire de Mécanique des Terrains de l'École des Mines de Nancy, nous avons généré, grâce au logiciel Mathematica, une liste de points $\{x, y, z\}$ de façon à couvrir l'ensemble du domaine de variation. La figure 5.19 montre l'ensemble de ces points.

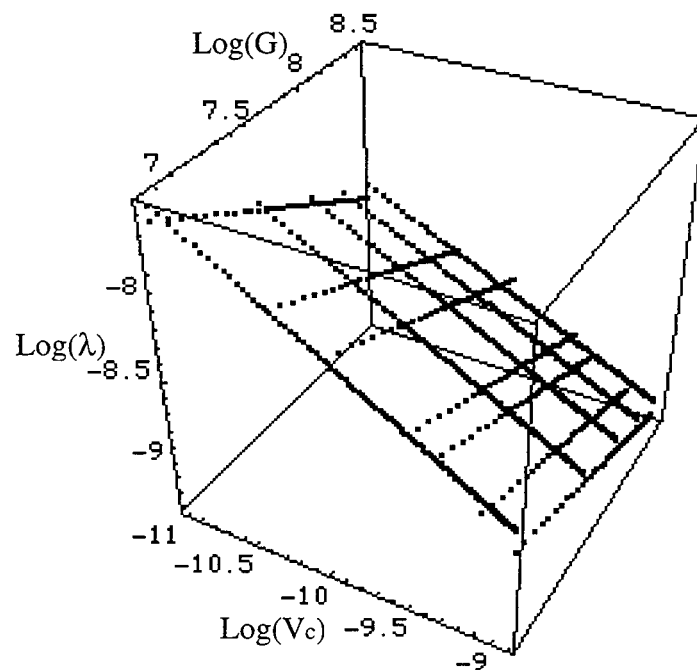


Figure 5.19 : Représentation en 3 dimensions dans un diagramme (Log, Log) des fonctions présentées dans les Tableau 5.1 et Tableau 5.2

Il faut trouver par une approximation aux moindres carrés le plan d'équation :

$$z = a_0 + a_1.x + a_2.y \quad [5.3]$$

où z vaut $\text{Log } \lambda$, x est $\text{Log } V_c$ et y est $\text{Log } G$. Mathématica nous donne le plan d'équation :

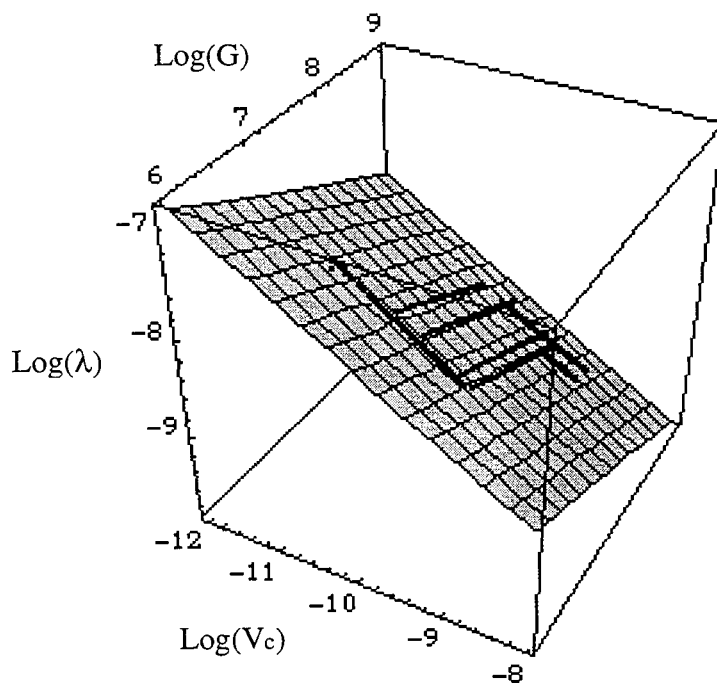
$$z = -9.9397 - 0.456154 x - 0.397413 y \quad [5.4]$$

d'où comme $\text{Log } c = -9.9397$ on déduit $c = 4,82218.10^{-5}$

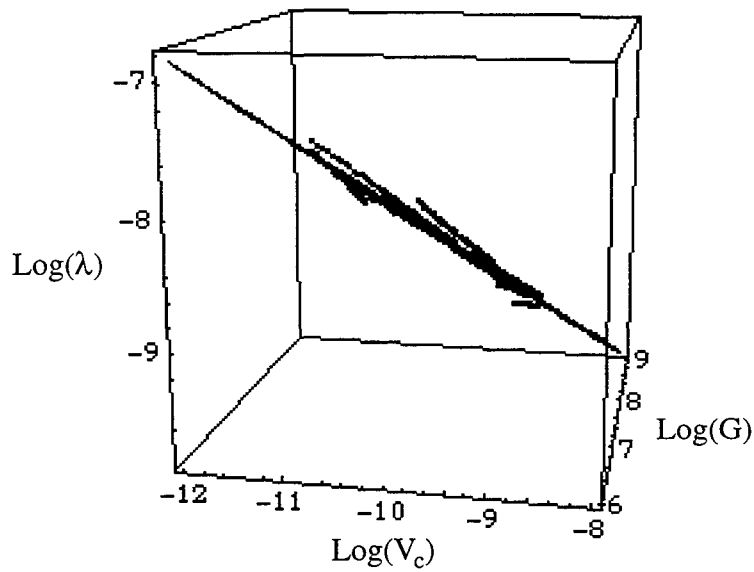
$m = 0.45$ et $n = 0.39$.

La figure 5.20 présente deux vues de ce plan et des points calculés à partir des fonctions déduites des expériences dans des diagrammes (Log, Log). Le graphique b montre que ces points sont uniformément répartis de part et d'autre du plan.

Enfin, sur la figure 5.21 nous montrons ces résultats dans un diagramme en coordonnées linéaires.



a)



b)

Figure 5.20 : Représentations en diagramme (Log, Log) du plan défini par Mathématica et des fonctions déduites des expériences.

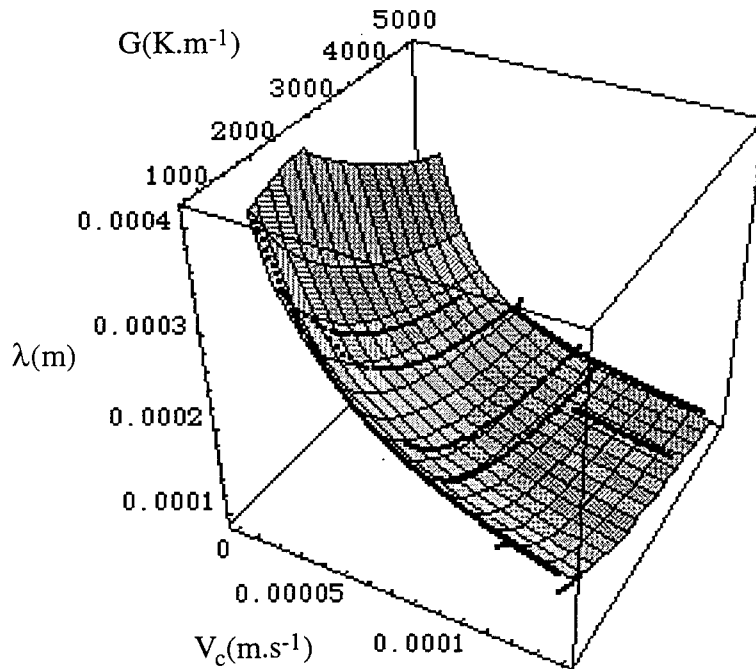


Figure 5.21 : Représentation en coordonnées linéaires du domaine de variation de l'espacement dendritique primaire en fonction de la vitesse de croissance et du gradient de température.

Par une approximation aux moindres carrés effectuée avec le logiciel Mathématique, nous estimons l'équation générale suivante de l'espacement dendritique primaire dans le domaine de variation étudié (vitesse de croissance et gradient de température), et dans le cas de la plaque utilisée au cours de cette étude :

$$\lambda = 4.82.10^{-5} V_c^{-0.46} G^{-0.39}$$

[5.5]

Le coefficient constant de cette expression dépend entre autres de la concentration en acétone de l'alliage. Nous verrons dans un prochain paragraphe que la valeur de ce coefficient dépend aussi de l'épaisseur de la paroi.

5.4 Observations complémentaires relatives à la formation et l'évolution des monocouches dendritiques

Au cours de ce paragraphe, nous allons explorer les différents facteurs qui peuvent influencer la formation d'un réseau dendritique. Nous nous intéressons à l'influence de l'épaisseur de la paroi sur la structure solidifiée puis à l'évolution de celle-ci lors de changements de vitesse plus ou moins importants. Enfin, on observera l'importance du réseau dendritique sous-jacent dans le cristal initial sur celui qui se forme par épitaxie.

5.4.1 Effet de la distance entre les plaques

Pour cette étude, nous avons utilisé cinq plaques d'épaisseurs 75, 100, 100, 200 et 400.10⁻⁶ m. Les deux premières, non instrumentées, ont un alliage similaire contenant environ 0.2 % massiques d'acétone. Les trois autres ont 6.5 % massiques d'acétone. La figure 5.22 montre l'évolution au cours du temps de l'espacement dendritique primaire moyen dans les plaques de 75 et 100.10⁻⁶ m pour une vitesse de croissance de 90.10⁻⁶ m.s⁻¹.

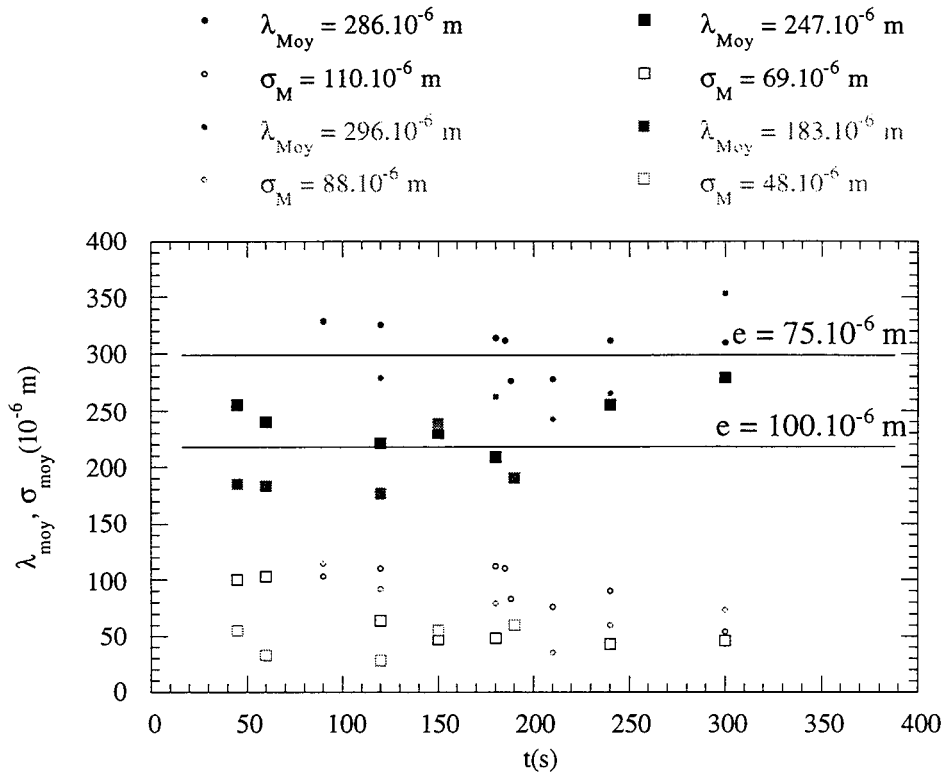


Figure 5.22 : Variation de l'espacement dendritique primaire moyen et de l'écart quadratique moyen dans le cas de cellules de 75 et 100.10⁻⁶ m d'épaisseur et pour $V_c = 90.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Sur cette figure, on a reporté les résultats obtenus lors de deux expériences identiques pour chacune des deux plaques. La taille des points, petite pour la plaque de 75.10⁻⁶ m d'épaisseur et plus grande pour celle de 100.10⁻⁶ m, permet de différencier leur origine. Bien que les écarts quadratiques moyens soient importants, il apparaît que l'espacement dendritique primaire moyen est sensiblement plus élevé pour la plaque de moindre épaisseur.

Ont été reportés, sur la figure 5.23, les résultats d'expériences avec des plaques instrumentées de 100, 200 et 400.10⁻⁶ m contenant un alliage succinonitrile avec 6.5 % massiques d'acétone. On ne peut pas dans ce cas distinguer une influence de l'épaisseur de la paroi. Somboonsuk et col. ⁴² ont montré, à partir de résultats d'expériences effectuées avec des plaques d'épaisseurs comprises entre 50 et 500.10⁻⁶ m, que le réseau subit l'influence de l'épaisseur de la paroi lorsque celle-ci est inférieure à 150.10⁻⁶ m. Ceci est en accord avec nos observations. Par contre, notre étude a été faite avec une vitesse de croissance de 90.10⁻⁶ m.s⁻¹ et Somboonsuk et col. n'avaient pas observé de variation notable de l'espacement primaire avec l'épaisseur lorsque $V_c > 30.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

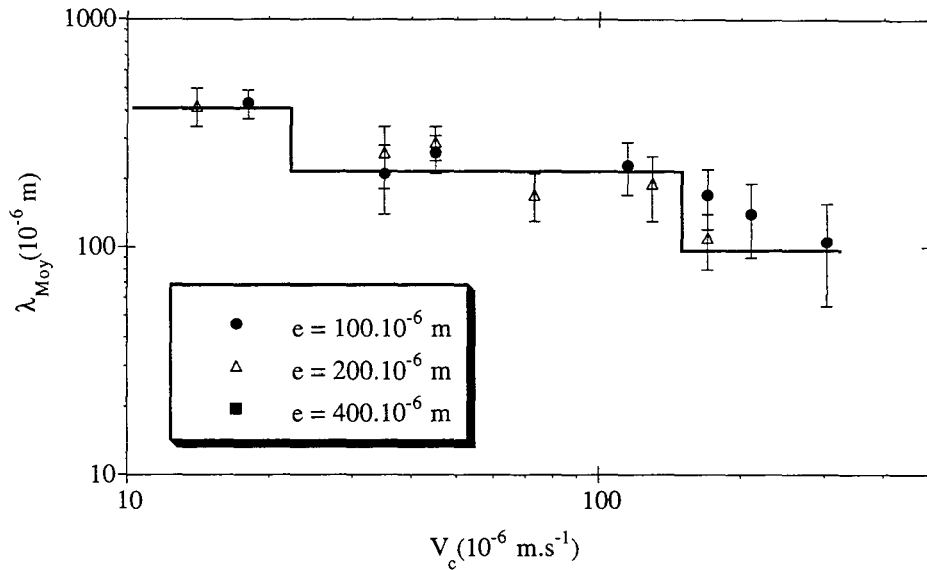


Figure 5.23 : Variation de l'espacement dendritique primaire dans le cas de plaques de 100, 200 et $400 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ d'épaisseur.

Nous avons vu précédemment que l'espacement dendritique primaire est fonction de la vitesse de croissance, du gradient de température et de la concentration. Nul doute que, dans le facteur constant de l'expression [5.5] de λ définie auparavant, l'épaisseur de la plaque doit aussi être prise en compte.

Au cours de cette étude, nous avons, d'autre part, utilisé une plaque de $350 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ d'épaisseur. Des résultats auxquels nous ne nous attendions pas ont été observés pour une vitesse de tirage de $210 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Ils sont reportés sur la figure 5.24.

L'étude du film expérimental montre que la vitesse de croissance est inférieure à la vitesse de tirage durant les 60 premières secondes. Le front de solidification se rapproche de la zone froide. Subitement, pour $60 < t < 70 \text{ s}$, la vitesse de l'interface devient égale à la vitesse de tirage. Le réseau dendritique est déstabilisé et l'on observe la disparition de nombreux axes, et de fait, une augmentation très importante de l'espacement primaire. Nous supposons que la brutale adaptation de la vitesse de croissance à la vitesse de tirage imposée est due à un changement de régime des transferts thermiques dans la plaque. Ce phénomène a "immobilisé" l'interface dans une zone où le gradient de température est très faible comme l'ont montré les enregistrements de température. Ceci entraîne l'augmentation de l'espacement primaire.

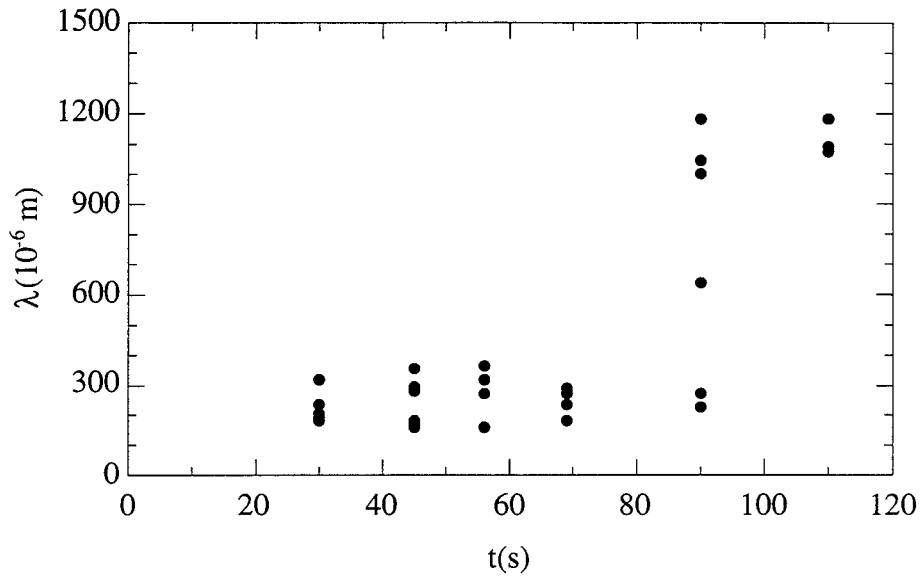


Figure 5.24 : Variation de l'espacement primaire dans le cas d'une lame de 350.10^{-6} m d'épaisseur et d'une vitesse de tirage de 210.10^{-6} m.s⁻¹.

5.4.2 Effet de la désorientation des grains

Avec une plaque de 75.10^{-6} m d'épaisseur, nous avons étudié le réseau de deux grains, le premier ayant des axes dendritiques primaires orientés suivant la direction de tirage, et le second désorientés de 15° par rapport à cette direction. De nombreuses expériences, à des vitesses de croissance différentes, ont été effectuées. La figure 5.25 regroupe les λ_{Moy} calculés à partir de chacune d'elles dans les deux grains. On constate que la désorientation des axes primaires par rapport à la vitesse de tirage provoque une importante augmentation de l'espacement dendritique primaire moyen.

Nos résultats sont en accord avec ceux obtenus par différents auteurs ^{63,64}.

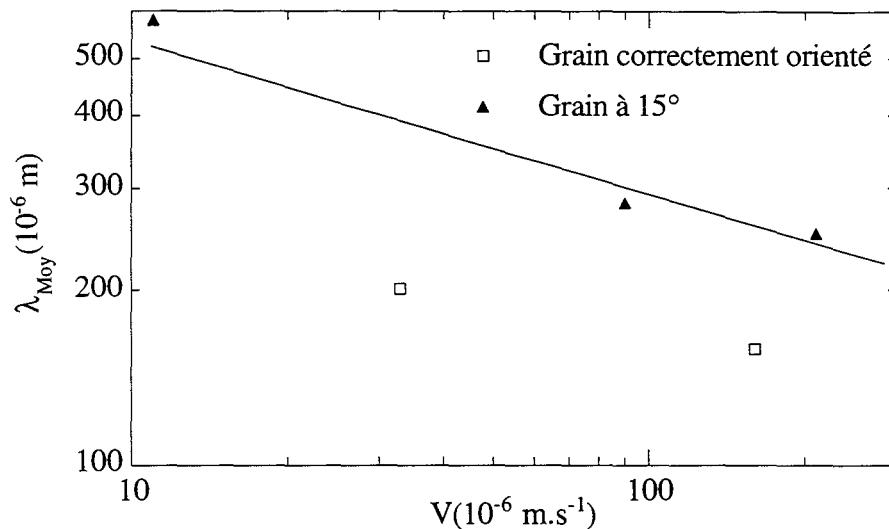


Figure 5.25 : Influence de l'orientation, par rapport à la vitesse de tirage, des axes primaires dans un grain sur les espacements interdendritiques primaires.

5.4.3 Influence d'un changement de la vitesse de tirage

Nous étudions dans ce paragraphe l'effet de changements de la vitesse de tirage sur les paramètres de la structure colonnaire dendritique du réseau. Les expériences, dont les résultats sont présentés, ont été réalisées avec une plaque de $150 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ d'épaisseur. Nous avons mené nos investigations en faisant d'une part varier les amplitudes ΔV des changements de vitesse, d'autre part leur signe, augmentation ou diminution de la vitesse.

Si le rayon de courbure à la pointe de la dendrite et l'espacement entre bras secondaires s'adaptent très rapidement au changement de vitesse ⁵³, il n'en est pas de même pour l'espacement interdendritique primaire. La difficulté rencontrée lors de cette étude réside dans les définitions de l'état transitoire et de l'état stationnaire. L'état transitoire est le temps d'adaptation nécessaire au réseau pour que sa structure prenne en compte le changement de vitesse. Il est matérialisé par un changement du rayon de la pointe de la dendrite, de l'espacement secondaire, de la vitesse de croissance donc du gradient de température et, le cas échéant, de la distance entre bras dendritiques primaires premiers voisins. Nous considérons que l'état stationnaire est rétabli, après un changement de vitesse, lorsque la vitesse de croissance est à nouveau égale à la vitesse de tirage. Cependant nous avons voulu observer l'évolution du réseau au delà de ce retour à l'équilibre. Aussi, nous avons réalisé des expériences avec des sauts de vitesse de même amplitude mais avec un temps de maintien différent.

5.4.3.1 Augmentation de la vitesse de croissance, sauts de faible amplitude

À la figure 5.26, nous montrons l'évolution de l'espacement primaire au cours du temps lors de deux expériences identiques. La vitesse de tirage est maintenue à $12 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ durant 420 s puis elle augmente de $\Delta V = 4 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ toutes les 60 s jusqu'à $72 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Le gradient de température moyen est de 2000 K.m^{-1} .

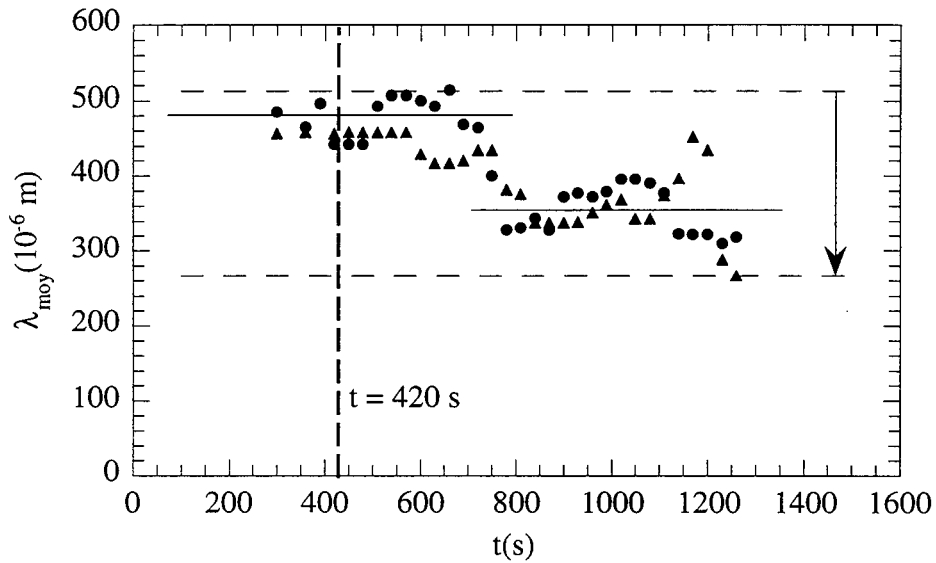


Figure 5.26 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors d'une augmentation lente de la vitesse de tirage.

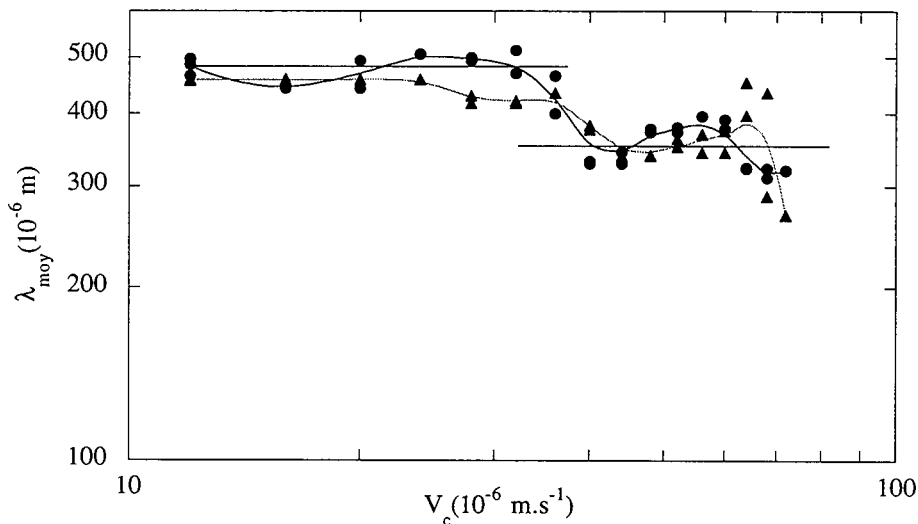


Figure 5.27 : Évolution de l'espacement primaire moyen avec la vitesse de croissance lors d'expériences réalisées avec $G = 2.000 \text{ K.m}^{-1}$ et un temps de maintien de 60 s.

La figure 5.27 montre les mêmes valeurs de l'espacement dendritique primaire moyen que celles de la figure 5.26, mais reportées en fonction de la vitesse de croissance.

Sur la figure 5.26, l'enveloppe des points des expériences fait apparaître une décroissance de l'espacement primaire moyen au cours du temps. On met en évidence, à la figure 5.27, une diminution brutale de l'espacement primaire lorsque V_c passe de 36 à $40.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Nous avons indiqué pour chaque expérience une courbe lissée qui matérialise les variations de λ_{moy} avec V_c ainsi que les deux niveaux de valeurs.

Dans les expériences suivantes, dont les résultats sont montrés à la figure 5.28, la vitesse de tirage initiale est de $12.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, le premier changement de vitesse a lieu au bout de 360 s , ΔV est égal à $8,16$ ou $24.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, le temps de maintien est de 180 s pour chacune des vitesses et $G = 3000 \text{ K.m}^{-1}$.

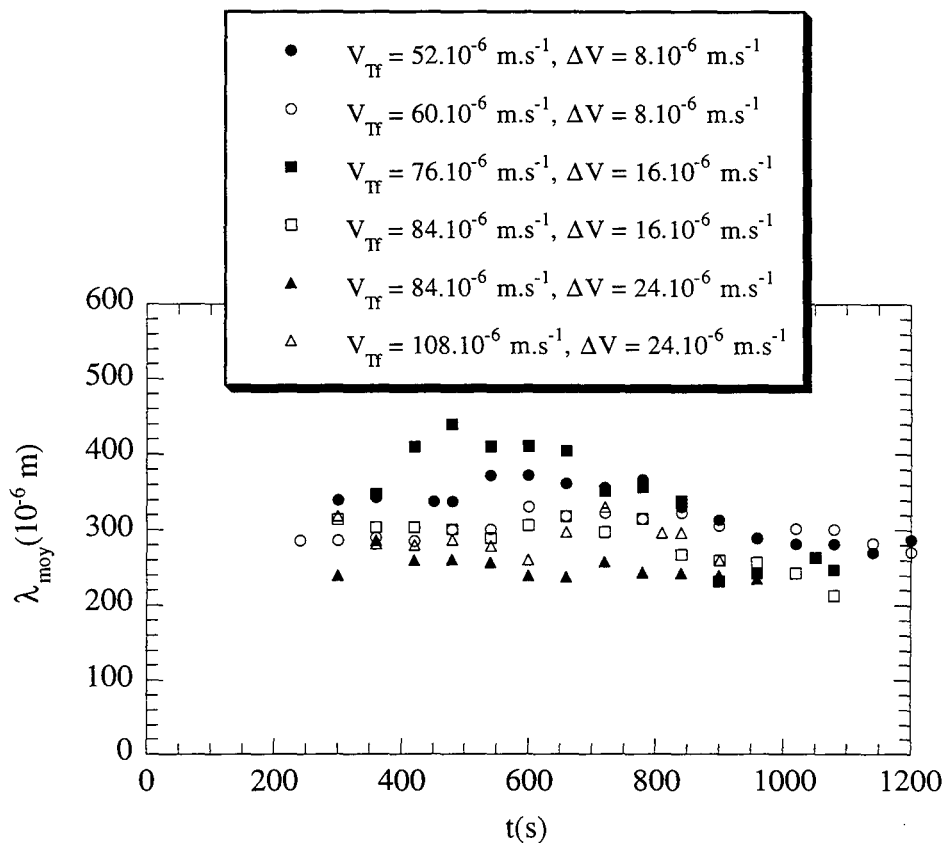


Figure 5.28 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors de changements de la vitesse de tirage d'amplitude de $8,16$ ou $24.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ pour un temps de maintien de 180 s et $G = 3000 \text{ K.m}^{-1}$.

Nous avons indiqué à coté de chaque repère de courbe la vitesse de tirage finale V_{TF} et l'amplitude de saut ΔV . On observe que les valeurs initiales de λ_{moy} sont nettement plus faibles que celles de la figure 5.26, c'est une mise en évidence de l'effet du gradient de température sur l'espacement dendritique primaire. D'autre part, les évolutions des espacements primaires moyens sont très différentes. L'enveloppe des points se réduit et tend, à $t > 900$ s, vers une dispersion comparable à celle observée précédemment, loin de l'extension, sans changement de vitesse. Par contre, l'amplitude du saut de vitesse, pour le domaine exploré ici, ne semble pas avoir d'influence sur l'évolution du réseau. Pour suivre plus aisément l'évolution de l'espacement dendritique primaire au cours de ces expériences, nous avons reporté ces résultats sur la figure 5.29 dans un diagramme (Log, Log) en fonction de la vitesse.

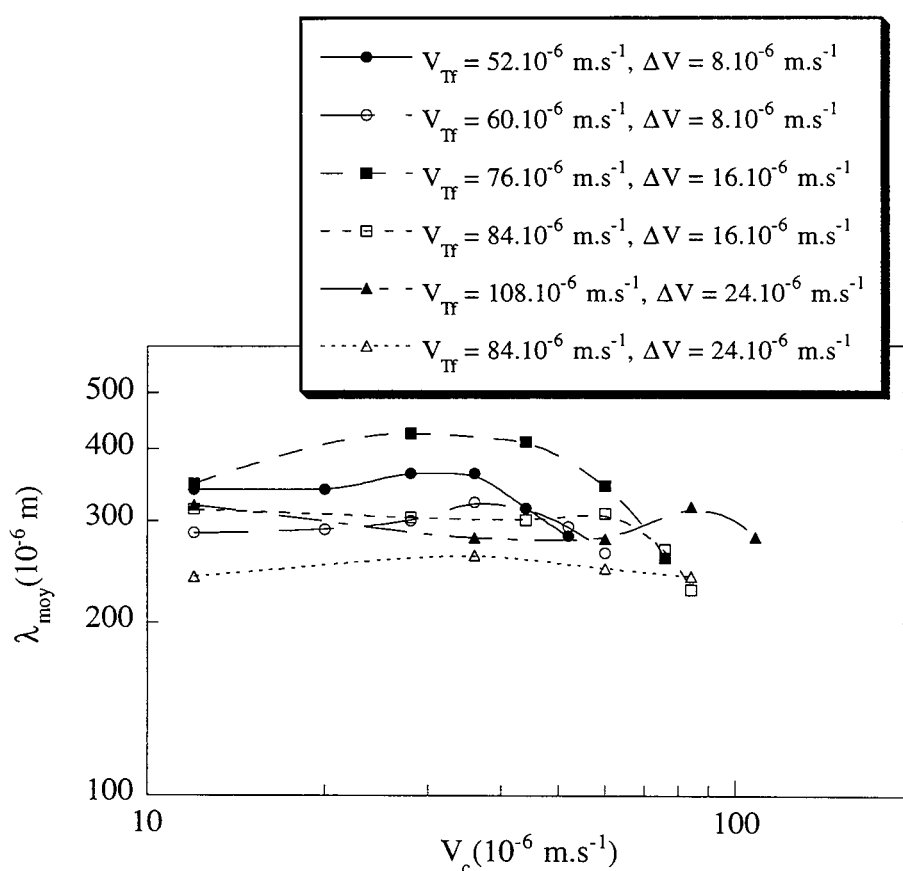


Figure 5.29 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors de changement de vitesses de tirage d'amplitude de $8,16$ ou 24.10^{-6} $m.s^{-1}$ pour un temps de maintien de 180 s.

Le chemin suivi, pour atteindre la valeur mesurée en fin d'expérience, est différent même dans le cas d'expériences avec une amplitude de saut identique. Ainsi, nous avons observé une bonne reproductibilité des résultats au cours d'expériences réalisées sans changement de vitesse, dans un état quasi stationnaire. Ici dans un état dynamique, la reproduction des résultats d'une

expérience à l'autre réalisées dans des conditions macroscopiques de croissance identiques, n'est pas acquise. La dispersion des mesures est aussi plus importante.

5.4.3.2 Augmentation de la vitesse de croissance, sauts de grande amplitude

Des expériences ont été effectuées avec des sauts de vitesse supérieurs à $40 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Les résultats d'une d'entre elles sont présentés sur la figure 5.30. Malgré l'augmentation importante de l'amplitude des sauts de vitesse, par rapport à celle utilisée au paragraphe précédent, l'espacement primaire moyen ne varie pas si l'on tient compte de l'écart type qui est de l'ordre de $60 \cdot 10^{-6} \text{ m}$.

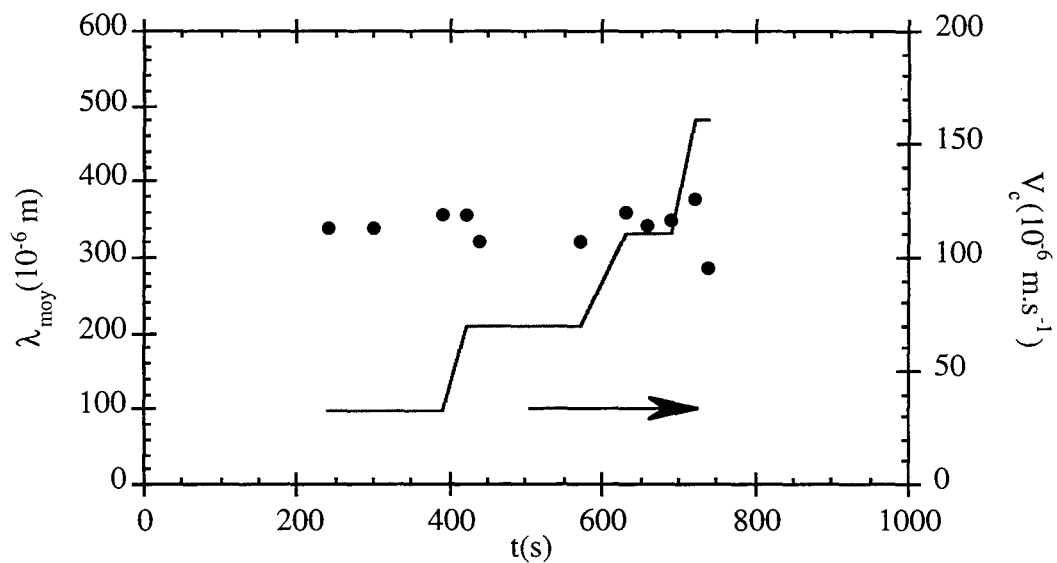


Figure 5.30 : Évolution de l'espacement dendritique moyen avec des sauts de vitesse d'amplitude supérieure à $40 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Pour conclure sur l'effet de l'augmentation de la vitesse par sauts d'amplitude variable, nous présentons, avec la figure 5.31, l'évolution de λ_{moy} lors d'une expérience au cours de laquelle la vitesse est passée de $30 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ à $230 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. On remarque qu'avant le changement de vitesse l'espacement dendritique primaire est d'environ $400 \cdot 10^{-6} \text{ m}$. Après, il est divisé par deux. L'évolution de l'espacement primaire moyen est symbolisée sur la figure par les traits pointillés.

Nous avons vu dans le paragraphe 5.1.2.3 la relation qui lie l'espacement primaire à la vitesse de croissance :

$$\lambda = A V^{-a} \text{ avec } a \cong 0.4. \quad [5.6]$$

En reportant dans cette équation la valeur des vitesses appliquées, on retrouve bien le facteur deux entre l'espacement primaire induit par la vitesse de $30.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ et celui engendré par la vitesse de $230.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

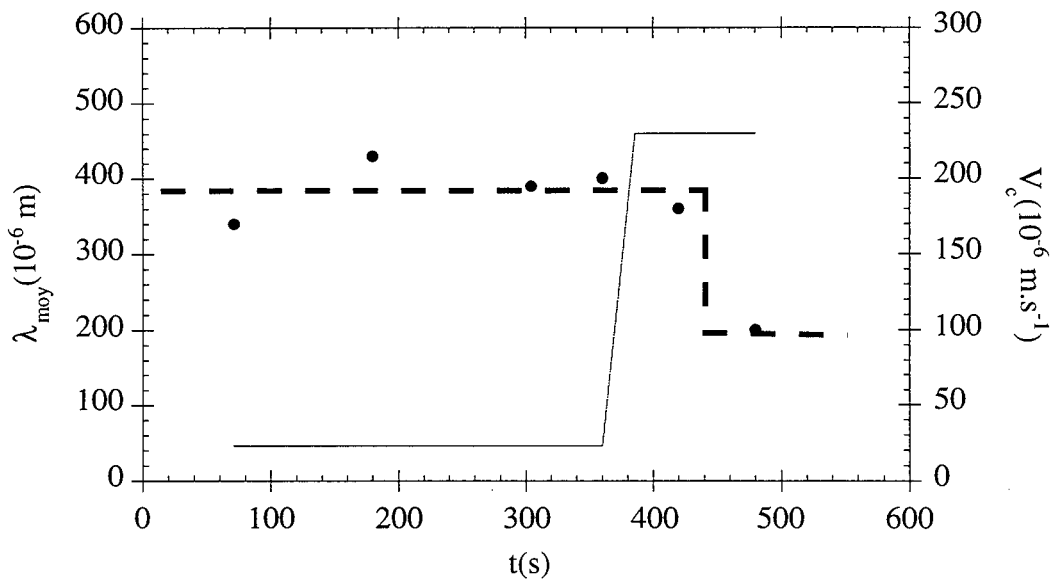


Figure 5.31 : Évolution de l'espacement primaire moyen lors d'un saut de vitesse d'amplitude $200.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Il est remarquable que lorsque l'augmentation de la vitesse de croissance s'effectue par paliers dont les niveaux sont plus ou moins éloignés, on n'observe pas ou peu d'évolution de l'espacement primaire moyen même dans les cas où, voir les figures 5.27 et 5.29, les vitesses de croissance initiales et finales sont telles que, d'après la relation [5.5], la distance entre premiers voisins devrait être divisée par 2. Il faut apporter une perturbation considérable et brutale des conditions macroscopiques de croissance pour que le changement de vitesse ait une influence notable sur la distance entre bras dendritiques primaires premiers voisins.

5.4.3.3 Effets cumulés de l'épaisseur de la plaque et des changements de vitesse

Des expériences similaires à celles présentées précédemment ont été réalisées avec une plaque de $350 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur. La figure 5.33 présente les résultats tirés de l'étude du film expérimental de ces expériences. Dans un premier temps, sur le graphe a, les sauts de vitesse imposés sont de $40 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹. Comme nous l'avons déjà observé, les changements de vitesse n'ont pas d'influence sur l'espacement primaire moyen. Par contre, pour une vitesse de croissance faible, inférieure à $50 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹, le réseau n'est plus compris dans un unique plan dendritique mais, dans deux, au moins, superposés. Le cliché de la figure 5.32 tiré d'une expérience réalisée avec une vitesse de croissance de $10 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹ montre la présence de deux niveaux de dendrites. Toutes les fois où ce phénomène est mis en évidence, nous avons noté qu'un plan de dendrites est plus stable que l'autre dans lequel se succèdent des apparitions et disparitions d'axes primaires. Dès que la vitesse de croissance est supérieure à $30 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹ il n'est plus possible de distinguer les différents plans de croissance et nous ne pouvons affirmer qu'ils subsistent.

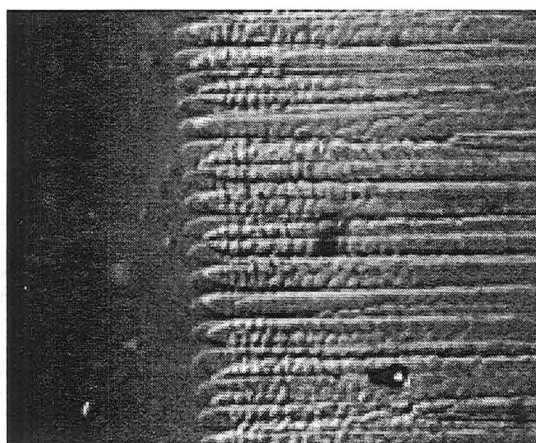


Figure 5.32 : Mise en évidence de la présence de deux plans de croissance dendritique dans une plaque de $350 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur solidifiée avec une vitesse de $30 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹.

Les courbes b et c de la figure 5.33 donnent les évolutions de l'espacement primaire moyen lors de changements importants de la vitesse de croissance. Il apparaît que, pour ces conditions de croissance, λ_{moy} augmente de manière significative avec la vitesse. Il se forme un réseau de dendrites dont l'espace entre bras primaires premiers voisins est supérieur à 10^{-3} m et avec une zone pâteuse profonde. Ce phénomène a été observé précédemment dans des expériences réalisées avec une vitesse de tirage constante égale à $210 \cdot 10^{-6}$ m.s⁻¹ (voir la figure 5.24). C'est par conséquent plus la vitesse de tirage appliquée que le saut de vitesse qui est à l'origine de ce phénomène.

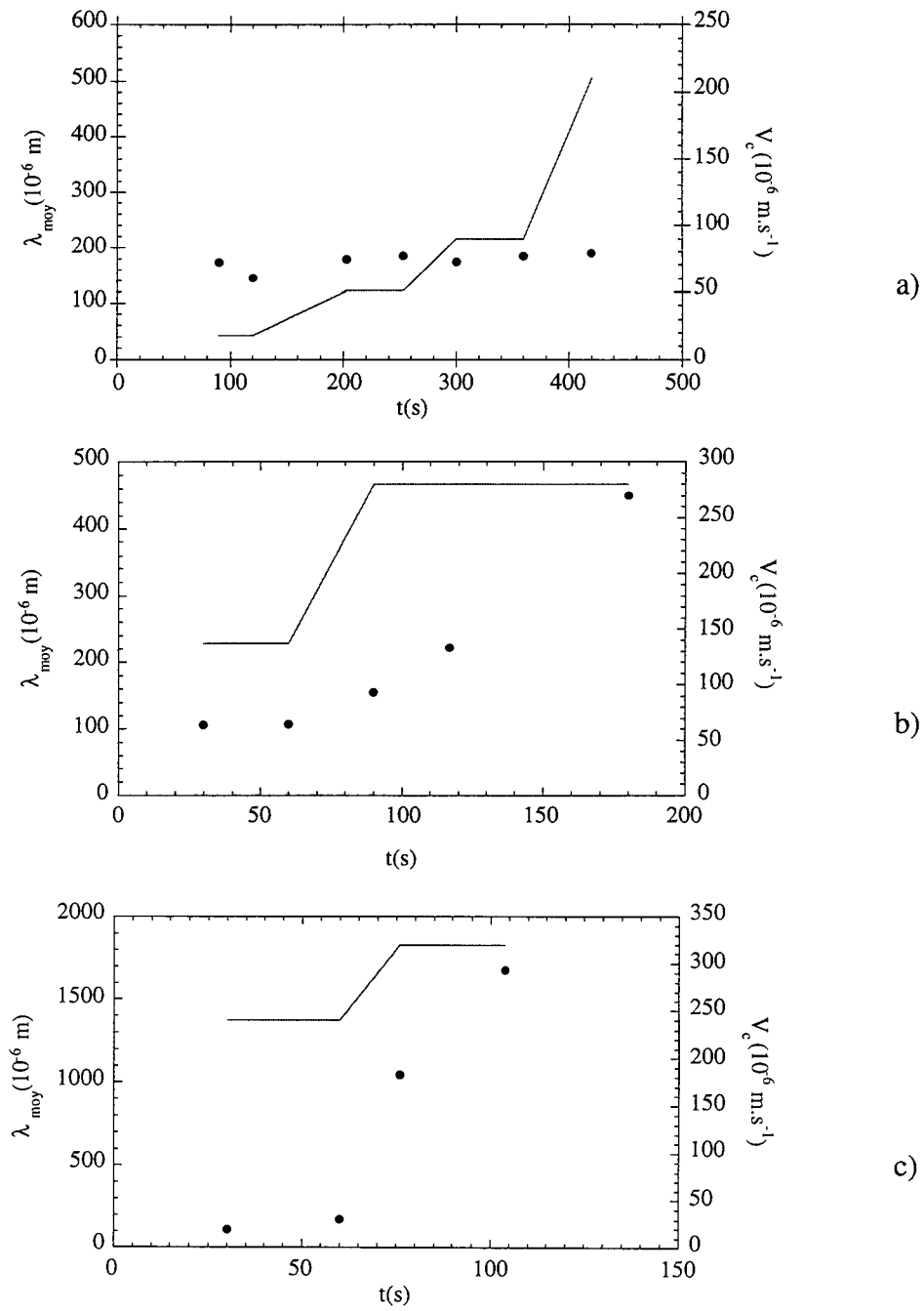


Figure 5.33 : Évolution de l'espace primaire moyen au cours du temps avec des changements importants de la vitesse de croissance dans une plaque de $350 \cdot 10^{-6}$ m d'épaisseur.

5.4.3.4 Diminution de la vitesse de croissance, sauts de faible amplitude

Nous avons tout d'abord imposé des sauts, positifs, de vitesse de $24 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ jusqu'à un maximum de $60 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Après un maintien de 240 s, des sauts négatifs d'amplitude $4 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ sont appliqués. La figure 5.34 montre la variation de l'espacement primaire moyen au cours du temps lors de deux expériences semblables. Il est notable que l'espacement dendritique primaire moyen au début de l'expérience représentée par des triangles noirs soit nettement plus petit que celui de l'expérience dont les résultats sont portés en gris. La plaque utilisée pour cette étude n'étant pas munie de canal de sélection, l'origine de cette importante différence vient sans doute de l'influence du réseau sous-jacent lorsque le début de la croissance s'effectue en épitaxie sur un solide partiellement refondu. Ce point est étudié dans un prochain paragraphe. Bien que les distances entre bras primaires premiers voisins sont différentes au début des deux expériences, les λ_{moy} sont identiques lorsque la vitesse de croissance a atteint son maximum. Les diminutions successives de la vitesse semblent avoir une influence très faible sur λ_{moy} qui n'augmente pas de façon significative.

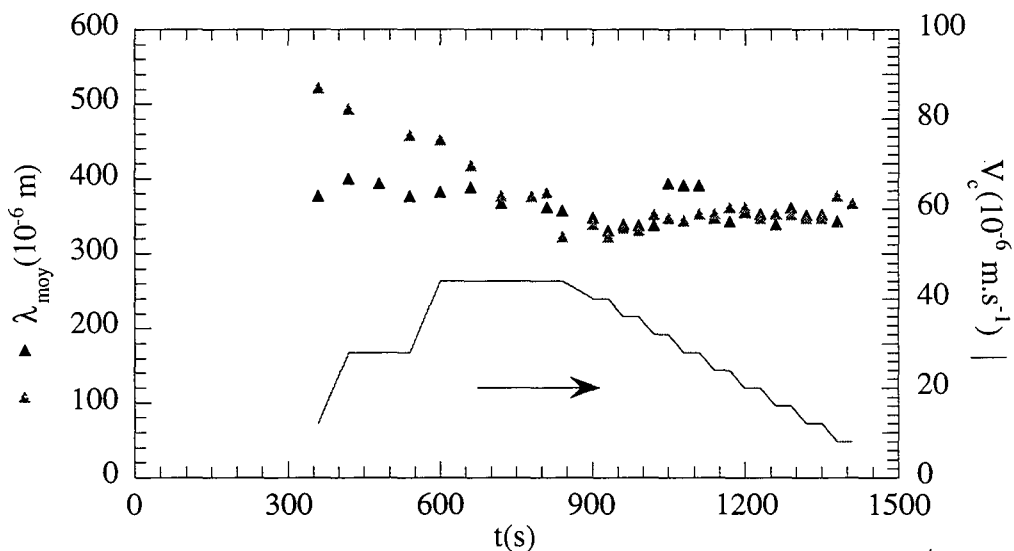


Figure 5.34 : Variation de l'espacement primaire moyen lors de l'augmentation puis de la diminution de la vitesse croissance.

Une représentation de ces résultats dans laquelle l'espacement primaire moyen est porté en fonction de la vitesse de croissance met en évidence une évolution sous la forme d'un hystérésis. Ce type de comportement a été observé par d'autres auteurs ^{53, 101} dans le cas de l'évolution du rayon de courbure de la pointe de la dendrite en fonction de la vitesse de croissance.

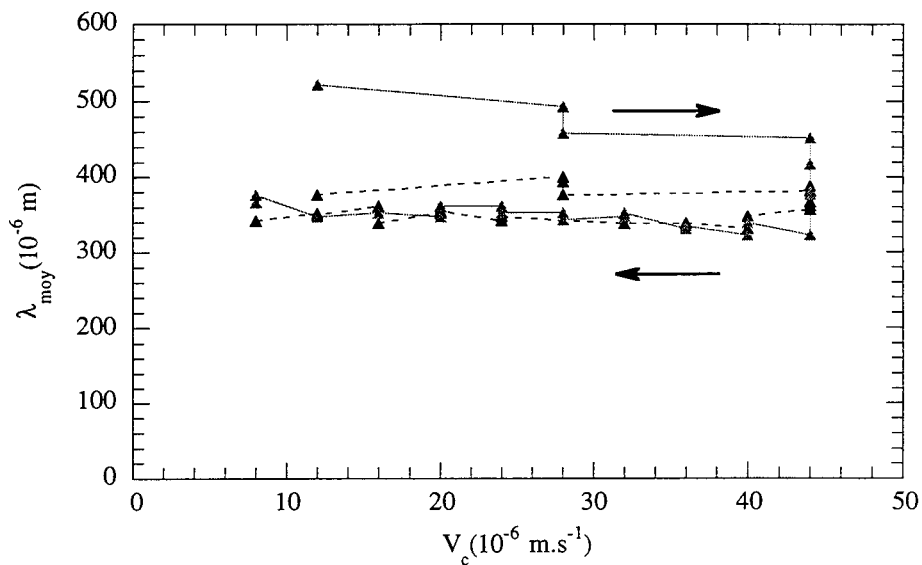


Figure 5.35 : Évolution de l'espacement dendritique primaire en fonction de la vitesse de croissance.

5.4.4 Étude de l'influence du réseau sous-jacent dans le cas d'une croissance en épitaxie sur un solide partiellement refondu

Au cours des différentes études menées pour caractériser l'effet des changements de vitesse sur le réseau, nous avons noté des différences importantes entre les espacements primaires mesurés pour des vitesses de croissance identiques. La figure 5.29 en a présenté un exemple. Nous nous sommes interrogés sur l'origine de cet écart. Pour tenter d'y répondre, la procédure expérimentale suivante est mise en place. La cellule est solidifiée à la vitesse de croissance de 33.10^{-6} m.s⁻¹. Puis 5 expériences sont réalisées. Durant la première et la dernière, la vitesse de croissance est de 33.10^{-6} m.s⁻¹. Elle est de 200.10^{-6} m.s⁻¹ pour les expériences 2, 3 et 4. La partie importante de ce protocole réside dans la procédure expérimentale mise en oeuvre entre chaque expérience. La limite de la longueur de la plaque impose un retour en arrière de celle-ci après chaque manipulation. Nous prenons soin que l'interface solide-liquide, qui se crée lors de la stabilisation thermique à V_T nulle, soit positionnée sur un solide formé au cours de l'expérience précédente.

La figure 5.36 présente les évolutions de l'espacement dendritique moyen mesuré dans ces 5 expériences. Les symboles pleins sont relatifs aux espacements primaires, les vides aux écarts types.

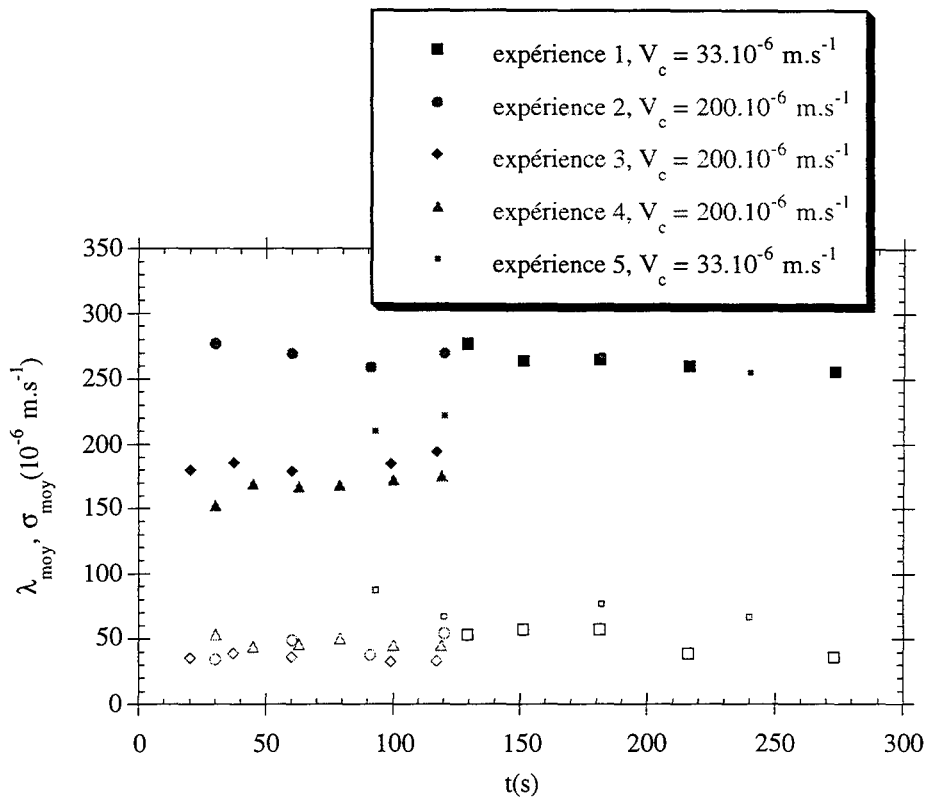


Figure 5.36 : Étude de l'effet du réseau sous-jacent, évolutions de l'espacement primaire moyen avec le temps.

Pour mettre en évidence plus clairement, le phénomène rencontré lors de cette étude, nous avons reporté dans le tableau 5.3 les λ_{Moy} calculés à partir des expériences dont les résultats sont présentés à la figure 5.36. On observe que l'expérience n°2, qui est effectuée avec une vitesse de croissance de $200.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ à partir d'un cristal solidifié à $33.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$, donne un réseau dendritique dont l'espacement primaire moyen est comparable à celui solidifié lors de l'expérience précédente. Il apparaît une diminution de λ_{Moy} estimé lors des manipulations 3 et 4. Par contre, le réseau formé lors de l'expérience 5 a une distance entre bras primaires premiers voisins assez proche en fin d'expérience de celle estimée lors de l'expérience 1.

Expérience	$V_c (10^{-6} \text{ m.s}^{-1})$	$\lambda_{\text{Moy}} (10^{-6} \text{ m})$
1	33	267
2	200	271
3	200	195
4	200	167
5	33	254

Tableau 5.3 : Bilan des λ_{Moy} calculés au cours des 5 expériences.

Ces expériences ont mis en évidence l'influence significative du réseau sous-jacent dans le cas de croissance cristalline en épitaxie sur un solide partiellement fondu. Elles montrent que la disparition d'un axe primaire se produit plus facilement qu'une création.

Chapitre 6

ÉTUDE DES RESEAUX DENDRITIQUES EN PAROIS MINCES DE MONOCRISTAUX D'AM1

Les premières observations métallographiques de sections transversales prélevées dans les plaques d'AM1 nous ont montrés que plusieurs rangées de dendrites sont présentes dans l'épaisseur des échantillons. Au cours de ce chapitre qui porte sur l'étude de la structure dans des plaques en superalliage à base de nickel, nous nous intéressons à la densité d'axes dendritiques primaires n_p . Ce paramètre est largement utilisé dans la littérature pour décrire l'évolution de la microstructure dans des échantillons métalliques. L'évolution de n_p estimée en différents lieux est étudiée pour toutes les plaques monocristallines fabriquées.

Puis, nous caractérisons les effets de l'épaisseur de la paroi, des vitesses de refroidissement et de croissance, et du gradient de température sur le réseau solidifié. Nous observons de quelle façon et avec quelle rapidité le réseau s'adapte à des changements brusques de section et de vitesse de tirage. Les irrégularités du réseau qui apparaissent localement et se manifestent par des variations de l'arrangement dendritique sont étudiées. Enfin, nous montrons les effets de la désorientation des bras secondaires sur le réseau dendritique.

6.1 Observations qualitatives des sections d'AM1

Nous avons prélevé environ une dizaine de sections transversales uniformément réparties sur toute la hauteur de chaque plaque. De plus, pour évaluer l'importance et la rapidité du phénomène de compétition des bras tertiaires dans la zone d'extension, de la portion comprise entre $0 < h < 20 \cdot 10^{-3}$ m dans la plaque 1500/2/i/1 mm, 12 sections ont été extraites. Nous nous attachons dans ce paragraphe à rapporter les premières constatations que nous avons faites en observant au microscope les sections polies puis attaquées chimiquement. Les résultats quantitatifs sont montrés dans la suite de ce chapitre.

6.1.1 Adaptation du réseau en sortie de sélecteur

Nous avons étudié l'adaptation du réseau en sortie de sélecteur lorsqu'il y a une extension latérale du grain. Pour cela, nous avons poli puis attaqué chimiquement une face longitudinale de l'échantillon 1500/10/i/1 mm, et observé la zone d'extension. La figure 6.1 montre la zone de changement brutal de section. On peut observer le phénomène d'extension latérale des bras secondaires sur lesquels des bras tertiaires se développent. On remarque, dans les premiers millimètres de croissance, qu'il y a compétition entre ces bras tertiaires. Le développement de certains d'entre eux est stoppé alors que d'autres poursuivent leur croissance. Ces derniers deviennent de nouveaux axes primaires.

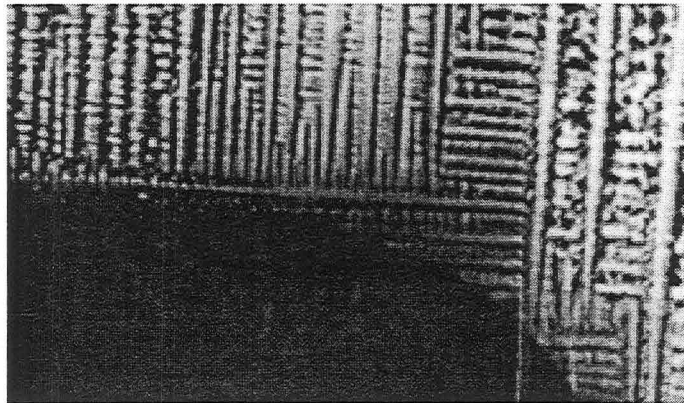


Figure 6.1 : Phénomène d'extension dans la plaque 1500/10/i/1 mm.

Pour observer plus complètement cette extension, nous avons prélevé une section $2 \cdot 10^{-3}$ m au-dessus de l'extension dans la plaque 1500/10/i/2 mm. La figure 6.2 montre une

partie de cette section. Dans sa partie inférieure, on observe l'extension latérale d'un bras secondaire et les raccordements de bras tertiaires transversaux. On remarque l'absence d'alignements parallèles aux parois. On peut penser que ce réseau provient de l'extension d'un bras secondaire principal sur lequel des bras tertiaires se sont raccordés transversalement.

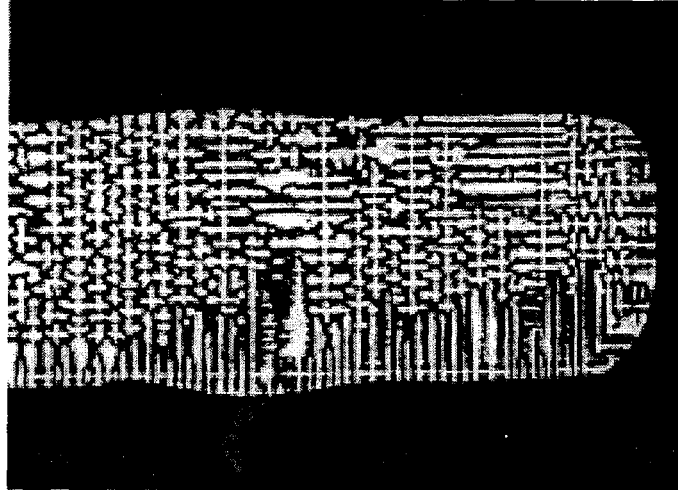


Figure 6.2 : extrémité d'une section prélevée à 2.10^{-3} m au-dessus de l'extension de la plaque 1500/10/i/2 mm.

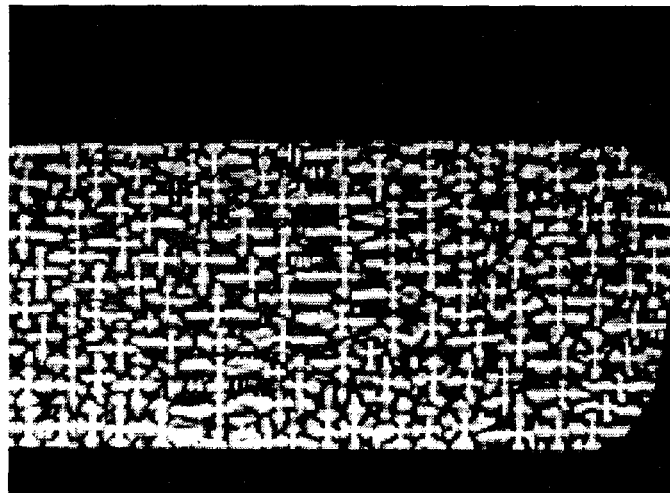


Figure 6.3 : extrémité identique à celle présentée ci-dessus mais prélevée à 10.10^{-3} m au-dessus de l'extension de la plaque 1500/10/i/2 mm.

La micrographie de la figure 6.3 a été prise sur une section prélevée à 10.10^{-3} m de la sortie de sélecteur et au-dessus de la zone présentée sur la photographie précédente. Il subsiste peu d'alignements. On peut remarquer la présence de taches blanches d'une rondeur légèrement

déformée. Il s'agit sans doute des extrémités supérieures de bras tertiaires dont la croissance s'arrête à cause de la compétition entre les bras. Le réseau de dendrites possède alors une périodicité de moins en moins bien définie.

6.1.2 Morphologie du réseau loin de la sortie de sélecteur

À titre d'exemples, les figures 6.4 et 6.5 montrent deux sections prélevées, à $120 \cdot 10^{-3}$ m au-dessus de la sortie de sélecteur, dans les plaques de 3 mm d'épaisseur des expériences 1500/2/i et 1500/10/o respectivement.

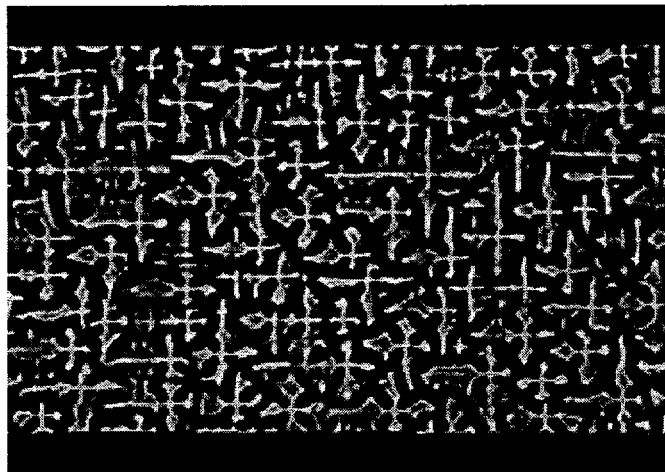


Figure 6.4 : Section prélevée dans la plaque de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i.

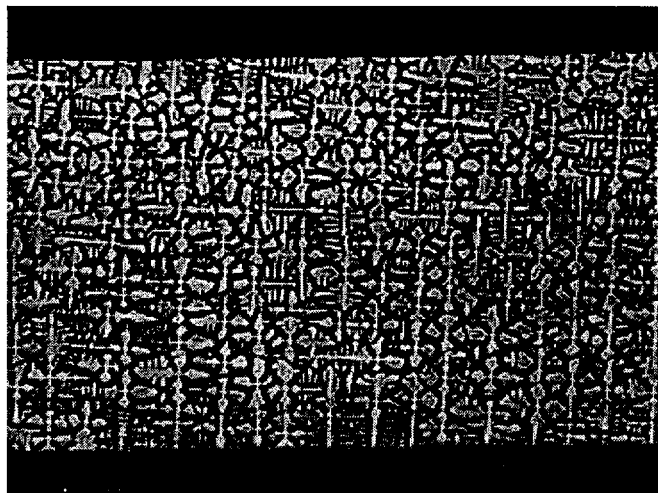


Figure 6.5 : Section prélevée dans la plaque de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/10/o.

On remarque une différence considérable du réseau dendritique dans les deux échantillons et de la morphologie des dendrites qui le composent. Très peu de bras tertiaires se branchent sur les bras secondaires de la première micrographie contrairement à la seconde. Des alignements de dendrites sont encore visibles sur la figure 6.5 alors qu'ils ont pratiquement disparu à la figure 6.4.

On note par ailleurs, sur ces deux figures, que des dendrites incomplètes forment l'intersection avec la paroi. Les bras secondaires sur la micrographie prélevée dans la plaque 1500/2/i/3 mm sont alignés avec les parois tandis que ceux de l'échantillon 1500/10/o/3 mm sont légèrement désorientés. Nous verrons dans la suite de ce travail l'influence de ce défaut sur les paramètres de réseau.

Nous avons étudié des sections prélevées à 120.10^{-3} m au-dessus de l'extension dans chaque plaque de l'expérience 1500/2/i. Les figures 6.6, 6.7 et 6.8 présentent une partie de ces sections. L'observation des trois micrographies montre que les orientations des bras secondaires sont toutes différentes et que les alignements font un angle β avec la normale aux grands côtés des sections.

Nous avons donc été conduits à mesurer deux types d'espacements primaires, λ_1 et λ_2 , et l'angle β que forme les alignements, ou les bras secondaires, avec les parois. Ils sont définis sur la figure 6.9. Leur mesure est faite en utilisant un logiciel de dessin, Mac DrawPro, après digitalisation des photos. Ceci permet de pointer plus précisément le centre des dendrites et améliore la qualité des mesures. D'autres auteurs^{2,31} ont mis en évidence la coexistence de deux types d'arrangement.

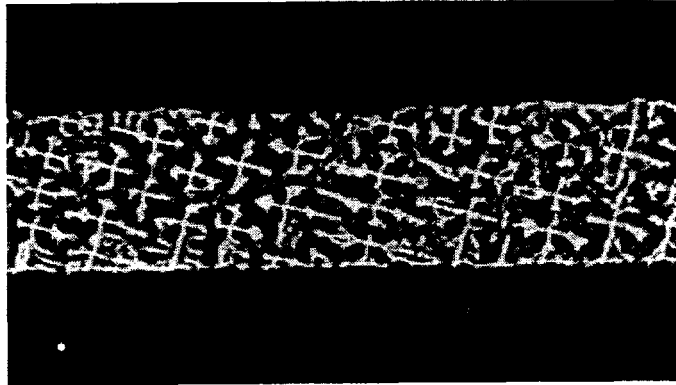


Figure 6.6 : Epreuve de 1 mm, coupe prélevée à 120.10^{-3} m de la sortie du sélecteur.

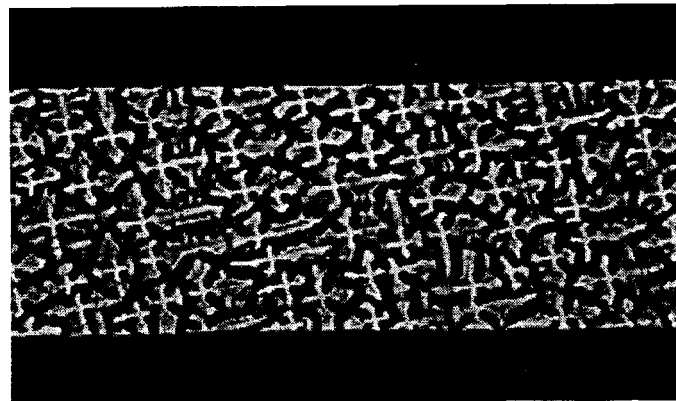


Figure 6.7 : Epreuve de 2 mm, coupe prélevée à 120.10^{-3} m de la sortie du sélecteur.

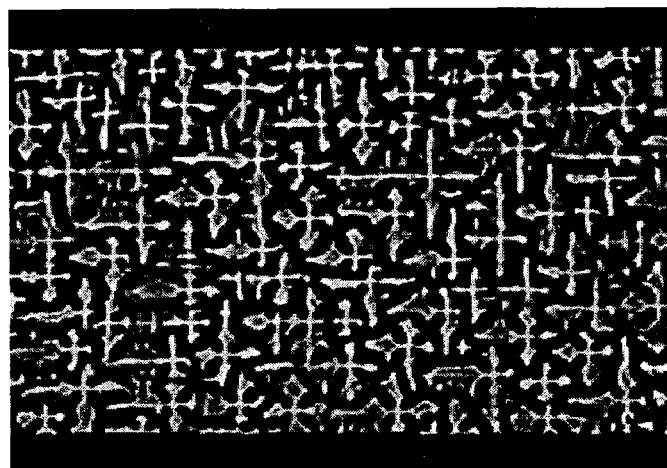


Figure 6.8 : Epreuve de 3 mm, coupe prélevée à 120.10^{-3} m de la sortie du sélecteur.

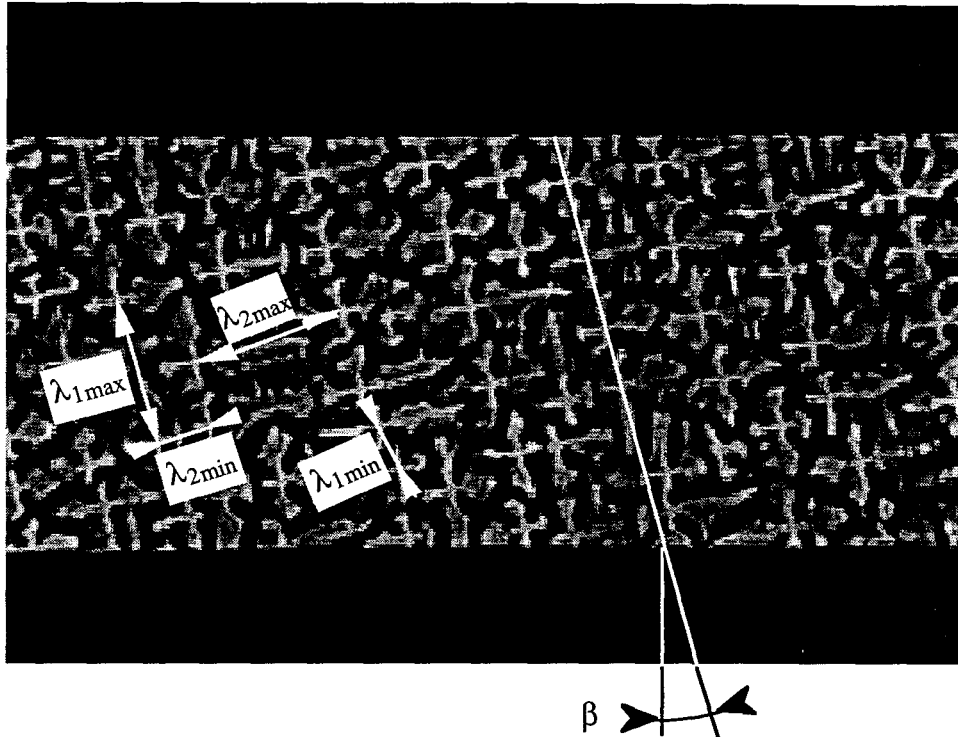


Figure 6.9 : Caractérisation de l'espacement primaire et de l'angle entre les alignements et la normale aux grands côtés.

6.2 Étude expérimentale des échanges thermiques observés durant la solidification

Sur les quatre expériences instrumentées avec des thermocouples, les résultats de deux d'entre elles ont pu être exploités. Nous présentons en annexe 8.3 les courbes de refroidissement obtenues dans chaque plaque pour les expériences 1500/10/i et 1500/2/i.

6.2.1 Étude des températures enregistrées durant l'expérience 1500/2/i

Les résultats des calculs réalisés à partir des enregistrements de température effectués durant l'expérience 1500/2/i, illustrés à l'annexe 8.3, sont présentés dans le tableau 6.1. La vitesse de tirage est de 2 mm/min, soit $33 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$.

Plaques de	Référence des thermocouples	t_L (s)	t_S (s)	$V_{\dot{n}}$ (K.s ⁻¹)	$V_{i-3,i}^c$ (10 ⁻³ mm.s ⁻¹)	$G_{i-3,i}$ (10 ³ K.m ⁻¹)
3 mm	1	662	829	- 0.294		
	2	1112	1342	- 0.230	$V_{1,2}^c = 0.035$	$G_{1,2} = 6.2$
	3	768	901	- 0.396	$V_{1,3}^c = 0.028$	$G_{1,3} = 14.1$
	4	1022	1245	- 0.216	$V_{1,4}^c = 0.028$	$G_{1,4} = 8.2$
	5	1786	1986	- 0.254	0.059	3.7
	6	1780	1943	- 0.312	0.035	8.9
	7	1614	1857	-0.215	0.052	4.9
	8	2642	2858	- 0.226	0.039	4.8
	9	2620	2837	- 0.247	0.042	5.9
	10	2517	2781	- 0.189	0.041	5.5
	11	3870	4142	- 0.194	0.033	7.2
	12	3727	3929	- 0.194	0.032	11.7
	13	3573	3790	- 0.238	0.029	6.7
	14	/	/	/	/	/
1 mm	15	621	764	- 0.378		
	16	792	949	- 0.312	$V_{15,16}^c = 0.073$	$G_{15,16} = 4.3$
	17	695	840	- 0.378	$V_{15,17}^c = 0.041$	$G_{15,17} = 9.2$
	18	/	/	/	/	/
	19	1515	1762	- 0.231	0.043	5.4
	20	2414	2716	- 0.175	0.039	4.5
	21	/	/	/	/	/
	22	3845	4116	- 0.196	0.049	4.0
2 mm	23	660	815	- 0.319		
	24	917	1127	- 0.248	$V_{23,24}^c = 0.066$	$G_{23,24} = 5.4$
	25	740	943	- 0.265	$V_{23,25}^c = 0.038$	$G_{23,25} = 7.0$
	26	848	992	- 0.358	$V_{23,26}^c = 0.038$	$G_{23,26} = 5.1$

Tableau 6.1 : Résultats des calculs des vitesses de refroidissement et de croissance ainsi que du gradient de température réalisés sur les enregistrements de température faits au cours de l'expérience 1500/2/i.

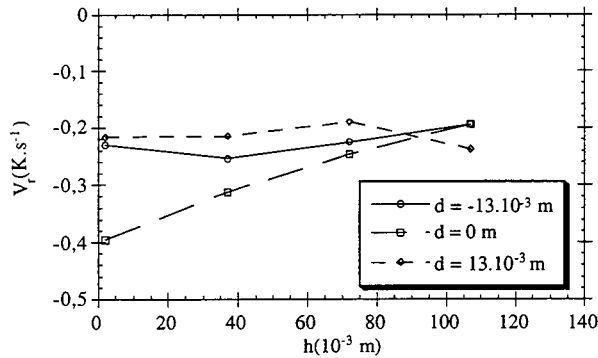
On remarque que la vitesse de croissance, la vitesse de refroidissement et le gradient de température subissent des variations très importantes d'un point de mesure à l'autre dans une même plaque.

Nous avons reporté sur la figure 6.10 les variations des vitesses de refroidissement, de croissance et du gradient de température selon la hauteur h dans la plaque de 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i. Elle est schématisée sur la figure 3.11 de la page 53. Son origine est située à la sortie du sélecteur. Chaque courbe est constituée de 4 points qui sont issus des prises de température situées sur une même verticale de la plaque de 3 mm d'épaisseur. Celle qui est référencée " $d = 13.10^{-3}$ m" est obtenue grâce aux enregistrements de température réalisés avec les thermocouples n° 4, 7, 10 et 13. L'origine de d est prise sur l'axe de symétrie de la plaque. Pour tenir compte du fait que, par exemple, la vitesse de croissance et le gradient de température associés au point de mesure numéro 7 dans le tableau 6.1 sont en fait des valeurs moyennes entre les points 4 et 7, ils seront reportés à $h = 20.10^{-3}$ m milieu de la distance entre les points 4 et 7.

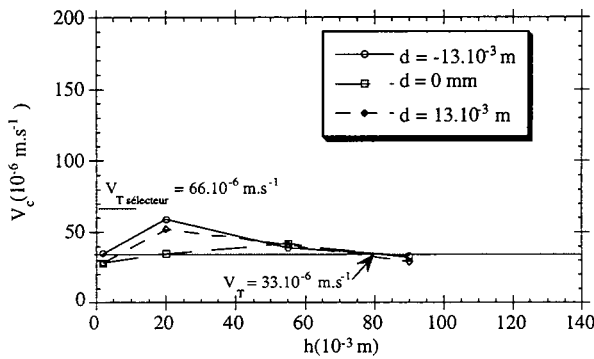
La figure 6.10.a montre l'évolution de la vitesse de refroidissement aux différents points de prise de température du bas en haut de la plaque de 3 mm d'épaisseur. Si les valeurs estimées dans le cas où $d = \pm 13.10^{-3}$ m sont comparables et pratiquement constantes tout au long de l'échantillon, celles déduites des enregistrements de température effectués à $d = 0$ m augmentent.

On observe, sur la figure 6.10.b, que les vitesses de croissance estimées sont proches de la vitesse de tirage à la hauteur de 2.10^{-3} m. Dans la zone comprise entre 2 et 20.10^{-3} m, V_c augmente dans tous les cas. Dans cette zone, la compétition entre les bras tertiaires se produit. Lorsqu'elle est terminée, V_c converge vers la vitesse de tirage. On remarque que la vitesse de croissance à l'origine est identique dans deux cas et inférieure à la vitesse de tirage de la grappe. Pour $d = - 13.10^{-3}$ m, elle est supérieure à V_T . Cet écart provient sans doute de l'erreur commise sur l'estimation de la vitesse de croissance mais aussi sur l'influence du gradient transversal de température dans le four qui peut avoir pour effet d'augmenter la vitesse de croissance de la structure dendritique dans une zone de la plaque qui est la plus proche du centre du four. Chacune des deux courbes d'évolution de la vitesse de croissance, pour $d = 13.10^{-3}$ m et $d = - 13.10^{-3}$ m, admet un maximum au voisinage de $h = 20.10^{-3}$ m. Du fait que les valeurs portées sur la courbe sont des moyennes, l'amplitude de l'optimum est certainement plus importante que celle de la moyenne présentée ici et sa position est sans doute plus proche de l'origine. Il apparaît donc que la vitesse de croissance des axes issus de l'extension est supérieure à la vitesse de tirage dans une zone proche de l'extension, puis, elle diminue pour converger vers V_T . Sur la verticale $d = 0$ m, l'évolution de la vitesse de croissance montre une augmentation de la

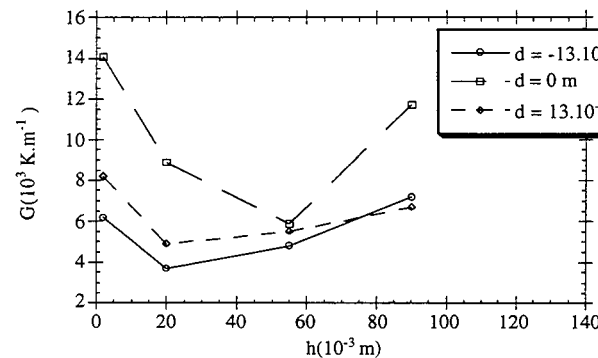
vitesse jusqu'à une hauteur de $55 \cdot 10^{-3}$ m, où elle "rejoint" les deux autres courbes pour décroître en convergeant vers la vitesse de tirage. C'est ici une illustration de la difficulté d'adaptation de la vitesse de croissance des dendrites à un changement de la vitesse de tirage.



a) Évolution de la vitesse de refroidissement.



b) Évolution de la vitesse de croissance. Le trait horizontal indique la vitesse nominale de tirage.



c) Evolution du gradient de température .

Figure 6.10 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance en fonction de la hauteur dans le cas de la plaque de $3 \cdot 10^{-3}$ m d'épaisseur.

La figure 6.10.c montre l'évolution du gradient de température dans la zone pâteuse durant la solidification de la plaque 1500/2/i de $3 \cdot 10^{-3}$ m d'épaisseur. On observe que le gradient de température est plus important au centre de la plaque ($d = 0$ m), ce sur toute la hauteur de la plaque. Celui-ci diminue durant une phase qui paraît être celle de sélection ou compétition entre

les bras tertiaires qui naissent après l'extension et de l'adaptation de la vitesse de croissance au changement de vitesse de tirage. Enfin, il augmente de manière importante en haut de la plaque, et plus particulièrement au centre.

Nous verrons avec les expériences réalisées sur maquette transparente de quelle manière :

- a) la vitesse de croissance du bras secondaire qui s'étend subit une forte accélération latérale au moment de l'extension,
- b) les bras tertiaires qui naissent sur cette branche secondaire ont une vitesse qui augmente nettement au-dessus de la vitesse de tirage, dans le temps de la sélection, la vitesse de ces bras tertiaires converge vers une vitesse proche de la vitesse de tirage lorsque le front de croissance redevient plan, perpendiculaire au gradient de température.

Sur la figure 6.11, on a tracé le schéma de la plaque d'épaisseur 3.10^{-3} m avec la position des thermocouples et leurs indices. Les courbes placées sur l'éprouvette montrent, schématiquement, la position de l'interface liquide-solide toutes les 200 secondes. Les courbes en regard, sur la partie droite de la figure, illustrent les variations correspondantes de V_c et G en fonction de d .

Nous avons reporté des barres d'erreur sur les graphes de la figure 6.11. L'erreur totale prend en compte l'erreur commise sur le positionnement du point de mesure dans la plaque et l'erreur faite lors de la détermination du temps de début de solidification ou du calcul de la pente de la courbe de refroidissement dans la zone pâteuse. On remarque que les vitesses de croissance et les gradients de température dans la zone pâteuse varient sans cesse d'un point à un autre. Nous verrons plus loin, dans le chapitre 6.3, l'incidence que peuvent avoir ces variations sur le réseau de dendrites. D'autre part, l'observation des profils du front de solidification montre que le bord extérieur de la plaque se solidifie légèrement plus rapidement que le bord intérieur. C'est la partie de l'éprouvette la plus proche du refroidisseur par conséquent cette zone est refroidie plus rapidement du fait d'échanges thermiques plus intenses.

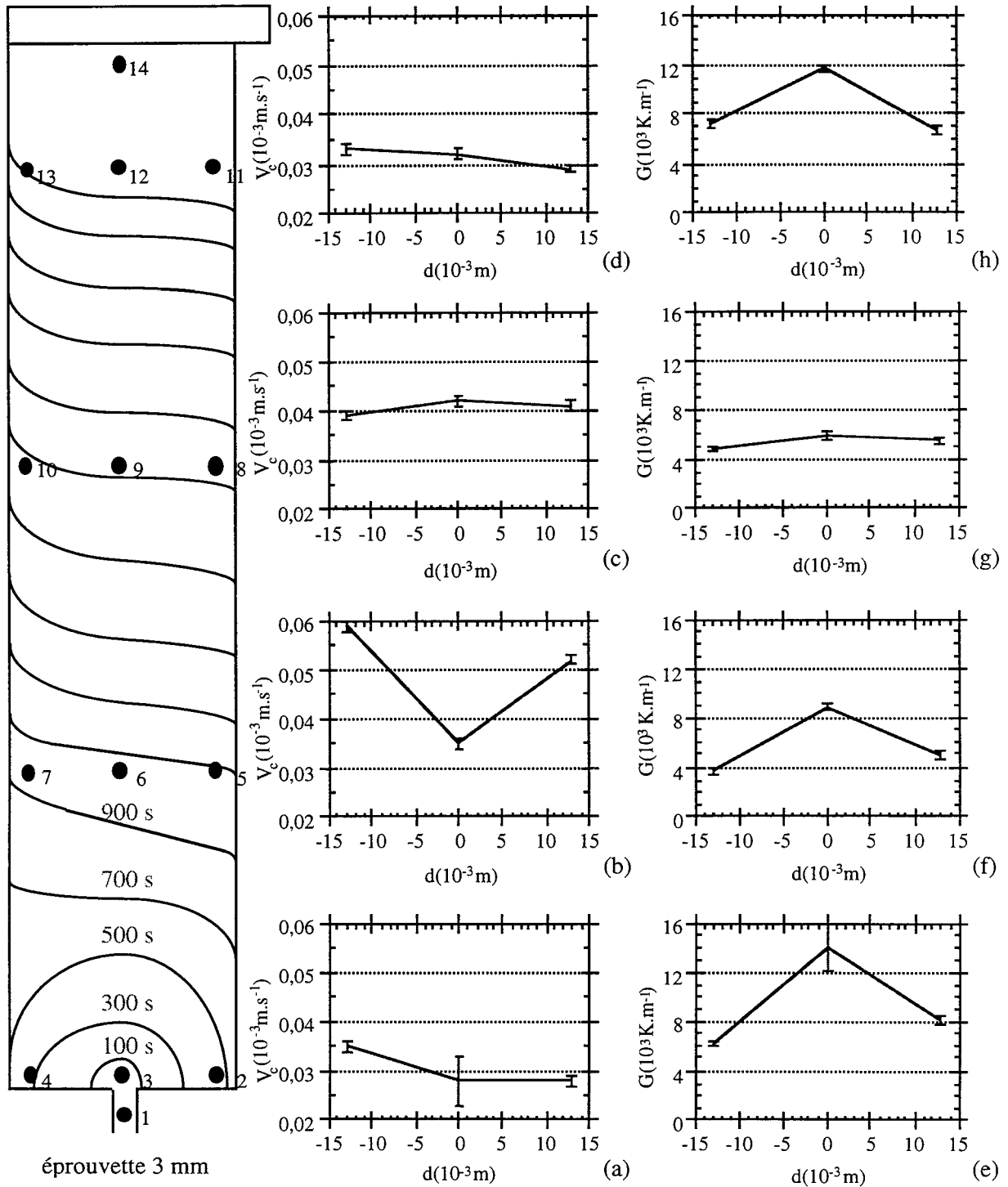


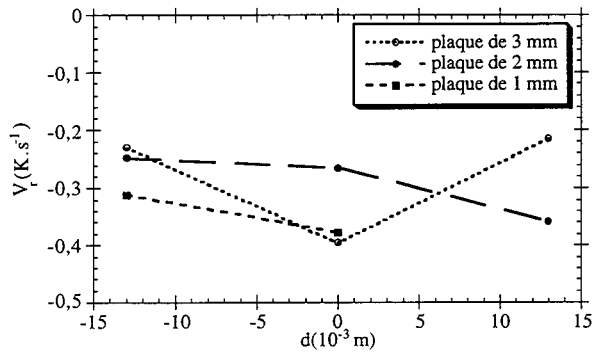
Figure 6.11 : Nous avons porté ici le schéma de l'éprouvette de 3 mm avec la position des thermocouples dont elle est équipée. Les courbes illustrent la position de l'interface liquide-solide à des temps espacés de 200 s. Les graphes (a) et (e) montrent respectivement les variations de la vitesse de croissance et du gradient de température, en fonction de la position transversale dans la plaque, déduites des enregistrements de température effectués grâce aux thermocouples 1, 2, 3 et 4. Il en est de même pour les graphes (b) et (f) pour les thermocouples 5, 6 et 7, puis (c) et (g) avec 8, 9, 10, enfin (d) et (h) avec 11, 12 et 13.

Nous avons comparé la vitesse de refroidissement, la vitesse de croissance et le gradient de température à 2.10^{-3} m au-dessus de la sortie de sélecteur dans chacune des plaques de 1, 2, 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i. Ces données sont reportées sur la figure 6.12. La vitesse de refroidissement estimée en chaque point a une valeur bien différente en fonction de l'épaisseur de la plaque. On remarque, sur le graphe b, que la vitesse de croissance est beaucoup plus grande dans la partie de la plaque dirigée vers l'extérieur du four ($d < 0$) que dans la zone opposée située vers le centre du four où la température est la plus élevée. Cette influence du gradient de température radial dans les plaques est d'autant plus marquée que l'épaisseur de la plaque est faible.

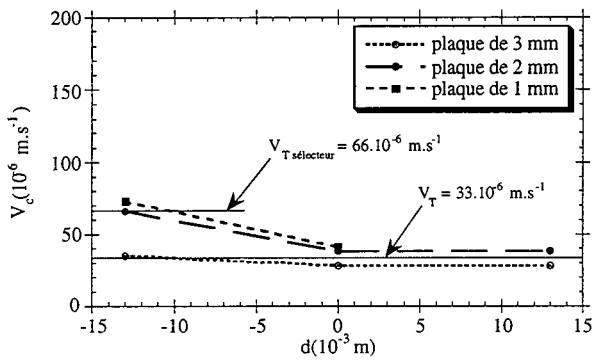
On observe, sur la figure 6.12.c, que le gradient de température diminue avec l'épaisseur de la plaque. Pour les résultats obtenus à $d = 0$ m, le gradient de température semble être supérieur dans la plaque de 1 mm que dans celle de 2 mm. La difficulté du positionnement du thermocouple au centre du moule d'une plaque de 1 mm d'épaisseur, composé de 5.10^{-3} m de carapace réfractaire, doit être une source d'erreur importante sur ce résultat.

La figure 6.13 permet de comparer les évolutions des vitesses de refroidissement, de croissance et du gradient de température à $d = 0$ m sur la hauteur des plaques de 1 et 3 mm d'épaisseur.

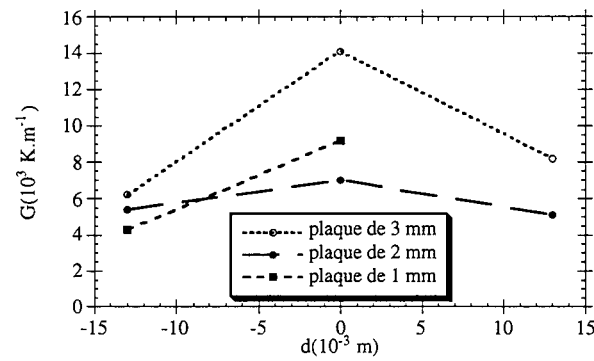
On remarque que la vitesse de refroidissement augmente en permanence tandis que la vitesse de croissance reste sensiblement constante sur la hauteur de la plaque avec néanmoins une légère augmentation. Dans le cas de la plaque de 3 mm d'épaisseur et pour $d = 0$ m, V_c est très proche V_T . Par contre, pour celle de 1 mm d'épaisseur, la vitesse de croissance est toujours supérieure à la vitesse de tirage. Il faut rappeler que la vitesse de tirage appliquée est de 66.10^{-6} m.s⁻¹ pour la solidification du sélecteur et qu'elle a été diminuée brutalement à 33.10^{-6} m.s⁻¹ juste avant l'extension. D'autre part, il apparaît, sur la figure 6.13.c, que le gradient de température dans la zone pâteuse est plus important lorsque l'épaisseur de la plaque est la plus grande, tandis que la vitesse de croissance est la plus faible. En effet, la quantité de chaleur à extraire est d'autant plus importante que l'épaisseur, donc le volume d'alliage à refroidir, est grand.



a) Évolution de la vitesse de refroidissement.

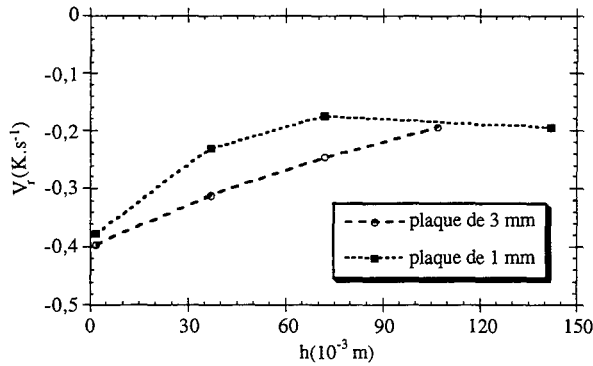


b) Évolution de la vitesse de croissance. Le trait horizontal indique la vitesse nominale de tirage.

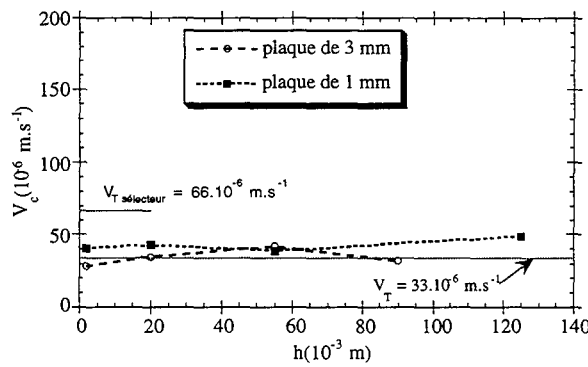


c) Évolution du gradient de température .

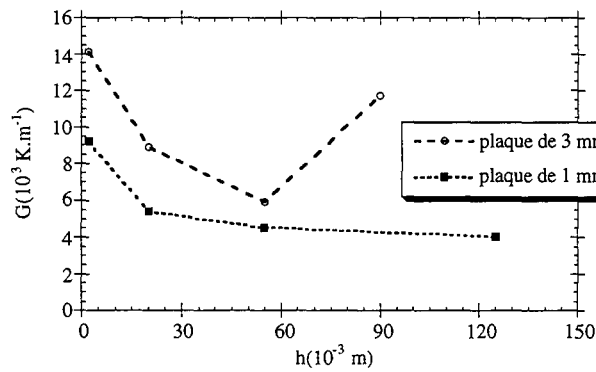
Figure 6.12 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance, à $2 \cdot 10^{-3}$ m au-dessus de la sortie de sélecteur, dans les plaques de 1, 2 et 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i.



a) Évolution de la vitesse de refroidissement.



b) Evolution de la vitesse de croissance. Le trait horizontal indique la vitesse nominale de tirage.



c) Évolution du gradient de température .

Figure 6.13 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance, dans les plaques de 1 et 3 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i, à $d = 0$ m, en fonction de la distance par rapport à la sortie du sélecteur.

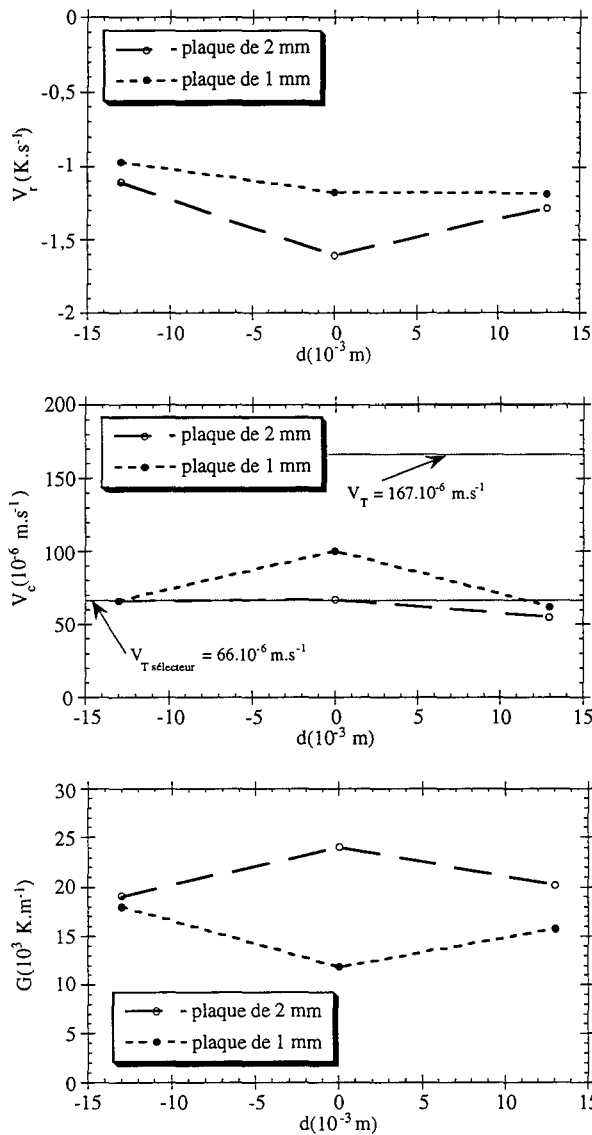
6.2.2 Étude des températures enregistrées durant l'expérience 1500/10/i

L'étude, comme précédemment, des enregistrements de température, présentés à l'annexe 3, permet d'estimer les vitesses de refroidissement et de croissance ainsi que le gradient de température. Les résultats sont reportés dans le tableau 6.2 et illustrés sur les figures 6.14 et 6.15.

Plaques de	Référence des thermocouples	t_L (s)	t_S (s)	V_{ri} (K.s ⁻¹)	V_c (10 ⁻³ m.s ⁻¹)	G (10 ³ K.m ⁻¹)
1 mm	15	87	139	- 0.968		
	16	289	343	- 0.971	0.066	18
	17	117	159	- 1.177	0.1	11.8
	18	275	331	- 1.185	0.062	15.7
	19	/	/	/	/	/
	20	494	545	- 0.942	0.185	5.9
	21	614	664	- 1.015	0.29	3.5
	22	/	/	/	/	/
2 mm	23	86	143	- 0.906		
	24	312	362	- 1.111	0.066	19.1
	25	131	163	- 1.611	0.067	24
	26	276	315	- 1.283	0.055	20.2

Tableau 6.2 : Résultat du calcul des vitesses de croissance et des gradients de température réalisés sur les enregistrements faits au cours de l'expérience 1500/10/i.

La figure 6.14 montre la variation des vitesses de refroidissement, de croissance et du gradient de température dans les plaques de 1 et 2 mm d'épaisseur à $2 \cdot 10^{-3}$ m au-dessus de la sortie de sélecteur.



a) Evolution de la vitesse de refroidissement.

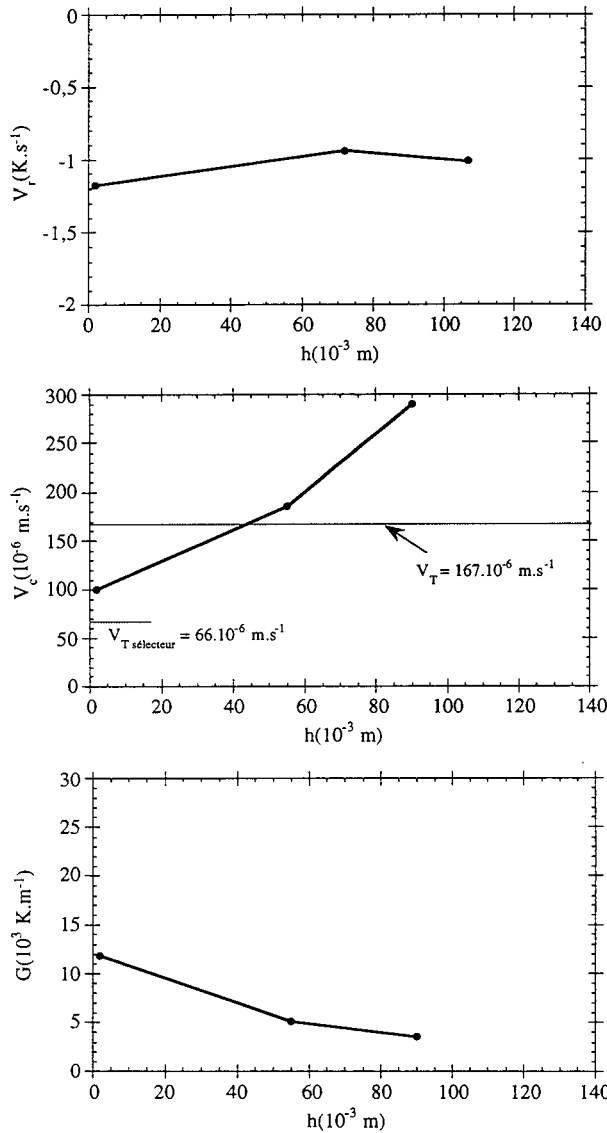
b) Evolution de la vitesse de croissance. Le trait horizontal indique la vitesse nominale de tirage.

c) Evolution du gradient de température .

Figure 6.14 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance dans la zone pâteuse en fonction de d , dans les plaques de 1 et 2 mm, à $2 \cdot 10^{-3}$ m au-dessus de la sortie de sélecteur.

Il apparaît sur la figure 6.14 que les vitesses de croissance calculées à la sortie du sélecteur sont très nettement inférieures à la vitesse de tirage. Ces résultats sont assez contrastés par rapport à ceux de l'expérience 1500/2/i montrés sur la figure 6.12. La vitesse de croissance s'adapte plus rapidement à une diminution qu'à une augmentation de la vitesse de tirage. Sur chaque bord de l'éprouvette les gradients de température mesurés dans les plaques de 1 et 2 mm, sont comparables. Par contre, il existe un facteur deux entre les mesures effectuées au centre, juste à la sortie du sélecteur. Il semble que la soudure chaude du thermocouple 17 ait été légèrement décalée par rapport au milieu de l'épaisseur de la plaque. Par rapport, aux résultats

obtenus lors de l'expérience 1500/2/i, donnés à la figure 6.12, on note que le gradient de température est nettement plus élevé lorsque la vitesse de tirage est plus importante.



a) Évolution de la vitesse de refroidissement.

b) Évolution de la vitesse de croissance. Le trait horizontal indique la vitesse nominale de tirage.

c) Evolution du gradient de température .

Figure 6.15 : Évolution des paramètres macroscopiques de croissance lors de la solidification de la plaque de 1 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/10/i.

La figure 6.15 montre l'évolution des vitesses de refroidissement, de croissance et du gradient de température dans la zone pâteuse durant la solidification de la plaque de 1 mm d'épaisseur. La vitesse de refroidissement est voisine de $-1 \text{ K}\cdot\text{s}^{-1}$ de bas en haut de la pièce. La vitesse de croissance augmente continûment au cours de la solidification de la plaque de 1 mm d'épaisseur. Cette augmentation doit provenir du changement important de la vitesse de tirage

opéré avant la sortie du sélecteur, de 4 à 10 mm/min. Nous avons observé lors de l'expérience 1500/2/i, dont les résultats sont présentés à la figure 6.13.b, que la vitesse de croissance était quasiment constante et assez proche de la vitesse de tirage, tandis que, dans le cas présent, elle augmente sans cesse.

Nous avons vu précédemment que la vitesse de croissance augmente tout au long de la solidification de la plaque de 1 mm. Dans le même temps, sur la figure 6.15.c, le gradient de température calculé dans la zone pâteuse décroît en étant tout à fait comparable, bien que légèrement plus élevé, à celui observé lors de l'expérience 1500/2/i montré à la figure 6.13.c.

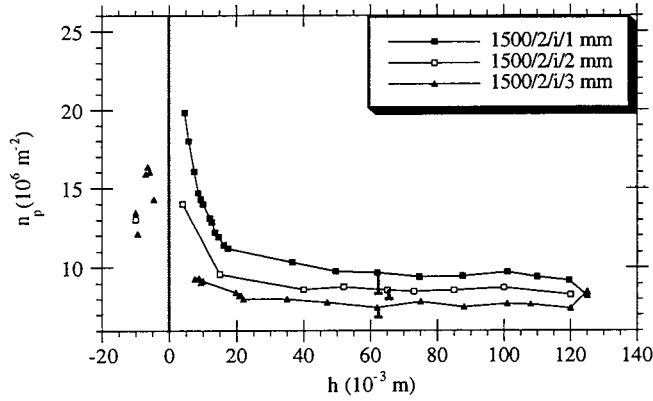
6.3 Évolution globale des réseaux

La densité surfacique d'axes dendritiques primaires a été mesurée, comme indiquée dans le chapitre 3, sur toutes les sections prélevées à différentes hauteurs dans les plaques et dans le bras vertical situé au dessus de la chicane du sélecteur. La figure 6.16 présente les variations de la densité d'axes sur toute la hauteur des plaques qui ont été fabriquées pour cette étude. Le trait vertical à $h = 0$ rappelle la position de la sortie du sélecteur. Les n_p estimés avant la sortie du sélecteur, dans le bras vertical situé après la chicane, sont donnés pour indication. Les variations de la densité d'axes étant très importantes dans la zone d'extension, ils ne sont pas liés aux autres points.

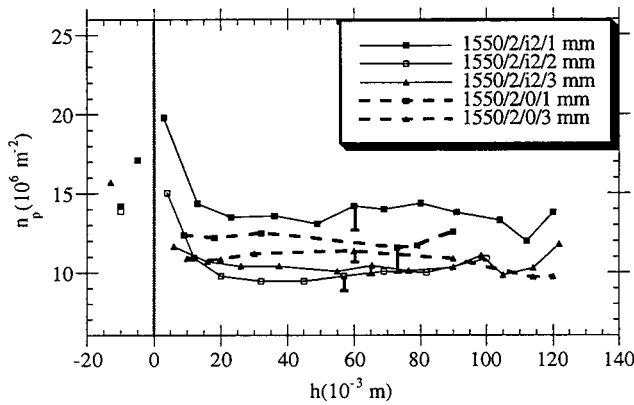
Dans la zone $0 < h < 20 \cdot 10^{-3}$ m, on observe que la densité d'axes est très importante à la sortie du sélecteur, elle décroît ensuite. Ceci est particulièrement visible sur la courbe a pour la plaque de 1 mm d'épaisseur de l'expérience 1500/2/i. Siredey et col. ⁸⁵ ont fait le même constat sur des échantillons plus massifs.

En s'éloignant de l'extension, pour $h > 20 \cdot 10^{-3}$ m, n_p converge vers une constante. On remarque en comparant les figures a et b que la température de chauffage du four influe sur la densité d'axes estimée. Elle est supérieure à $10 \cdot 10^6$ m⁻² pour les expériences 1550/2/i2 et 1550/2/o tandis qu'elle est inférieure à $10 \cdot 10^6$ m⁻² pour 1500/2/i. L'augmentation de la température du four a pour effet d'affiner le réseau dendritique ce qui se traduit ici par une augmentation de la densité d'axes. De façon similaire, l'observation conjointe des figures a et c montre qu'une augmentation de la vitesse de tirage a pour effet d'affiner le réseau. L'étude, présentée précédemment, des enregistrements de température effectués au cours des expériences

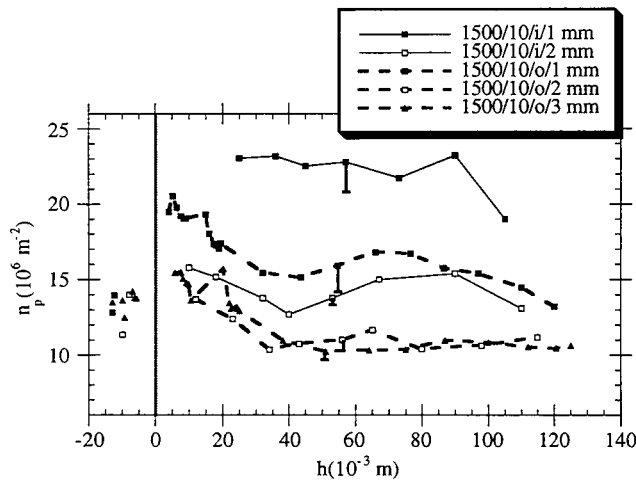
1500/2/i et 1500/10/i a montré que l'augmentation de la vitesse de tirage avait pour conséquence le doublement simultané de la vitesse de croissance et du gradient de température.



a) expérience 1500/2/i



b) expériences 1550/2/i2 et 1550/2/o



c) expériences 1500/10/i et 1500/10/o

Figure 6.16 : Variation de la densité surfacique d'axes dendritiques primaires, en fonction de la hauteur, dans les différentes plaques coulées au cours de cette étude.

L'épaisseur de la plaque paraît jouer un rôle sur la densité d'axes. En effet, on remarque sur la figure a que n_p est d'autant plus important que la paroi est mince.

Des observations similaires sont faites sur les graphiques b et c pour, respectivement, les expériences 1550/2/o et 1500/10/i. D'autres auteurs ^{102, 103} ont aussi obtenu des résultats comparables sur différents alliages. La relation entre l'espacement dendritique primaire et la densité d'axes, valable pour un réseau hexagonal régulier, s'écrit :

$$\lambda = 1.075 (n_p)^{-0.5} \quad [6.1]$$

De plus, nous avons vu dans le cas du succinonitrile-acétone, que λ est fonction de la vitesse de croissance :

$$\lambda = A.V_c^{-m} \quad [6.2]$$

on en déduit que :

$$n_p \cong V_c^{2.m} \quad [6.3]$$

de même, on peut écrire

$$n_p \cong G^{2.n} \quad [6.4]$$

Si l'on fait le lien entre ces résultats et ceux obtenus de l'étude de la thermique macroscopique des plaques, on note dans pratiquement tous les cas que la vitesse de croissance est d'autant plus élevée que l'épaisseur de l'échantillon est faible. D'après l'équation [6.3], on peut supposer que la densité d'axes devrait être plus importante pour les échantillons de faible épaisseur. Nous avons vu précédemment que le gradient de température est d'autant plus élevé que l'épaisseur est grande. Dans ce cas, la densité d'axe devrait augmenter avec l'épaisseur. On note que les effets de la vitesse de croissance et du gradient de température sur la densité d'axes sont contradictoires. Comme les graphes de la figure 6.16 montrent que la densité d'axes primaires estimée est d'autant plus importante que l'épaisseur de la plaque est faible, on en déduit que, dans ce cas, la vitesse de croissance a une part prépondérante sur les paramètres de réseau par rapport au gradient de température.

Cependant, l'effet de l'épaisseur n'est pas observé dans le cas des plaques 1550/2/i2 de 2 et 3 mm. En effet, la figure b montre que les densités d'axes sont comparables dans ces deux échantillons. Nous pouvons faire la même remarque pour les plaques 1500/10/o de 2 et 3 mm d'épaisseur, au graphique c. Lors de l'étude des micrographies de sections de ces plaques, nous avons remarqué que les bras secondaires sont fortement désorientés par rapport aux parois dans la plaque de 2 mm. Le réseau se comporte comme s'il avait à sa disposition une épaisseur plus importante pour se développer quand l'angle β défini à la figure 6.9 est différent de zéro.

Les résultats des mesures d'espacements dendritiques primaires et d'orientation des bras secondaires effectuées à 120 mm de la sortie du sélecteur sont présentés dans le tableau 6.3. Il apparaît une différence importante entre les extremums des espacements dendritiques primaires. Dans le cas des expériences 1500/10/o et 1500/10/i, les conditions nominales sont identiques. Les espacements primaires calculés présentent des variations importantes par rapport à leur valeur moyenne. On suppose que cette différence est due à la fois à la reproductibilité expérimentale, à l'erreur sur le comptage de la densité d'axe mais aussi à une désorientation différente des bras secondaires. Ainsi sur la section prélevée dans l'échantillon 1500/10/i/2 mm, $n_p = 13,2 \cdot 10^6 \text{ m}^{-2}$ avec $\beta = 0^\circ$, alors que dans le cas de l'éprouvette 1500/10/o/2 mm, $n_p = 10,9 \cdot 10^6 \text{ m}^{-2}$ avec $\beta = 14^\circ$. Une désorientation des alignements entraîne une baisse de la densité surfacique d'axes primaires. Dans le cas où il existe une désorientation entre les bras secondaires et les parois, le réseau a en fait une épaisseur e' plus importante pour se développer, on note $e' = e / \cos \beta$. Cette observation est en accord avec l'influence de l'épaisseur de la plaque sur la densité d'axes primaires.

Schievenbusch et col. ¹⁰⁴ ont réalisé une étude comparative sur les méthodes de détermination de l'espacement dendritique primaire moyen d'un réseau. D'après leurs résultats, l'estimation de la densité surfacique d'axes primaires donne une valeur par défaut de λ_{moy} par rapport à des techniques nécessitant la définition de la surface occupée par un axe primaire, le périmètre de cette surface ou le nombre de premiers voisins. Cependant, dans le tableau 6.3, les espacements primaires calculés à partir des densités d'axes sont souvent assez proches du milieu de l'intervalle défini par les mesures d'espacements primaires effectuées suivant les directions des bras secondaires.

Référence expérience	e (10 ⁻³ m)	n _p (10 ⁶ m ⁻²)	λ _{calc} (10 ⁻⁶ m)	β (°)	λ _{1min} (10 ⁻⁶ m)	λ _{1max} (10 ⁻⁶ m)	λ _{2min} (10 ⁻⁶ m)	λ _{2max} (10 ⁻⁶ m)
1500/2/i	1	8.2	375	13	209	302	264	437
	2	8.3	373	17	176	339	200	450
	3	8.5	369	0	200	372	248	457
1500/10/i	1	18.4	251	7	166	290	106	210
	2	13.2	296	0	135	350	176	419
	3	/	/	/	/	/	/	/
1500/10/0	1	13.2	296	12	235	390	76	295
	2	10.9	326	14	195	390	209	310
	3	10.6	330	0	214	326	231	334
1550/2/0	1	12.6	303	12	220	320	187	354
	2	/	/	/	/	/	/	/
	3	9.7	345	18	183	338	256	472
1550/2/i2	1	13.7	290	15	227	409	136	363
	2	10.9	326	6	166	511	194	555
	3	11.9	312	5	212	505	238	530

Tableau 6.3 : Résultats des mesures d'espacements primaires et de désorientation des bras secondaires dans les différentes plaques coulées lors de cette étude.

6.4 Variations locales de l'arrangement dendritique, effet de la position du champ de mesures sur la section

L'étude détaillée de l'évolution de la densité surfacique d'axes dendritiques primaires sur toute la hauteur d'une plaque montre qu'après un temps d'adaptation du réseau dû à la perturbation engendrée par le changement brutal de section, la densité d'axes tend à évoluer lentement vers une constante. Nous nous sommes intéressés à l'étude des variations locales de la densité d'axes. Pour cela, nous avons fait des photographies d'une même section de manière à couvrir toute la surface. Sur chaque cliché, nous avons compté le nombre d'axes dendritiques primaires présents et calculé la densité d'axes correspondante. Ces résultats ont été reportés sur les figures 6.17 et 6.18 pour le cas des échantillons 1500/2/i/3 mm et 1550/2/i2/3 mm. L'erreur commise sur la densité surfacique locale, en chacun des points de ces deux figures, est inférieure à 0.5 mm^{-2} .

On observe sur les figures 6.17 et 6.18 que la densité surfacique locale d'axes dendritiques primaires fluctue d'un point à l'autre. Cependant, on observe que le $n_{p \text{ local}}$ est d'autant plus grand que l'on est proche du bord intérieur de la plaque.

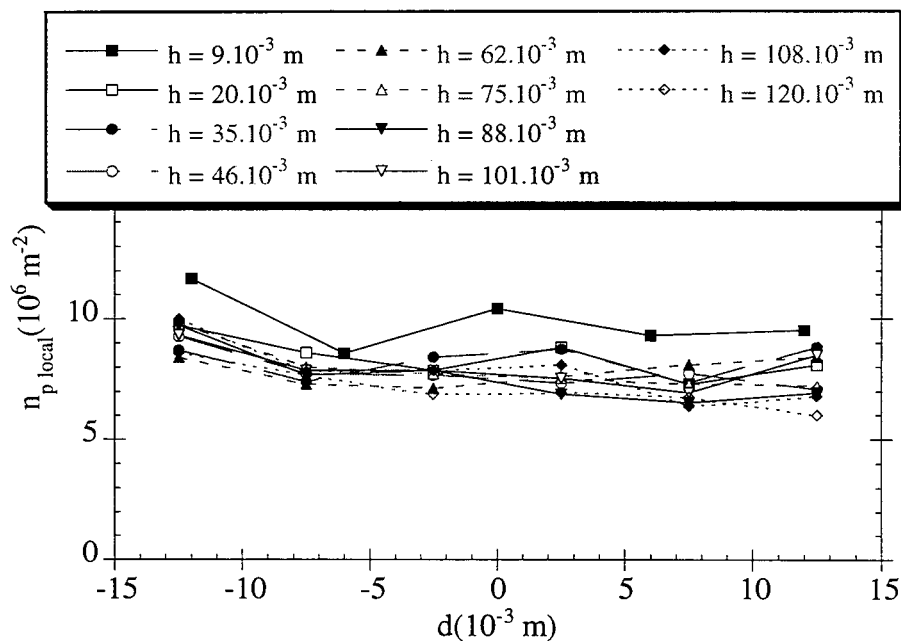


Figure 6.17 : Variation de la densité surfacique locale d'axes dendritiques primaires dans la plaque 1500/2/i/3 mm.

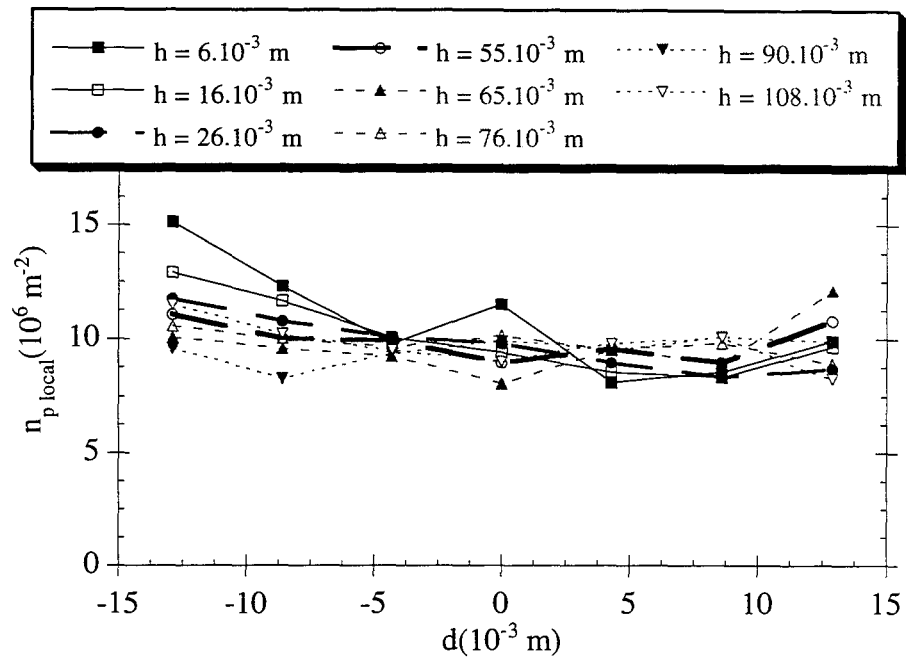


Figure 6.18 : Variation de la densité surfacique locale d'axes dendritiques primaires dans la plaque 1550/2/i/2/3 mm.

La densité surfacique locale mesurée semble "être soumise à des oscillations locales" alors que la densité surfacique moyenne, indiquée à la figure 6.16, varie très peu au delà de $d = 20.10^{-3}$ m.

Nous avons voulu comparer les mesures de densité surfacique locale effectuées sur la plaque 1500/2/i/3 mm avec les vitesses de croissance et les gradients de température tels qu'ils ont été estimés dans le paragraphe 6.2.1. À partir des $n_{p \text{ local}}$ mesurées, nous avons calculé l'espacement dendritique primaire moyen en chaque lieu avec la relation suivante valable pour un réseau hexagonal régulier ^{31,32} :

$$\lambda = 1.075 (n_{p \text{ local}})^{-0.5} \quad [6.5]$$

Dans leur étude, Mc Cartney et col. ¹⁰⁵ ont montré que le logarithme de l'espacement dendritique primaire varie de façon linéaire avec le logarithme du produit du gradient de température avec la racine carrée de la vitesse de croissance du front.

Ainsi nous avons porté sur la figure 6.19 les variations de l'espacement dendritique primaire en fonction de $G.V_c^{0.5}$.

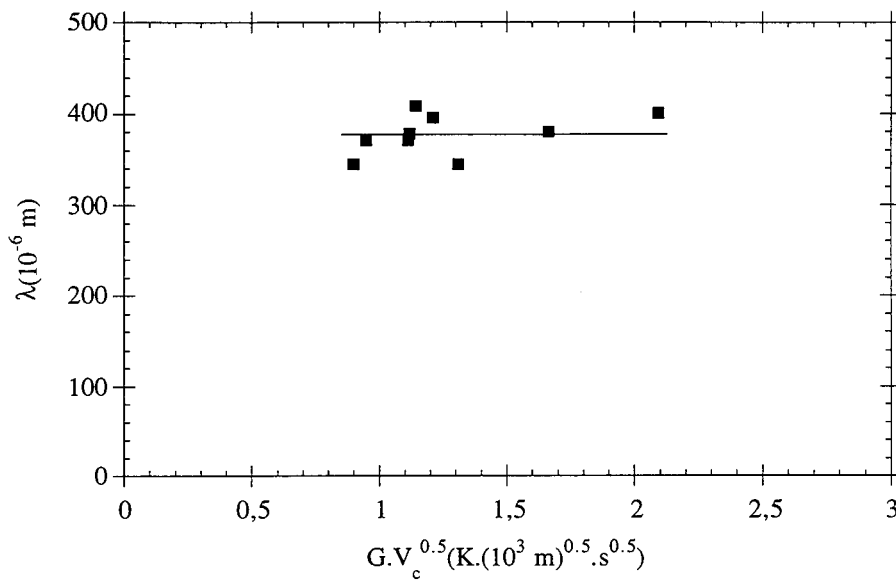


Figure 6.19 : Variation de λ en fonction de $(G.V_c^{0.5})$.

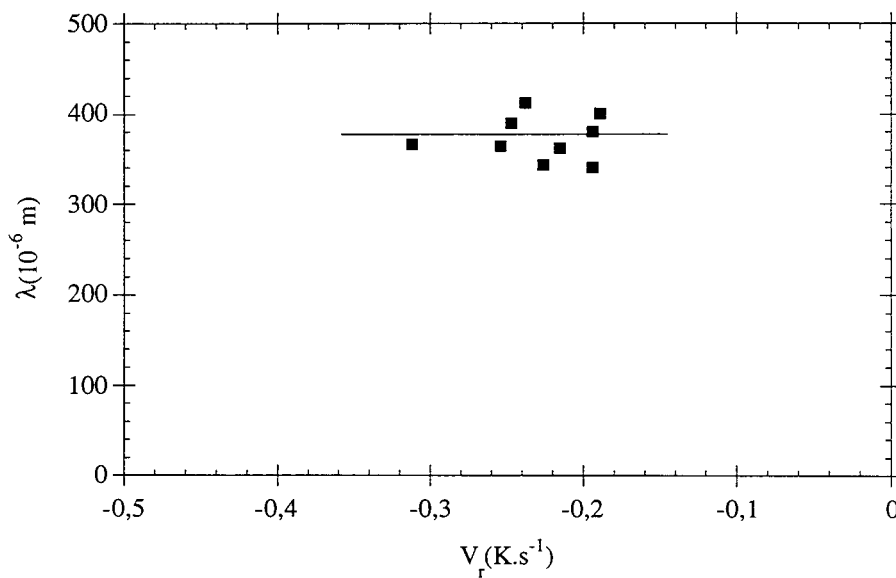


Figure 6.20 : Variation de λ en fonction de V_r .

Nous avons voulu observer, avec la figure 6.20, la variation de l'espacement primaire en fonction de la vitesse de refroidissement.

Sur ces deux figures, malgré une variation significative de $G.V_c^{0.5}$ ou de V_r , l'espacement dendritique primaire local reste constant compte tenu de l'erreur commise sur l'estimation de la densité d'axes primaires.

Chapitre 7

CONCLUSIONS

Le travail présenté ci-dessus avait pour objectif d'acquérir une meilleure compréhension de la solidification de réseaux dendritiques dans les pièces monocristallines. Nous avons distingué trois étapes importantes lors de cette formation :

- la sélection d'un grain unique,
- l'extension du grain en sortie de sélecteur,
- enfin, la croissance à section constante.

Ces différentes étapes ont été étudiées sur des plaques coulées en superalliage AM1. Deux variables de procédé, la vitesse de tirage (2 et 10 mm.min⁻¹) et la température de chauffage du four (1500 et 1550 °C), et une variable géométrique, l'épaisseur des plaques (1, 2 et 3 mm) avaient été retenues. Pour mieux comprendre les différentes étapes de la formation des réseaux dendritiques, on a réalisé une installation de solidification dirigée d'alliages organiques transparents.

Le sélecteur de grain qui équipait les plaques d'AM1 est constitué d'un plot de démarrage et d'une chicane. Au contact de la sole refroidie, le métal se solidifie en une multitude de grains d'orientations différentes. Rapidement, une sélection entre les grains s'effectue de fait que ceux dont une des directions cristallographiques <100> est proche de la direction de tirage sont favorisés. Cette sélection de la direction primaire peut être convenablement décrite à l'aide de règles faisant appel à des considérations géométriques simples ⁸². Au bout de quelques millimètres de croissance, les directions des axes primaires encore présentes se situent toutes dans un cône faisant un angle de 10° avec la direction de tirage. Aux abords de la chicane de sélection, les grains sont constitués de quelques dendrites seulement et la densité des axes primaires observée sur section transversale est élevée. Le tirage continuant, les bras secondaires des dendrites situées du côté du changement de direction de la chicane peuvent s'étendre latéralement.

Pour un bon fonctionnement du sélecteur, le nombre de grains en début de chicane doit être suffisamment élevé pour qu'un grain d'orientation secondaire favorable, c'est-à-dire faisant un angle faible avec le plan de la chicane, soit certainement présent. Ce nombre de grains doit aussi être suffisamment faible pour que deux grains d'orientations très proches ne puissent pas entrer dans une compétition sans vainqueur. En fait, la sélection secondaire n'est pas plus parfaite que celle des axes primaires. Elle conduit à ce que les directions secondaires des pièces monocristallines soient distribuées dans un angle d'environ $\pm 10^\circ$ de part et d'autre du plan de la chicane.

À l'extrémité du sélecteur, le grain se développe pour remplir l'espace défini par le moule grâce à un mécanisme d'extension latérale de bras secondaires et du développement de bras tertiaires dans la direction de tirage. Les mêmes phénomènes se produisent lorsque le réseau dendritique se développe dans les plates-formes et dans les cloisons horizontales des ailettes. Cette période d'extension du grain est déterminante pour la qualité des pièces monocristallines. En effet, elle peut être associée à la germination de grains parasites et à l'apparition de chapelets de porosités dans le cas d'extension dans les zones minces.

Le risque de germination parasite est associé au fait que l'extension latérale du réseau dendritique se fait dans un liquide surfondu, dont la température décroît, et donc la surfusion augmente continûment du fait du tirage. Cette étape, et l'apparition éventuelle de grains parasites, ont pu être étudiées très précisément à l'aide du modèle de solidification d'alliages organiques. Pour des conditions de croissance semblables à celles des plaques en AM1, la surfusion du front de solidification est de l'ordre d'un à quelques degrés. Ces valeurs sont faibles et l'on a pu observer que la germination des grains parasites se fait sur des défauts de la surface. Il est probable qu'il en soit de même pour les pièces métalliques.

Bien que les surfusions soient faibles, les variations de vitesse de croissance associées sont suffisantes pour conduire à un affinement très important des structures dendritiques dans la zone d'extension. Les nouveaux axes primaires qui émergent ont donc une taille caractéristique bien inférieure à celle correspondant aux conditions nominales de croissance. Après la période initiale de formation, la vitesse de croissance de ces axes diminue continûment au fur et à mesure que la température de leur pointe se rapproche de celle du liquidus de l'alliage. Les structures deviennent plus grossières. Dans les plates-formes ou les cloisons suffisamment fines, la taille des structures de solidification peut être en tout point celle associée à l'extension. La finesse de ce réseau est telle qu'elle oppose une perte de charge élevée à l'écoulement interdendritique de

liquide devant compenser le retrait de solidification. C'est là, fort probablement, que se trouve l'origine des porosités observées dans ces parties des ailettes.

Nathalie Siredey ² s'est intéressée comme nous, mais pour des échantillons plus massifs, à l'étude de l'adaptation des réseaux dendritiques en sortie de sélecteur. La coulée de ces éprouvettes en AM1 avait été effectuée avec une vitesse de tirage de $4 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ et un gradient de température d'environ $2000 \text{ K} \cdot \text{m}^{-1}$. Elle a observé une diminution importante de la densité d'axes primaires dans une zone qui n'est pas éloignée de plus de $20 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ de la sortie de sélecteur. Nous avons reportés les résultats de Siredey et les nôtres obtenus avec l'AM1, présentés dans le chapitre 6, sur la figure 7.1. On note que la distance nécessaire à l'adaptation, notée δ , du réseau dendritique à la sortie du sélecteur augmente avec la vitesse de tirage dans l'AM1. Par contre, une étude similaire effectuée sur les alliages transparents met en évidence une diminution de la distance d'adaptation lorsque la vitesse de tirage augmente.

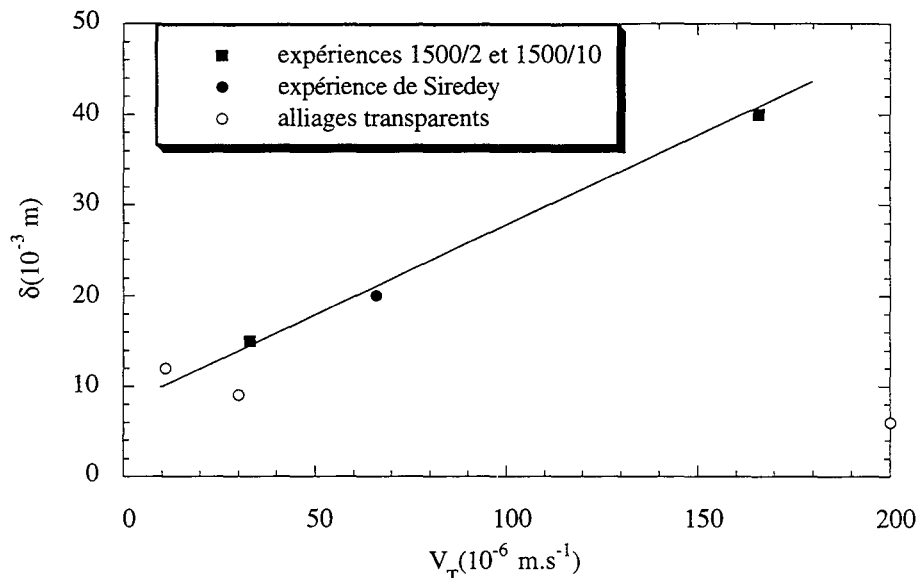


Figure 7.1 : Évolution de la distance d'adaptation du réseau à la sortie du sélecteur en fonction de la vitesse de tirage lors d'expériences effectuées sur l'AM1 et du succinonitrile-acétone.

Du fait que les ailettes doivent subir un traitement d'homogénéisation chimique destiné à lisser les microségrégations, il était aussi important de caractériser l'évolution du réseau dendritique tout au long de la croissance dans les plaques. Par ailleurs, il était d'un grand intérêt de chercher l'existence éventuelle d'un effet de l'épaisseur des plaques. Ces études ont été menées sur alliages organiques transparents et sur AM1. Le tableau 7.1 liste les principaux

résultats obtenus dans ce travail et fait ressortir les similitudes et les différences mises en évidence en fonction du moyen d'investigation utilisé.

Phénomènes étudiés	Similitudes	Différences	
		Superalliage AM1	Alliages transparents
Étude du réseau tout au long des plaques.	Évolution lente de la densité d'axes primaires ou de l'espacement entre premiers voisins, une fois la distance d'adaptation passée. Une variabilité importante des mesures est observée.		
Effet de l'épaisseur de la plaque.	Ce paramètre influe sur la finesse du réseau dendritique lorsqu'il est inférieur à une valeur bien définie.	Les effets sont encore notables pour une épaisseur de $3 \cdot 10^{-3}$ m. Plus la paroi est fine, plus λ_{Moy} est petit.	$e < 150 \cdot 10^{-6}$ m. Plus la paroi est fine, plus λ_{Moy} est grand.
Comportement du réseau en sortie de sélecteur.	Une distance d'adaptation permettant la compétition entre les bras tertiaires est nécessaire.	δ augmente avec la vitesse de tirage.	δ diminue avec la vitesse de tirage.
Mode d'extension.	Extension latérale d'un unique bras secondaire sur lequel se branchent les bras tertiaires.		

Tableau 7.1 : Récapitulatif des résultats obtenus sur alliages organiques transparents et sur AM1.

Le tableau 7.1 montre clairement que les alliages organiques transparents sont de manière générale un modèle assez proche du comportement du réseau dendritique dans l'AM1. Bien que l'on note une différence du sens de variation de l'espacement entre dendrites premières voisines en fonction de l'épaisseur de la paroi et de la distance d'adaptation avec la vitesse de tirage, ces alliages s'avèrent être un choix intéressant pour mieux comprendre les phénomènes dynamiques au cours de la solidification.

L'utilisation de la vidéo rapide pour l'étude de la germination de grains dans un liquide surfondu pourrait permettre une observation plus fine de ce phénomène. D'autre part, le remplacement de l'acétone par un alcool coloré et l'étude des films expérimentaux par analyse d'image donnerait sans doute l'accès à l'étude in situ de la formation des microségrégations.

D'autre part, les perfectionnements apportés ces dernières années aux caméras infrarouges nous laissent penser qu'un remplacement d'une plaque de verre par un matériau transparent aux rayonnements infrarouges au moins sur une face des échantillons, permettrait de suivre l'évolution des isothermes au cours de la solidification.

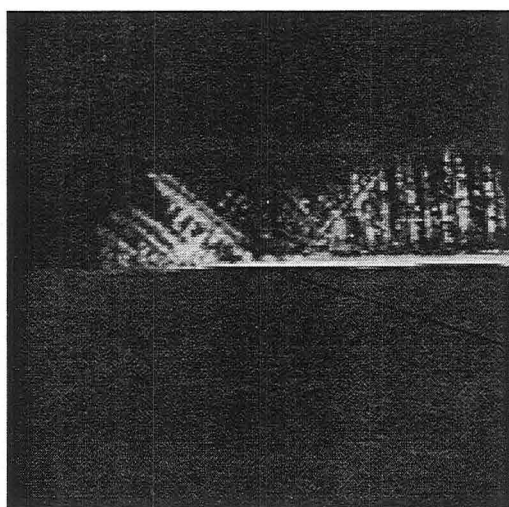
ANNEXES

8.1 Germination de grains

8.1.1 Germination d'un grain parasite lors d'une extension latérale

Au cours d'expériences d'extension latérale, nous avons observé la germination de grains parasites. Sur la figure 8.1, un grain trouve ainsi son origine sur une impureté collée au film polyester. Les axes dendritiques verticaux situés à droite du grain parasite proviennent de l'extension. La solidification débute autour de l'impureté avant que le front qui s'étend latéralement ne soit arrivé à son niveau.

Par contre, la photographie de la figure 8.2 montre la présence d'un nombre important de bulles à une extrémité de la zone d'extension. Leur présence dans une zone de forte surfusion, où la vitesse de croissance est très importante, entraîne une grande perturbation du réseau solidifié et l'apparition de grains parasites. Par contre, nous verrons dans le paragraphe 8.2 que la présence d'une bulle à de grandes distances de la sortie de sélecteur n'a que peu d'influence sur le réseau dendritique.



Solidification d'un grain parasite sur une plate-forme d'extension.

Figure 8.1 : Germination d'un grain parasite sur une imperfection présente dans la plaque.

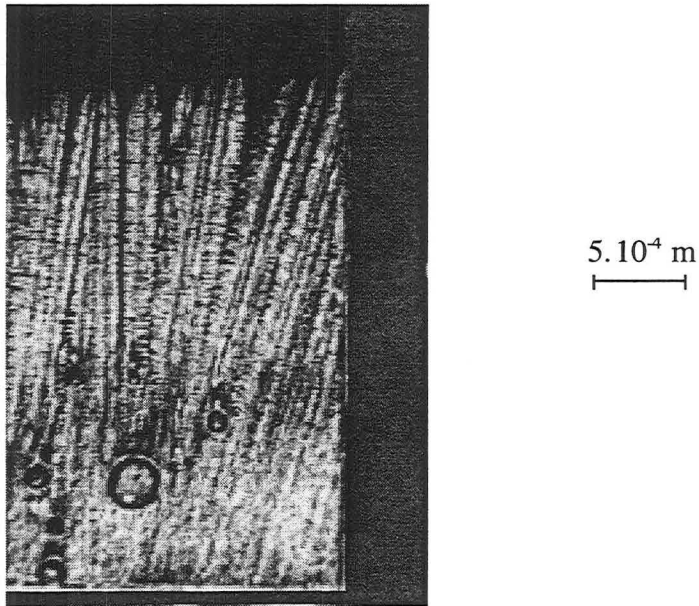


Figure 8.2 : Apparition de grains parasites au cours d'une extension latérale à cause de la présence de bulles.

8.1.2 Germination de grains en parois minces dans un liquide surfondu

Avec l'installation de solidification dirigée d'alliages organiques transparents, nous avons observé la germination de grains dans un liquide surfondu. Pour ce faire, l'extrémité d'une plaque a été complètement refondue, puis le moteur assurant son déplacement a été mis en marche de façon à ce que la vitesse de tirage soit de $10.10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Sur la figure 8.3, nous présentons huit photographies montrant la solidification de grains dans un liquide surfondu. Tout l'échantillon est liquide sur le cliché a. Nous avons schématisé la position du front de solidification sur les photographies b, c, d et e. La vitesse de croissance dans ces premiers instants est d'environ 0.1 m.s^{-1} . Le solide occupe rapidement tout l'espace mis à sa disposition. Le front est dendritique et macroscopiquement plan sur le cliché h au bout de 0.4 s.

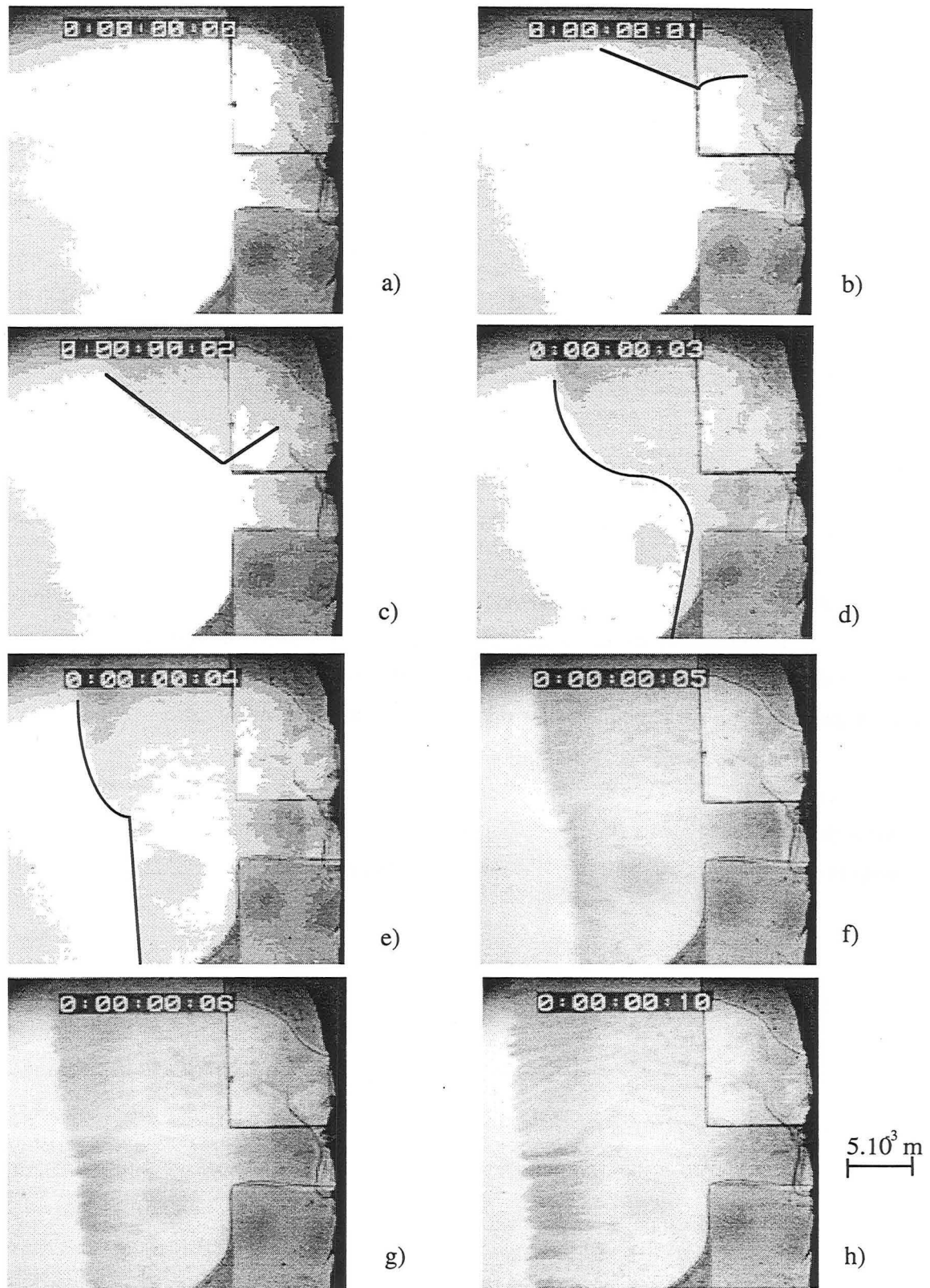


Figure 8.3 : Séquences de la germination de grains dans un liquide surfondu.

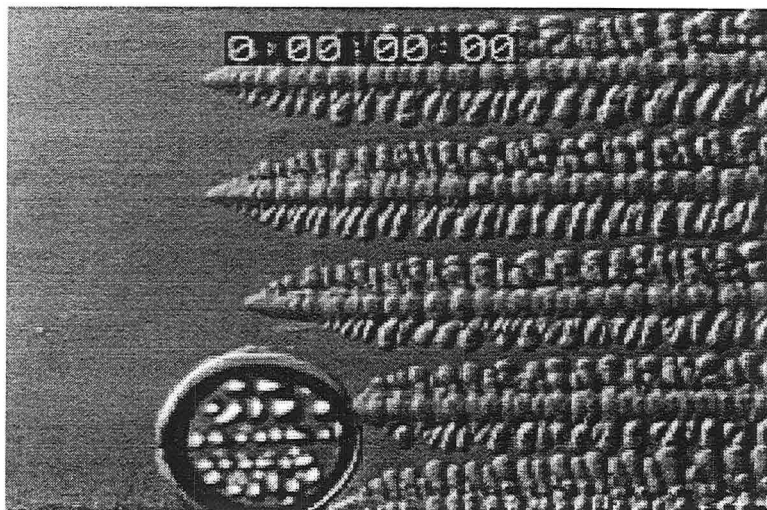
8.2 Effets de la présence d'une bulle dans les alliages transparents ou d'une gaine d'alumine dans l'AM1

8.2.1 Influence sur le réseau solidifié de la présence d'une bulle dans l'alliage

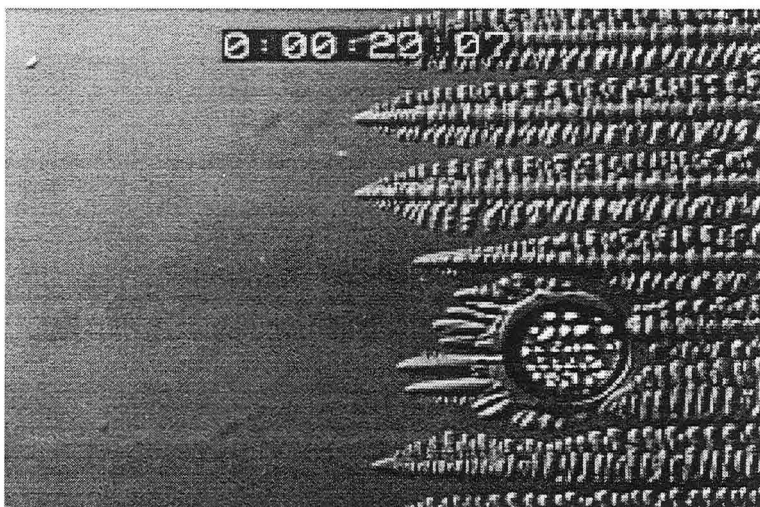
Lors du chargement de la plaque avec l'alliage, des bulles de gaz inerte pénètrent à l'intérieur de celle-ci. Nous avons observé précédemment que leur présence à l'extrémité de la zone d'extension engendre la création de grains parasites. Ici, nous nous intéressons à l'interaction entre une bulle très éloignée d'une extension et le réseau dendritique.

La figure 8.4 montre, grâce à trois clichés extraits d'un film expérimental, la décomposition du processus de solidification autour d'une bulle (figure 8.4.a). Dès qu'une pointe de dendrite entre au contact de la bulle, une carapace solide cristallise très rapidement. Des cellules, qui prennent leur origine sur la coquille, se développent dans toutes les directions (figure 8.4.b). Les rejets de soluté provenant de la croissance des axes primaires du réseau originel engendrent l'arrêt de la solidification latérale des cellules et privilégient celles dont la direction est parallèle aux dendrites. Un processus de sélection s'instaure. Enfin, la figure 8.4.c montre que la bulle n'a eu une incidence que localisée sur le réseau solidifié.

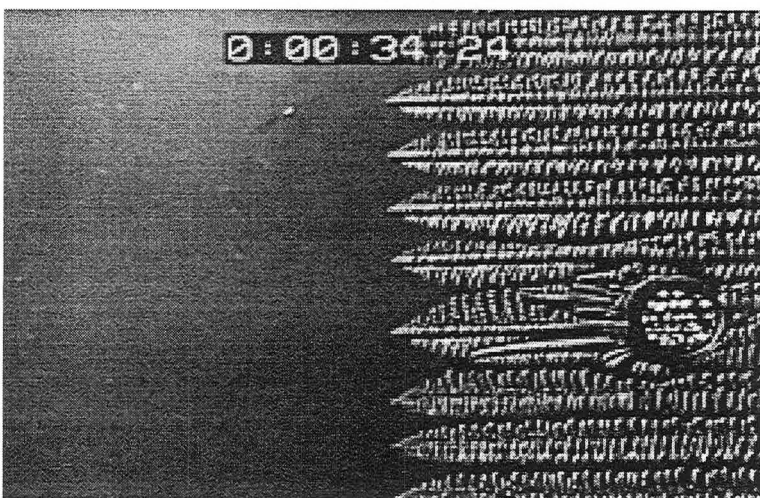
Cette expérience a été réalisée avec une vitesse de croissance de $30 \cdot 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$. Nous n'avons pas observé la création de grain parasite provoquée par la présence d'une bulle isolée, et en dehors de la zone d'extension, même à des vitesses plus élevées.



a)



b)



c)

Figure 8.4 : Séquence de photographies montrant l'interaction entre une bulle située loin d'une zone d'extension latérale et le front de solidification dendritique.

Han et Trivedi ⁴⁶ montrent par contre une séquence où la présence d'une bulle engendre la disparition d'un axe primaire. Localement, l'espacement primaire moyen est donc plus important. La bulle a peut être permis au réseau de s'adapter à la vitesse de tirage appliquée.

Nous avons d'autre part observé la déformation et la progression par saut des bulles dans la zone pâteuse sans la caractériser comme l'ont fait Jamgotchian et col. ¹⁰⁶ qui ont étudié la formation et la dynamique de bulles dans un alliage succinonitrile-acétone

8.2.2 Effet de la présence d'une gaine d'alumine dans une plaque d'AM1

Nous avons poli puis attaqué une face longitudinale d'un échantillon, comportant une gaine d'alumine permettant l'instrumentation de la pièce. La figure 8.5 présente cette section.

On peut remarquer la présence d'une sorte de couronne d'épaisseur 10^{-4} m autour de la gaine. Cette "coquille" croît dans toutes les directions avant d'être bloquée par les dendrites premières voisines. Après quelques dixièmes de millimètre, le réseau retrouve son allure première comme s'il n'y avait pas eu d'obstacle.

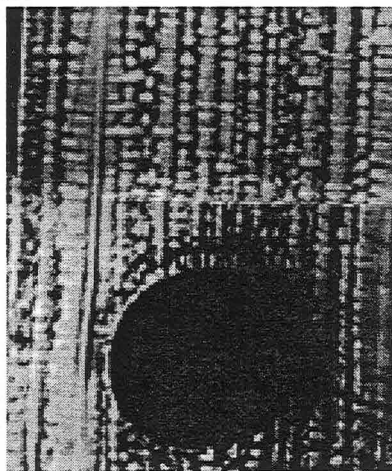


Figure 8.5 : Influence de la présence d'une gaine de thermocouple.

8.2.3 Conclusion

La présence d'une bulle dans un alliage organique transparent ou d'une gaine de thermocouple dans une plaque en AM1 ont un effet similaire sur le réseau dendritique qui entoure

ces obstacles. Dans les deux cas, nous avons mis en évidence la présence d'une couronne de solide autour de l'obstacle. Les bras primaires dont la solidification n'est pas perturbée stoppent la progression des bras désorientés issus de cette couronne.

8.3 Enregistrements des températures obtenus lors des coulées d'AM1

8.3.1 Enregistrements de température effectués lors de l'expérience 1500/2/i

Les graphes de la figure 8.6 présentent les résultats bruts des enregistrements de température effectués au cours de l'expérience 1500/2/i.

Sur le graphique correspondant à la plaque de 3 mm d'épaisseur, on note que les courbes peuvent être groupées par trois. Ces groupes correspondent aux enregistrements de température effectués par des thermocouples situés à une même hauteur dans la plaque. Les thermocouples n° 14, 18 et 21 se sont rompus au remplissage du moule. Le thermocouple n° 13 s'est rompu lorsque $t = 4570$ s. Le chauffage du four a été stoppé au bout de 5670 secondes. En observant ces trois graphiques, on remarque que, lorsque le tirage de l'ensemble sole-moule-métal débute, la température indiquée par les différents thermocouples est comprise entre 1500 °C et 1580 °C. Il existe donc initialement des différences importantes de température dans le bain liquide.

8.3.2 Enregistrements de température effectués lors de l'expérience 1500/10/i

Dans l'expérience 1500/10/i, la pièce de 3 mm d'épaisseur n'a pas été remplie. Les graphiques de la figure 8.7 présentent les enregistrements de température effectués dans les plaques de 1 et 2 mm d'épaisseur. Nous n'avons pas reporté les enregistrements des thermocouples 19 et 22, car ils donnent des informations erronées certainement du fait que les soudures chaudes n'étaient pas placées au centre de la plaque de 1 mm mais plutôt au niveau de la carapace en alumine. Le thermocouple 24 s'est cassé au bout de 450 s, après la transition liquide-solide. Sont aussi indiquées les températures des inducteurs haut et bas du four qui imposent une différence d'une dizaine de degrés entre le haut et le bas du four.

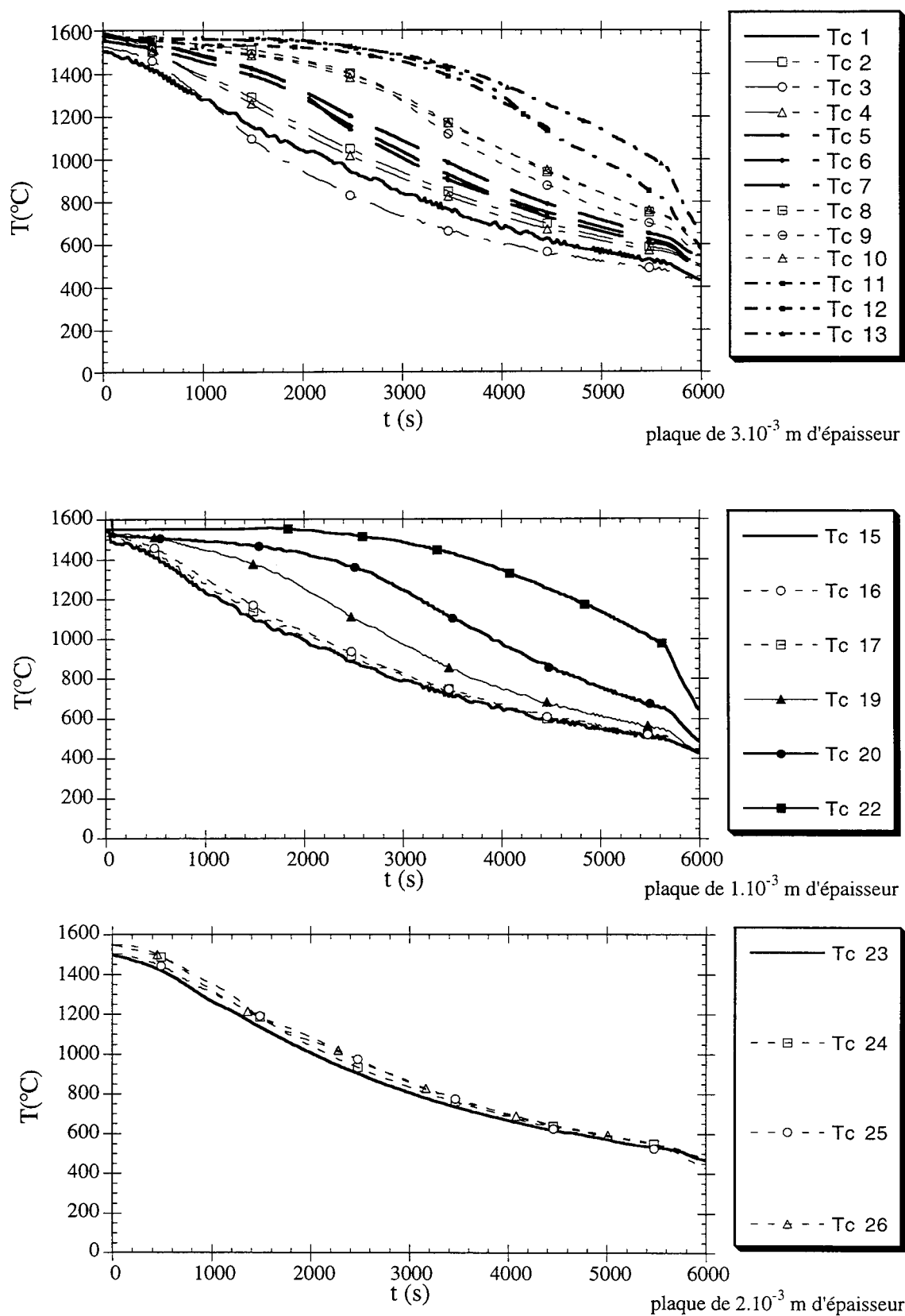


Figure 8.6 : Enregistrements de température effectués lors de la coulée 1500/2/i.

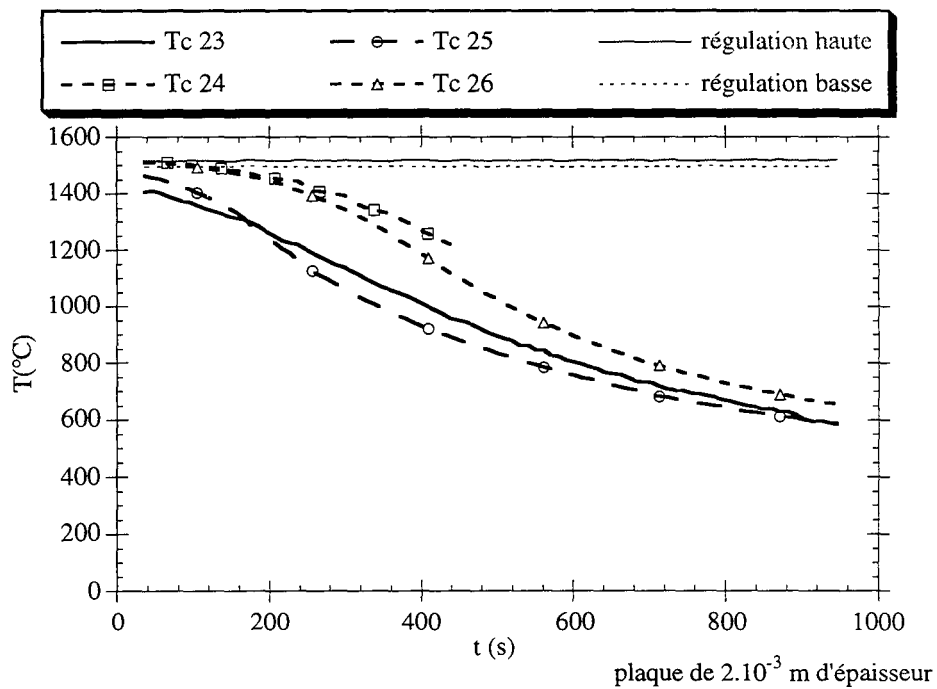
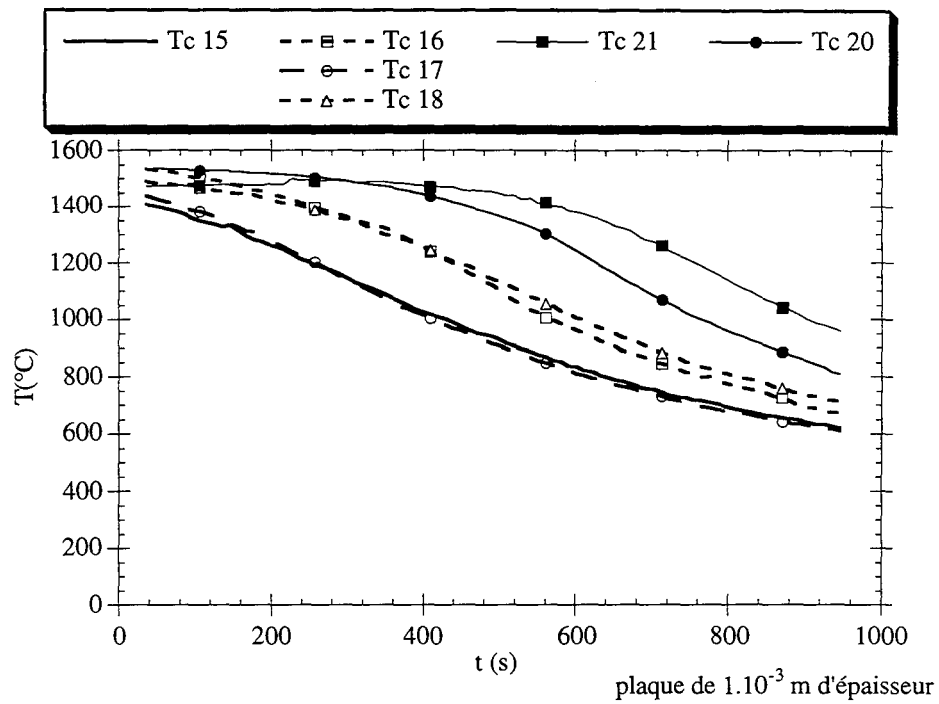


Figure 8.7 : Variation de la température en fonction du temps au cours de l'expérience 1500/10/i.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

-
- ¹ CHEREAU P., Colloque National "Superalliages Monocristallins", Seihl, 22-24 mars 1995.
 - ² HONNORAT Y., Colloque National "Superalliages Monocristallins", Villard-de-Lans, 26-28 février 1986.
 - ³ LACAZE J., HAZOTTE A., Textures and Microstructures, **13**(1990)1.
 - ⁴ LASALMONIE A., Colloque National "Superalliages Monocristallins", Seihl, 22-24 mars 1995.
 - ⁵ BREVET AM1, SNECMA, ARMINES, ONERA, TECPHY, Brevet n° 2557598 (1983).
 - ⁶ GELL M., DUHL D. N., GIAMEI A. F., "Superalloys 1980" Ed. The Metallurgical Society, 205-214.
 - ⁷ VERSNYDER F. L., SHANK M. E., Mater. Sci. and Eng., **6**(1970)213.
 - ⁸ MEETHAM G. W., "High Temperature alloys for gas turbines and other applications 1986", Proc. Of a Conference, Liège, 6-9 octobre 1986, 1.
 - ⁹ SIREDEY N., Thèse de l'Institut de National Polytechnique Lorraine (1991).
 - ¹⁰ HUNT J.D., JACKSON K.A., BROWN H., Rev. Sci. Instr., **37**(1966)805.
 - ¹¹ CHEHAIBOU A., Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, novembre 1988.
 - ¹² ESAKA H., Thèse n° 615 de l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne, 1986.
 - ¹³ GANDIN C. A., Thèse de l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne, novembre 1994.
 - ¹⁴ KURZ W., FISHER J. D., "Fundamentals of solidification", Ed. Trans Tech Publications 1986.
 - ¹⁵ KURZ W., TRIVEDI R., Acta Metal. Mater., **38**-1(1990)1.
 - ¹⁶ LIU L. X., KIRKALDY J. S., J. Cryst. Growth, **140**(1994)115.
 - ¹⁷ NORTHCOTT L., THOMAS D.E., J. Inst. Metals, **65**(1939)205.
 - ¹⁸ NORTHCOTT L., J. Inst. Metals, **72**(1945)283.
 - ¹⁹ WEINBERG F., CHALMERS B., Canadian Journal of Physics, **29**(1951)382.
 - ²⁰ WEINBERG F., CHALMERS B., Canadian Journal of Physics, **30**(1952)489.
 - ²¹ RUTTER J. W., CHALMERS B., Canadian Journal of Physics, **31**(1953)15.
 - ²² WALTON D., CHALMERS B., Trans. Metall. Soc. A.I.M.E., **215**(1959)447.
 - ²³ HELLAWELL A., HERBERT P. M., Proc. Roy. Soc. A, **269**(1962)560.
 - ²⁴ RAPPAZ M., BLANK E., J. Cryst. Growth, **74**(1986)67.
 - ²⁵ PETERSEN K., RYUM N., Metal. Trans.A, **20A**(1989)847.
 - ²⁶ RAPPAZ M., BLANK E., J. Mater. Sci., **22**(1987)896.

-
- ²⁷ BELLET D., SIREDEY N., GEORGE A., MICHEL J.-P., BASTIE P., LACAZE J., *Advanced Materials and Processes, Proc. EUROMAT 1989*, Ed. Exner H. E. et Schumacher V., Informationsgesellschaft . Verlag, volume 1, 413.
- ²⁸ SIREDEY N., BOUFOUSSI M., DENIS S., LACAZE J., *J. Cryst. Growth*, **130**(1993)132.
- ²⁹ FLACK A., LACAZE J., MICHEL J.-P., SIREDEY N., GEORGE A., *Revue de Métallurgie*, (mai 1990)289.
- ³⁰ RAPPAZ M., BLANK E., 3ème International Symposium on Metallurgy and Materials Science, Roskilde (Danemark), sept. 1982, 285.
- ³¹ JACOBI H., SCHWERDTFEGER K., *Metal. Trans. A*, **7A**(1976)811.
- ³² LACAZE J., *J. Spect. Elec.*, **12**(1987)63.
- ³³ HUNT J. D., "Solidification and casting of metals", ed. The Metal Society, 1979.
- ³⁴ KURZ W., FISHER, *Acta Metall.*, **29**(1981)11.
- ³⁵ TRIVEDI R., *Metal. Trans. A*, **15A**(1984)977.
- ³⁶ TRIVEDI R., SOMBOONSUK K., *Mater. Sci. Eng.*, **65**(1984)65.
- ³⁷ LACAZE J., CHEHAIBOU A., LESOULT G., *Colloque National des Superaliages Monocristallins*, Villars-de-Lans, fév.1986, page 42.
- ³⁸ EZAKA H., KURZ W., TRIVEDI R., *Solidification processing*, Sheffield, sept 1987, ed. The Institute of Metals, 1988, Londres.
- ³⁹ GLICKSMAN M. E., SCHAEFER R. J., AYERS J. D., *Metal. Trans. A*, **7A**(1976)1747.
- ⁴⁰ XIA Y., BROWN R. A., *J. Cryst. Growth*, **154**(1995)205.
- ⁴¹ TRIVEDI R., KURZ W., *Acta Metal. Mater.*, **42-1**(1994)15.
- ⁴² SOMBOONSUK K., MASON J. T., TRIVEDI R., *Metal. Trans. A*, **15A**(1984)967.
- ⁴³ LU Y., LIU J., ZHOU Y., *Metal. And Mater. Trans. B*, **26-4**(1995)745.
- ⁴⁴ MORRIS L. R., WINEGARD W. C., *J. of Cryst. Growth*, **6**(1969)61.
- ⁴⁵ FLEMINGS M. C., *Solidification Processing*, ed Mac Graw-Hill Inc., USA, 1974.
- ⁴⁶ HAN S. H., TRIVEDI R., *Acta Metal. Mater.*, **42-1**(1994)25.
- ⁴⁷ SIMON A. J., BECHHOEFER J., LIBCHABER A., *Phys. Rev. Letters*, **61-22**(1988) 2574.
- ⁴⁸ WARREN J. A., LANGER J. S., *Phys. Rev. A*, **42**(1990)3518.
- ⁴⁹ LU S. Z., HUNT J. D., *J. Cryst. Growth*, **123**(1992)17.
- ⁵⁰ WEIDONG H., XINGGUO G., YAOHE Z., *J. Cryst. Growth*, **134**(1993)105.

-
- ⁵¹ BECHHOEFER J., LIBCHABER A., *Phys. rev. B*, **35-3**(1987)1393.
- ⁵² QUESTED, MAC LEAN, *Mater. Sci. Eng.*, **65**(1984)171.
- ⁵³ SOMBOONSUK K., TRIVEDI R., *Acta Metall.*, **33-6**(1985)1051.
- ⁵⁴ KURZ W., RAPPAZ M., "Solidification des alliages", Carry-le-Rouët, sept. 1985, Ed. Les Éditions de Physique, 1988, Les Ulis, France.
- ⁵⁵ JACKSON K. A., HUNT J. D., UHLMANN, SEWARD III, *Trans. A.I.M.E.*, **236**(1966)149.
- ⁵⁶ GANDIN C. A., SCHAEFER R. J., RAPPAZ M., publié prochainement dans *Acta Mater.*
- ⁵⁷ MA D., AXMANN W., SAHM P. R., *Solidification Processing*, Sheffield, sept. 1987, Ed. The Institute of Metals, Londres, 1988.
- ⁵⁸ GRUGEL R.N., ZHOU Y., *Metal. Trans A*, **20A**(1989)969.
- ⁵⁹ RAPPAZ M., DAVID, VITEK, BOATNER, *Metal. Trans. A*, **20A**(1989)1125.
- ⁶⁰ RAPPAZ M., GANDIN C.-A., *Acta Metal. Mater.*, **41-2**(1993)345.
- ⁶¹ GANDIN C.-A., RAPPAZ M., *Acta Metal. Mater.*, **42-7**(1994)2233.
- ⁶² RAPPAZ M., GANDIN C.-A., DESBIOLLES J.-L., THÉVOZ Ph., *Metal. and Mater. Trans. A*, **27A**(1996)695.
- ⁶³ TRIVEDI R., SEETHARAMAN V., ESHELMAN M. A., *Metal. Trans. A*, **22A**(1991)585.
- ⁶⁴ BORISOV A. G., FEDOROV O. P., MASLOV V. V., *J. Cryst. Growth*, **112**(1991)463.
- ⁶⁵ HONJO H., SAWADA Y., *J. Cryst. Growth*, **58**(1982)297.
- ⁶⁶ SHANGGUAN D., HUNT J. D., *Metal. Trans. A*, **22A**(1991)1683.
- ⁶⁷ SEKHAR J. A., TRIVEDI R., *Mater. Sci. Eng.*, **114**(1989)133.
- ⁶⁸ FABIETTI L. M., SEETHARAMAN V., TRIVEDI R., *Metal. Trans. A*, **21A**(1990) 1299.
- ⁶⁹ FABIETTI L. M., SEKHAR J.A., *J. Mater. Sci.*, **29**(1994)473.
- ⁷⁰ LESOULT G., *La revue de métallurgie*, février 1993, 171.
- ⁷¹ HOLDSWORTH S. R., *Superalloys 1980*, Ed. TIEN J. K. et col., ASM Publ., (1980)235.
- ⁷² SMELTZER C. E., *The Iron Age*, septembre(1959)188.
- ⁷³ GIAMEI A. F., KEAR B. H., *Metal. Trans.*, **1**(1970)2185.
- ⁷⁴ MEHRABIAN R., KEANE M., FLEMINGS M. C., *Metal. Trans.*, **1**(1970)1209.
- ⁷⁵ FLEMINGS M. C., NEREO G. E., *Trans. A.I.M.E.*, **239**(1967)1449.
- ⁷⁶ COPLEY S. M., GIAMEI A. F., JOHNSON S. M., HORNBECKER M. F., *Metal. Trans.*, **1**(1970)2193.

-
- ⁷⁷ VANNIER I., COMBEAU H., LESOULT G., 4th International Conference on Numerical Methods in Industrial Forming Processes, Sophia Antipolis, sept 1992.
- ⁷⁸ FELICELLI S.D., HEINRICH J.C., POIRIER D. R., Metal. Trans. B, 22B(1991)847.
- ⁷⁹ KHANT T., High temperature alloys for gas turbines and other applications 1986, Ed. Betz W. et col., REIDEL D. Publ., (1986)21.
- ⁸⁰ FRITZEMEIER L. G., Superalloys 1988, Ed. Reichman et col., The Metallurgical Society, (1988)265.
- ⁸¹ FOX S., BROOKS J. W., LORETTO M. H., SMALLMAN R. E., Internationale Conference on Strength of Metals and Alloys 7th, Oxford UK, Pergamon Press Ltd, 1(1985)399.
- ⁸² BAUCHE Ph., mémoire de D.E.A, LSG2M, École des Mines de Nancy, (1990).
- ⁸³ MORIMOTO S., YOSHINARI A., NIYAMA E., Superalloys 1988, Ed. Reichman et col., The Metallurgical Society, (1988)325.
- ⁸⁴ KLAM H. J., BLANK E. W., Advanced Materials and Processes, Ed. Exner et col., DGM Informationsgesellschaft Verlag 1(1990)407.
- ⁸⁵ SIREDEY N., LESOULT G., LACAZE J., High Temperature Materials for Power Engineering 1990, Ed. Bachelet et col., Kluwer Acad. Publ., (1990)1309.
- ⁸⁶ HARRIS K., ERICKSON G. L., SCHWER R. E., High temperature alloys for gas turbines and other applications 1986, Ed. Betz W. et col., REIDEL D. Publ., (1986)407.
- ⁸⁷ WALSTON W. S., BERNSTEIN I. M., THOMPSON A. W., Metal. Trans. A, 22A(1991)1443.
- ⁸⁸ RICHARDS E. G., J. of Inst. of Metals, 96(1968)365.
- ⁸⁹ WINSTONE M. R., NORTHWOOD J. E., Solidification technologie in the foudry and cast house, TheMetal Society, sept (1980)298.
- ⁹⁰ JACKSON K. A., HUNT J. D., Acta Metal. 13(1965)1212.
- ⁹¹ ESAKA H., KURZ W., J. Cryst. Growth, 69(1984)362.
- ⁹² CAIN J. B., CLUNIE J. C., BAIRD J. K., Int. J. Thermophys., 16-5(1995)1225.
- ⁹³ HONJO H., SAWADA Y., J. Cryst. Growth, 58(1982)297.
- ⁹⁴ TRIVEDI R., MASON J. T., Met. Trans. A, 22A(1991)235.
- ⁹⁵ De CHEVEIGNÉ S., GUTHMANN C., LEBRUN M. M., J. Physique., 47(1986)2095.
- ⁹⁶ CHOPRA M. A., Thèse du Rensselaer Polytechnic Institute (1983).
- ⁹⁷ GLICKSMAN M. E., SCHAEFER R. J., AYERS J. D., Metal. Trans. A, 7A(1976)1747.
- ⁹⁸ HIGGINBOTHAM G. J. S., Mater. Sci. Tech., 2(1986)442.

⁹⁹ GANDIN Ch.-A., RAPPAZ M., WEST D., ADAMS B. L., Metal. Trans. A, **26A**(1995)1543.

¹⁰⁰ FLEURENTIN Ph., rapport intermédiaire CPR Stabilité Structurale des Superaliages Monocristallins, (1994).

¹⁰¹ VERHOEVEN J. D., GIBSON E. D., Metal. Trans., **3**(1972)1893.

¹⁰² TAHA M. A., JACOBI H., IMAGUMBAI M., SCHWERDTFEGER K., Metal. Trans A, **13A**(1982)2131.

¹⁰³ DANN P. C., EADY J. A., HOGAN L. M., J. Austral. Inst. Metal, **19-2**(1974)140.

¹⁰⁴ SCHIEVENBUSCH A., ZIMMERMANN G., MATHES M., Mater. Sci. and Eng., **A173**(1993)85.

¹⁰⁵ MAC CARTNEY, HUNT J. D., Acta Met. **29**(1981)1851.

¹⁰⁶ JAMGOTCHIAN H., TRIVEDI R., BILLIA B., J. Cryst. Growth, **134**(1993)181.

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

o o o

*Service Commun de la Documentation
INPL
Nancy-Brabois*

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur SCHISLER, Professeur, Université de Nancy I

Monsieur SIREDEY, Maître de Conférences, Université de METZ

Monsieur Billia, Directeur de Recherche, Université de St-Gérome MARSEILLE

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

Monsieur FLEURENTIN Philippe

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

**"Relations entre conditions de croissance et la qualité cristalline de
monograins dentritiques."**

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 5 4 5 0 1
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE
LORRAINE**

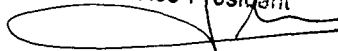
Spécialité : **"SCIENCES ET GÉNIE DES MATÉRIAUX"**

Fait à Vandoeuvre le, **23 Août 1996**

Le Président de l'I.N.P.L.,

M. LUCIUS

Pour le Président
Le Vice-Président



J. Ch. CHEVRIER



RÉSUMÉ

Le procédé de moulage à cire perdue permet de réaliser des pièces aux formes très complexes, et est pour cela largement exploité pour la fabrication de nombreux composants des moteurs aéronautiques. La fabrication industrielle de pièces monogranulaires en superalliage à base de nickel nécessite de choisir convenablement le gradient longitudinal de température et la vitesse de tirage.

L'étape essentielle, du point de vue de la fabrication des monograins, est celle des changements de section, pendant lesquels des branchements secondaires se développant sur ces axes primaires permettent au grain d'occuper l'espace défini par le moule. D'autre part, une section d'aube, utilisée dans la zone la plus chaude du moteur, met en évidence qu'elle est composée de parois très fines dont l'épaisseur est du même ordre de grandeur que l'espacement entre axes primaires premiers voisins. Peu de données existant sur ces comportements, le but de ce travail est de combler ces lacunes.

Deux supports expérimentaux ont été utilisés pour réaliser cette étude. Nous avons, d'une part, construit une installation de solidification dirigée de plaques minces de succinonitrile-acétone, et d'autre part, des plaques monogranulaires en AM1 ont été coulées par la SNECMA. Ces deux supports ont permis, de manière conjointe, d'observer l'influence de la vitesse de tirage, du gradient de température et de l'épaisseur de la paroi sur le réseau solidifié, et de suivre le mécanisme d'extension latérale d'un grain. L'influence de l'orientation des bras secondaires par rapport aux parois a été discutée dans le cas de l'AM1. Enfin, les résultats obtenus avec les deux supports expérimentaux ont été confrontés et discutés.

ABSTRACT

The investment mould casting process allows to cast parts with very complex shapes. That is why it is largely used for the manufacture of high-pressure turbine blades. The industrial production of single crystal parts in superalloy nickel base requires well selected longitudinal temperature gradients and growth rates.

The important stage, from the manufacturing point of view, is the change in section while the lateral development of secondary arms allows the occupation by grain of the totality of the mould space. The section of high-pressure turbine blade shows that it is composed by thin walls. The thickness of them is of the same order of magnitude as the primary arm spacings. The literature is very scarce on this subject. The aim of this work is to afford new observations in the field.

Two experimental supports have been used for this study. We have built a directional solidification apparatus for thin samples containing succinonitrile-acetone alloys. On the other hand, single crystal plates have been cast by SNECMA. The growth rate, temperature gradient and thickness effects on solidification pattern have been studied for the two experimental supports. On the nickel base alloy, we have examined the secondary arms orientation effect.

Finally, the results obtained with the two experimental supports have been compared and discussed.