

THÈSE DE DOCTORAT D'AIX MARSEILLE UNIVERSITÉ
FACULTÉ DES SCIENCES

Spécialité

Matière condensée et Nanosciences

École Doctorale Physique et Sciences de la Matière

Présentée par

Jihène GHMADH

En vue d'obtenir le grade de docteur de l'Université d'Aix Marseille

Sujet de la thèse :

**Étude par la méthode du champ de phase à trois dimensions de
la solidification dirigée dans des lames minces**

Soutenue le 15 décembre 2014 devant le jury composé de

M. Jean-Marc DEBIERRE,	Directeur de thèse
Mme. Rahma GUERIN,	Co-directrice de thèse
M. Klauss KASSNER,	Rapporteur
M. Mathis PLAPP,	Rapporteur
M. Charles-André GANDIN,	Examineur
M. Marc GEORGELIN,	Examineur.

Remerciements

Je tiens tout d’abord à remercier mes deux co-directeurs de thèse, Rahma Guérin et Jean-Marc Debierre. Par leur aide, leur disponibilité et leurs conseils, ils m’ont permis d’accomplir cette thèse. Par leur exigence et par leur rigueur, ils m’ont initié et formé au métier de la recherche et m’en ont donné le goût, même si tout n’a pas toujours été facile. Je leur exprime également toute ma gratitude pour leur considérable aide lors de la rédaction et de la correction de mon manuscrit. Je voudrais leur adresser ma plus profonde reconnaissance et leur dire toute mon admiration pour leurs valeurs tant humaines que professionnelles.

Mes trois années de thèse se sont déroulées au sein de l’Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence. Je remercie à cette occasion Rachid Bouchakour, directeur de l’IM2NP, pour m’avoir accueilli au sein du laboratoire. Je tiens à remercier l’ensemble des membres de l’équipe Théorie, Modélisation et Simulation (TMS) pour leur accueil, leur gentillesse, leurs conseils et leur soutien plus particulièrement à Laurent Raymond pour son entrain naturel, son efficacité, et pour son aide technique et informatique qui m’a été indispensable dès le début de cette thèse. Merci également à Pierre Lombardo pour ses conseils concernant l’utilisation de Gnuplot, ils m’ont été utiles.

Cette étude repose sur une collaboration avec une équipe de l’Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Equilibre (IRPHE). Je remercie tout particulièrement Alain Pocheau et Julien Deschamps pour leur disponibilité et leur enthousiasme lors des réunions. J’adresse de sincères remerciements à Marc Georgelin qui malgré ses nombreuses tâches a su montrer une grande disponibilité : merci à lui de m’avoir accordé du temps pour de nombreuses discussions passionnantes, pour des conseils toujours très utiles, pour des précisions concernant l’aspect expérimental de mon sujet, pour son attention et sa gentillesse durant toutes les années de thèse.

Je remercie Alain Karma pour sa contribution importante à ce travail et pour les discussions lors de nos séjours respectifs à Marseille et à Boston. Je remercie également Damien Tourret pour l’attention qu’il a porté à mes questions notamment pendant son cours d’initiation à la programmation GPU. Merci aussi à Klaus Kassner, pour sa gentillesse et pour m’avoir communiqué une partie de ses connaissances techniques et scientifiques. Une expérience que je considère aujourd’hui comme la période la plus riche et la plus intense de ma thèse est l’école d’été ‘Modèle du champ de phase pour l’évolution des systèmes complexes (Peyresq 2013)’, je tiens à remercier tous les professeurs et spécialement Mathis Plapp pour sa grande disponibilité et sa grande écoute envers les participants et notamment pour son cours d’analyse asymptotique.

Je remercie également les membres de l’équipe Microstructures de Croissance Auto-organisées (MCA) pour leurs conseils et les multiples discussions très intéressantes et enrichissantes, plus particulièrement Bernard Bilia, Nathalie Bergeon, Henri Nguyen Thi et Guillaume Reinhart.

À la fin de ces trois années, au moment de la soutenance, je remercie Klaus Kassner et Mathis Plapp d'avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse. Merci également pour vos remarques et suggestions. J'adresse également toute ma reconnaissance à Charles-André Gandin et Marc Georgelin pour avoir accepté d'être membres de mon jury de thèse.

Enfin, les mots les plus simples étant les plus forts, j'adresse toute mon affection à ma famille, et en particulier à ma maman. Malgré mon éloignement depuis quelques années, sa confiance, sa tendresse, son amour me portent et me guident tous les jours. Bien évidemment, je dis un grand merci à Baligh pour avoir toujours été à mes côtés, pour m'avoir aidé de tout son possible, pour m'avoir soutenu et épaulé comme lui seul le peut. Sache que tu as toujours su m'apporter le souffle nécessaire, dans les moments où tu sentais que j'étouffais.

Une pensée pour terminer ces remerciements pour toi, mon père, qui n'a pas vu l'aboutissement de mon travail mais je sais que tu aurais été très fier de ta fille!!!

Résumé

Nous étudions numériquement la solidification directionnelle d'un alliage binaire à base de succinonitrile. Pour cela, nous développons un code s'appuyant sur le formalisme du champ de phase adapté au cas de la croissance dans des lames minces. Les résultats numériques obtenus sont comparés qualitativement et quantitativement avec les observations expérimentales. Une bonne confirmation des lois expérimentales et de nouvelles informations sur la dynamique des microstructures sont obtenues.

La direction de croissance est généralement limitée par deux axes : l'axe cristallin principal et la direction du gradient thermique. Une première partie de la thèse porte sur l'étude des effets de la désorientation de l'axe cristallin sur la direction de croissance des structures et sur leurs morphologies. Nos résultats sont directement comparés à la loi expérimentale qui donne la réponse en orientation des microstructures sur l'ensemble de leur domaine d'existence en fonction du nombre de Péclet. Nous obtenons un accord très satisfaisant entre simulation et expérience.

Dans la seconde partie de la thèse, une instabilité oscillante (mode $2\lambda - O$) est étudiée en se basant sur le diagramme de stabilité expérimental. Dans ce mode deux cellules voisines oscillent en opposition de phase en largeur et en hauteur. Nos simulations reproduisent ce mode oscillant dans des lames minces et permettent une comparaison quantitative avec les expériences. Le régime des oscillations forcées est notamment exploré pour obtenir des informations sur la réponse en fréquence du système.

Abstract

We report on a numerical study of directional solidification in thin samples of succinonitrile-based dilute alloy. This thesis is based on 3D phase-field simulations. Numerical results are compared qualitatively and quantitatively with experimental observations. The comparison gives a good confirmation of the experimental laws, while providing new information on the dynamics of microstructures.

Growth direction of the microstructure is constrained by two axes : the main crystal axis and the direction of the thermal gradient. Simulations allow us to test the variations of the growth direction and the microstructure stability at various misorientation angles. Our results are directly compared with the experimental law that gives the microstructure orientation response in a large domain of Péclet numbers. We obtain a good agreement, both on qualitative and quantitative grounds, between experiments and 3D simulations.

In the second part of this manuscript, an oscillatory instability ($2\lambda - O$ mode) is numerically studied. This mode involves oscillations of both cell width and cell tip position. This instability is reproduced in numerical simulations with the aim of allowing a fine and relevant comparison with experiments of the domain of existence and the periods of oscillation. In particular, the forced oscillation regime is explored to obtain information on the frequency response of the system.

Table des matières

Glossaire	8
Introduction	10
1 Généralités sur la physique de la solidification dirigée	12
1.1 Conditions expérimentales	12
1.2 Diagramme de phase d'un alliage binaire dilué	14
1.3 Croissance cellulaire et dendritique	15
1.4 Équations physiques	16
1.5 Le champ de phase	17
2 Méthode du champ de phase	18
2.1 Généralités sur le champ de phase	18
2.2 Analyse asymptotique	22
2.3 Anisotropie de l'énergie de surface	26
2.4 Préconditionnement	27
2.5 Courant correctif	29
2.6 Discrétisation	30
2.7 Effets de l'épaisseur de l'interface	34
2.8 Introduction du bruit	35
2.9 Conditions aux limites	40
2.9.1 Conditions aux limites périodiques	40
2.9.2 Le mouillage	40
3 Structures inclinées	44
3.1 Variation de la direction d'anisotropie	45
3.2 Loi d'orientation universelle	47
3.3 Paramètres utilisés	48
3.4 Mesure de l'angle d'orientation θ	49
3.5 Comportement en taille et en vitesse	52
3.6 Aspects géométriques	55
3.6.1 Effets dimensionnels	55
3.6.2 Effets de l'épaisseur de l'échantillon	58
3.6.3 Effets de quantification dus à la largeur de l'échantillon	58
3.7 Influence de l'anisotropie cristalline et du bruit	60
3.8 Variations de la direction de croissance avec θ_0	62
3.9 Mode Dégénéré	65
3.9.1 Définition	65

3.9.2	La transition mode dendritique/mode dégénéré	66
3.10	Conclusion	68
4	Mode oscillant $2\lambda - O$	70
4.1	Généralités et définitions	70
4.1.1	Diagramme de stabilité	70
4.1.2	Mode oscillant $2\lambda - O$	72
4.1.3	Paramètres utilisés	73
4.2	Période d'oscillation	74
4.3	Diagramme d'existence	77
4.4	Effets dimensionnels	80
4.5	Cycle limite	81
4.6	Forçage	85
4.6.1	Variation de la période de forçage	86
4.7	Conclusion	89
	Conclusion générale	91

Glossaire

V_p	vitesse de tirage de l'échantillon
V	vitesse de la pointe des microstructures
G	gradient de température
T_0	température de fusion du solvant
T_{eq}	température d'équilibre
T_∞	température imposée loin de l'interface
c_∞	concentration moyenne du soluté dans l'échantillon
c_s	concentration locale du soluté dans le solide
c_l	concentration locale du soluté dans le liquide
$c_l^0 = c_\infty/k$	concentration du liquide à la température d'équilibre T_{eq}
C_p	chaleur spécifique à pression constante
ΔH_f	enthalpie de fusion du matériau
D	coefficient de diffusion du soluté dans le liquide
R	constante des gaz parfaits
v_0	volume molaire du soluté
σ	énergie par unité de longueur
γ	energie de surface solide-liquide du matériau
μ	potentiel chimique
ε_4	anisotropie cristalline de symétrie cubique
k	coefficient de partage
m	pente du Liquidus
m/k	pente du Solidus
$L = -T_0^2 R(k-1)/mv_0$	chaleur latente spécifique de fusion du cristal
$\Delta T_0 = mc_\infty(\frac{k-1}{k})$	écart thermique entre Liquidus et Solidus
$\Gamma = \gamma T_0/L$	coefficient de Gibbs-Thomson
$d_0 = \Gamma/\Delta T_0$	longueur capillaire
$l_T = \Gamma/Gd_0 = m(k-1)c_l^0/G$	longueur thermique
$V_c = D/l_T$	vitesse de tirage critique (expression approchée)

$\nu = d_0/l_T$	rapport de longueurs caractéristiques
$l_S = D/V$	longueur de diffusion
κ	courbure de l'interface
$\rho = 1/\kappa$	rayon de courbure de l'interface
$\vec{n}$	vecteur unitaire normal à l'interface
θ	angle entre la direction cristalline et la direction de croissance
θ_0	angle entre la direction du gradient et la direction cristalline
x	coordonnée spatiale dans la largeur de l'échantillon
y	coordonnée spatiale dans l'épaisseur de l'échantillon
z	coordonnée spatiale dans la direction de croissance
y_0	épaisseur de l'échantillon
λ	largeur des structures
Pe	nombre de Péclet
τ	temps de relaxation
C	coefficient de couplage concentration/température
W_0	épaisseur d'interface
$\xi = W_0/d_0$	épaisseur d'interface adimensionnée
h	pas de réseau numérique
Δt	pas de temps numérique
T	période d'oscillation
T_f	période de forçage des oscillations.

Introduction

Ce travail de thèse, de nature numérique, porte sur l'étude des microstructures obtenues par croissance cristalline directionnelle dans des lames minces.

La solidification est l'une des étapes les plus importantes de la chaîne de production industrielle des alliages métalliques. En effet, les microstructures (cellules, dendrites, doublons, algues, ...) jouent un rôle crucial dans la détermination des propriétés physiques d'un alliage [1]. Ces propriétés sont grandement conditionnées par les inhomogénéités de concentration induites par les microstructures. Les défauts qui en résultent peuvent provoquer des défaillances du matériau, donc des accidents dans la production énergétique, électrique, l'aéronautique, ... Pour éviter ce type de problème, c'est une microstructure colonnaire dendritique qui est recherchée pendant la fabrication des aubes de turbine des moteurs d'avions. Parce que ses aubes sont soumises à des températures de fonctionnement très élevées, cette microstructure améliore leurs propriétés en terme de fluage du matériau et augmente ainsi la durée de vie des pièces. Par contre, une structure de grains équiaxes est recherchée dans les pièces soumises à des sollicitations mécaniques homogènes et isotropes, comme par exemple dans les blocs moteurs des voitures. Par conséquent, l'identification, voire la maîtrise des mécanismes de formation des microstructures, constitue un enjeu essentiel qui est lié à la compréhension de la morphologie du front de croissance. La taille et la forme précises des structures de croissance sont donc des paramètres déterminants pour obtenir un matériau aux propriétés recherchées. L'accès à ces paramètres n'est cependant pas simple en pratique, puisque les microstructures proviennent d'instabilités physiques. Il est difficile de les maîtriser expérimentalement et leur étude théorique est très complexe.

La solidification dirigée est une technique efficace pour étudier la formation de microstructures puisque les paramètres de croissance peuvent être contrôlés indépendamment. La convection dans la phase liquide joue un rôle important car elle modifie le champ de concentration et perturbe ainsi l'uniformité des microstructures. Les expériences en réseau étendu tridimensionnel requièrent la microgravité pour éliminer la convection et ses effets [3, 4]. Sur terre, la convection peut être éliminée par la réduction de l'épaisseur des échantillons. Dans ce but de nombreuses expériences sur les systèmes transparents ont été menées en échantillons minces [5, 6, 7, 8].

En utilisant les avancées théoriques et numériques, notamment depuis la validation d'un modèle de champ de phase quantitatif pour la solidification dirigée [10, 13, 14] et en s'appuyant sur les études expérimentales réalisées par l'équipe constituée d'Alain Pocheau, Marc Gergelin et Julien Deschamps (laboratoire IRPHE, Marseille) [5, 6, 7, 8, 9], la comparaison entre la théorie et l'expérience est enfin accessible. C'est précisément l'objet de ce mémoire de thèse qui se compose de quatre chapitres.

Au premier chapitre, nous présentons brièvement le contexte dans lequel s'inscrit notre travail

et nous rappelons les principes généraux de la solidification dirigée et de l'instabilité morphologique de l'interface solide-liquide.

Le chapitre 2 est consacré au raccordement du champ de phase avec le modèle physique. Dans l'approximation d'un alliage binaire dilué, le développement asymptotique des équations permet d'établir la forme du courant correctif introduit par Alain Karma et ses collaborateurs [10, 13]. Pour réaliser nos études numériques de la solidification dans des lames minces, nous adaptons ce formalisme en y incorporant l'idée du préconditionnement du champ de phase proposée par Glasner [15], et en validant notre code par un test systématique de convergence selon l'épaisseur d'interface.

Le chapitre 3 est dédié à l'étude de l'orientation cristalline et à la caractérisation du comportement en orientation des structures en fonction de la vitesse du front, de la taille des structures et de l'angle d'ouverture défini comme l'angle entre la direction du gradient thermique et celle d'un axe cristallin. Nous comparons les résultats obtenus à la loi expérimentale établie par Julien Deschamps, Marc Georgelin et Alain Pocheau au moyen d'expériences concernant différents matériaux, dont le succinonitrile [6, 7, 8] et qui donne une réponse en orientation universelle.

A l'issue de la déstabilisation primaire du front plan, l'interface s'organise en cellules et dendrites. Celles-ci sont à leur tour victimes d'instabilités secondaires de création et d'élimination qui bornent la gamme de stabilité des structures observables le long du front et qui jouent un rôle important en métallurgie. Pour cette raison, nous étudions dans la deuxième partie de ce chapitre l'évolution de la gamme de stabilité des structures en fonction des paramètres de vitesse et surtout, ce qui constitue l'originalité de cette partie, en fonction de l'angle d'ouverture.

Le chapitre 4 s'appuie sur une étude expérimentale menée par Marc Georgelin et Alain Pocheau où la désorientation cristalline est négligeable et les vitesses de tirage sont proches du seuil [5] et où différents types d'instabilité ont été observés. Cette partie est destinée à l'étude de l'une de ces instabilités, le mode oscillant $2\lambda - O$ qui correspond à des oscillations en opposition de phase de deux cellules voisines en largeur et en hauteur. Nous caractérisons ce mode et son évolution en régime libre puis sa réponse à un forçage temporel périodique.

1 Généralités sur la physique de la solidification dirigée

Le phénomène étudié est la solidification, à savoir la transformation physique de l'état liquide vers l'état solide. La solidification est largement présente dans notre environnement quotidien, notamment au travers des métaux. Dans cette thèse, nous nous intéressons à l'interface entre les deux phases, liquide et solide, qui adopte généralement une structuration spatiale complexe en cellules ou dendrites. Ces microstructures dépendent de multiples paramètres, les propriétés physiques propres à l'alliage comme le coefficients de diffusion, le diagramme des phases, l'anisotropie de la tension interfaciale . . . , et des paramètres extérieurs liés au procédé de solidification comme le type du four, la vitesse de refroidissement, le gradient thermique, la concentration de constituants Selon les conditions expérimentales, la croissance de la phase solide peut être libre ou dirigée.

La solidification libre d'un corps pur démarre d'un germe cristallin plongé dans un liquide sous-refroidi donc métastable. Une dendrite croît en choisissant elle même sa vitesse d'avancée, sa forme et sa direction en fonction du sous-refroidissement qu'on lui impose.

Dans le cas de la solidification directionnelle d'un alliage binaire, une vitesse de croissance et un gradient thermique sont imposés au système. Entre ces deux modes de croissance, on peut noter au passage l'inversion des rôles joués par la vitesse et le sous-refroidissement qui sont alternativement des paramètres de contrôle ou qui résultent de la dynamique du front.

Dans les procédés industriels et naturels, des gradients thermiques locaux existent en général. L'importance de la solidification sous gradient thermique nous a donc poussé à laisser de côté la croissance libre et à nous intéresser au phénomène le plus répandu, la solidification directionnelle, qui est le cadre de notre étude.

1.1 Conditions expérimentales

Le principe de la solidification dirigée dans un four de Bridgman est présenté sur la figure 1. L'expérience consiste à faire croître un solide cristallin à partir d'un alliage liquide en lui imposant un gradient de température G et en le déplaçant à une vitesse V_p contrôlée. Ce gradient de température induit des mouvements convectifs au sein du liquide qui ajoutent au transport diffusif de soluté un transport convectif se couplant au rejet ou à l'absorption de soluté par le solide. Ce phénomène est très important pour les systèmes tridimensionnels rencontrés dans la solidification naturelle et industrielle. Par contre, dans les échantillons minces auxquels nous nous référons ici, les mouvements convectifs de grande ampleur sont très atténués.

Plusieurs équipes ont étudié expérimentalement la solidification des alliages binaires à base de succinonitrile [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 28, 29, 35, 36, 55]. C'est un cristal plastique organique transparent permettant la visualisation directe de l'interface de solidification. Sa structure cristalline est cubique. Le choix des cristaux plastiques en tant que modèle transparent des alliages métalliques s'est imposé depuis plusieurs dizaines d'années car l'interface liquide-solide est rugueuse comme pour certains métaux. Nous avons choisi les expériences réalisées par l'équipe

d'Alain Pocheau de l'IRPHE comme référence pour nos simulations. Ce sont des expériences réalisées dans des lames minces. L'épaisseur de l'échantillon est choisie de façon à permettre la croissance d'une seule couche de microstructures de tailles homogènes dans des conditions contrôlées permettant à la fois l'étude de la désorientation et la visualisation des microstructures.

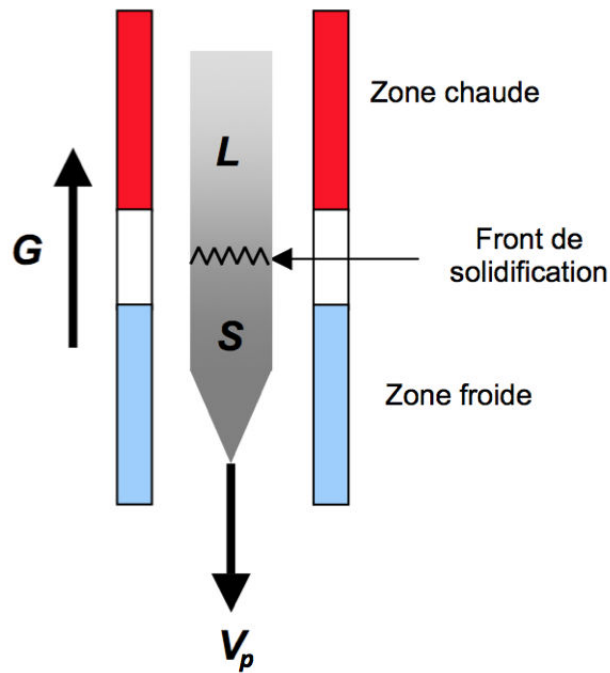


FIGURE 1 – Le principe d'une expérience de solidification dirigée de type Bridgman [16]. Le front de solidification (ligne en zig-zags) sépare la phase liquide (L) de la phase solide (S).

1.2 Diagramme de phase d'un alliage binaire dilué

L'étude porte sur les alliages binaires dilués où une seule phase solide domine la microstructure du matériau. Le système comporte deux constituants : le solvant (succinonitrile) et, en très petite concentration, le soluté (acrylonitrile).

Le Liquidus et le Solidus sont des lignes approximativement droites de pentes m et m/k , respectivement, où k est le coefficient de partage défini comme le rapport des concentrations à l'interface et m la pente du Liquidus (figure 2).

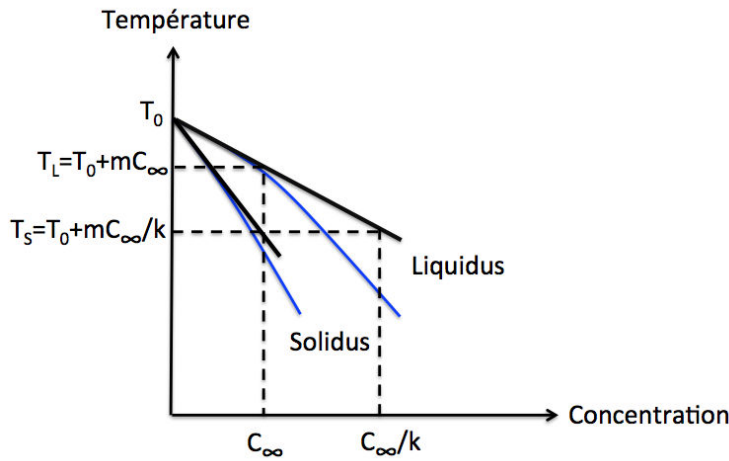


FIGURE 2 – Diagramme des phases d'un alliage binaire dilué de concentration moyenne c_∞ . On note T_0 la température de fusion du corps pur, T_L et T_S les températures du Liquidus et du Solidus. Pour l'alliage considéré, le coefficient de partage $k < 1$ et la pente du Liquidus $m < 0$.

1.3 Croissance cellulaire et dendritique

Initialement, le solide et le liquide sont homogènes, l'interface est une surface plane isotherme à la température du liquidus T_L . Lorsque le front est mis en mouvement forcé, l'interface solide-liquide reste plane tant que la vitesse de tirage est inférieure à la vitesse critique d'apparition de l'instabilité primaire de Mullins et Sekerka [5, 17]

$$V_c = \frac{D}{l_T} \left[\frac{1}{1 - 3 \left(\frac{k}{2} \right)^{2/3} \left(\frac{d_0}{l_T} \right)^{1/3}} \right], \quad (1)$$

où D est le coefficient de diffusion solutale, d_0 la longueur capillaire et l_T la longueur thermique. En négligeant les effets de capillarité, on obtient la valeur approchée

$$V_c \simeq \frac{kDG}{(k-1)mc_\infty} \simeq \frac{D}{l_T}, \quad (2)$$

avec

$$l_T = \frac{m(k-1)c_\infty}{kG}, \quad (3)$$

où G est le gradient thermique et c_∞ la concentration moyenne du soluté loin de l'interface. Quand on augmente la vitesse au delà de la vitesse critique V_c le front devient instable et l'interface présente une structuration spatiale : les microstructures sont appelées cellules ou dendrites (figure 3).

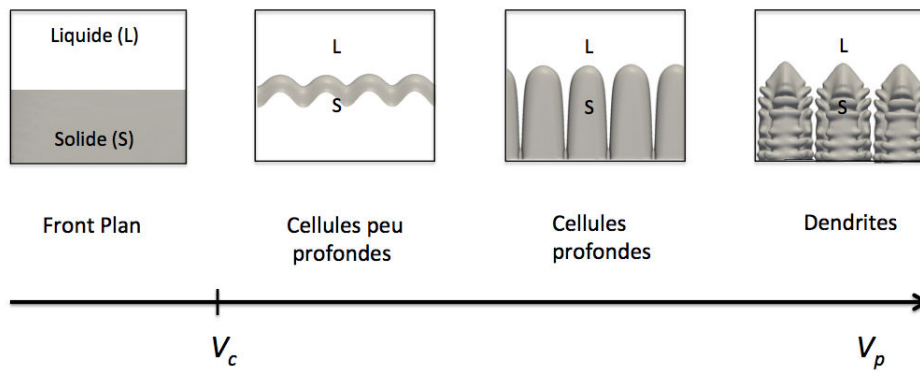


FIGURE 3 – Différentes morphologies d'un front de solidification en fonction de la vitesse de tirage V_p .

1.4 Équations physiques

La solidification dirigée est un problème à frontière libre modélisé par un système d'équations différentielles. La diffusion solutale dans le solide est beaucoup plus faible que dans le liquide, ce qui impose au soluté rejeté à l'interface (pour $k < 1$) d'être évacué essentiellement dans la phase liquide. Lorsque on néglige complètement la diffusion dans la phase solide, on obtient le modèle asymétrique (one-sided).

Durant la solidification, la diffusion de la chaleur est plus rapide que celle du soluté, le champ de température est donc quasi-statique. La concentration variant très lentement dans le solide, elle n'est généralement pas prise en compte. Dans le liquide la variation de la concentration c_l est gouvernée par l'équation de la diffusion (modèle one-sided)

$$\frac{\partial c_l}{\partial t} = D \nabla^2 c_l. \quad (4)$$

De plus, au niveau de l'interface, la conservation du soluté entre son rejet et sa diffusion dans le liquide est décrite par

$$(c_l - c_s) \vec{v}_n = -D \frac{\partial c_l}{\partial n} \cdot \vec{n}, \quad (5)$$

où la concentration du solide est

$$c_s = k c_l, \quad (6)$$

le vecteur unitaire normal à l'interface est noté $\vec{n}$ et v_n est la composante de la vitesse de croissance suivant $\vec{n}$. On suppose que l'interface est à l'équilibre thermodynamique, à une température donnée par la relation de Gibbs-Thomson. Dans le cas simple d'un matériau isotrope

$$T = T_0 + m c_l - \gamma T_0 / L \rho - G z, \quad (7)$$

avec L la chaleur latente, ρ le rayon de courbure local, γ l'énergie de surface solide-liquide et z la position dans la direction de croissance ($z = 0$ pour une interface plane se déplaçant à la vitesse V_p). Ce groupe d'équations est complété par des conditions aux limites spatiales qu'on pourra considérer uniformes à l'infini, $c = c_\infty$ quand $z \rightarrow \infty$. L'équation de Gibbs-Thomson donne l'écart entre la température de l'interface T et la température de fusion du corps pur T_0 . Dans le cas d'effets cinétiques dus à l'attachement des atomes au solide, on y ajoute un terme supplémentaire, généralement linéaire en vitesse

$$T = T_0 + m c_l - \gamma T_0 / L \rho - G z - \beta v_n, \quad (8)$$

où β est le coefficient cinétique. En faisant le changement de variable

$$U = \frac{c_l - c_l^0}{c_l^0(1 - k)}, \quad (9)$$

avec $c_\ell^0 = c_\infty/k$, l'équation (8) de Gibbs-Thomson devient

$$U = -d_0\kappa - \beta'v_n - z/l_T, \quad (10)$$

où $\kappa = 1/\rho$ est la courbure de l'interface et $\beta' = k\beta/mc_\infty(k-1)$.

1.5 Le champ de phase

La description mathématique des interfaces en mouvement est loin d'être triviale, surtout quand il s'agit de surfaces libres séparant deux phases thermodynamiques comme l'interface solide-liquide. La difficulté essentielle vient du fait qu'une telle surface développe souvent des microstructures de forme complexe qui sont façonnées par la dynamique. Ce n'est qu'avec l'émergence de modèles numériques performants, et avec l'augmentation des moyens de calcul, qu'on a pu envisager la prédiction de l'évolution morphologique de ces microstructures. Parmi les modèles pouvant prétendre à relever ce défi, la méthode de champ de phase s'est avérée l'une des plus fécondes et elle est devenue une "méthode standard" de simulation pour la dynamique à l'échelle mésoscopique (l'échelle des microstructures).

2 Méthode du champ de phase

Les origines de cette méthode se trouvent dans la thermodynamique hors d'équilibre et la théorie de Landau des transitions de phase [18]. Son principe est de décrire l'état local de la matière à l'aide d'un champ de phase, qui peut être assimilé à un paramètre d'ordre. La théorie de Landau peut décrire une transition de phase du premier ordre caractérisée par un paramètre d'ordre η nul dans la phase désordonnée, stable à haute température (liquide), et tendant vers l'unité dans la phase ordonnée, stable à basse température (solide). Landau propose d'écrire l'énergie libre du système comme une fonction polynomiale du paramètre d'ordre (et éventuellement de ses dérivées spatiales). Dans le modèle du champ de phase, η devient dépendant du temps et de l'espace. Au cours du temps, le système tend vers l'équilibre, sa dynamique découlant de la relaxation de l'énergie libre, qui est une fonctionnelle du champ η , vers un minimum.

2.1 Généralités sur le champ de phase

Pour la solidification on note habituellement φ le paramètre d'ordre qui permet de distinguer les deux phases. Pour symétriser les équations, on choisit les valeurs $\varphi = 1$ dans le solide ($r \ll 0$) et $\varphi = -1$ dans le liquide ($r \gg 0$) sachant que r donne la position le long de la normale à l'interface, située en $r = 0$. Au travers de l'interface, φ varie continûment entre ces deux valeurs (figure 4). Le système est décrit par une fonctionnelle d'énergie libre qui dépend du champ de

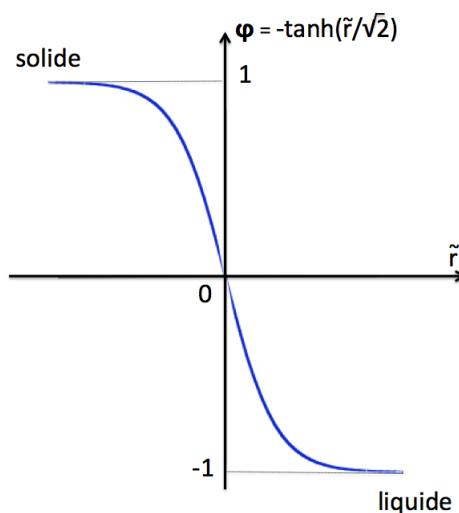


FIGURE 4 – Représentation spatiale du champ de phase φ

phase φ , de la concentration du soluté c , (qui a été notée c_ℓ précédemment), et du champ de température T

$$F(\varphi, c, T) = \int_{\vartheta} \left[\frac{\sigma}{2} |\vec{\nabla} \varphi|^2 - H f_{dw} + f_{AB}(\varphi, c, T) \right] d\vartheta, \quad (11)$$

où

$$f_{dw} = -\frac{\varphi^2}{2} + \frac{\varphi^4}{4}. \quad (12)$$

Ce double puits de potentiel qui est couramment utilisé dans la littérature possède des minima en $\varphi = 1$ et $\varphi = -1$. La constante $H = \gamma / (\frac{2\sqrt{2}}{3} W_0)$ est exprimée en énergie par unité de volume, W_0 étant l'épaisseur d'interface et γ l'énergie de surface solide-liquide. Le premier terme garantit une épaisseur finie d'interface et σ est une constante exprimée en énergie par unité de longueur. Le troisième terme s'écrit

$$f_{AB}(\varphi, c, T) = \frac{RT_0}{v_0} [c \ln(c) - c] + e(\varphi)c + \frac{\tilde{g}(\varphi)}{2} \frac{L}{T_0} (T - T_0), \quad (13)$$

avec

$$e(\varphi) = \tilde{g}(\varphi) \frac{\Delta e}{2}, \quad (14)$$

où $\tilde{g}(\varphi)$ et $e(\varphi)$ sont les fonctions d'interpolation d'entropie et d'énergie interne, $\Delta e = e_s - e_\ell$ la différence de l'énergie interne entre le solide et le liquide, R la constante des gaz parfaits, T_0 la température de fusion du corps pur, L la chaleur latente spécifique de fusion du cristal et v_0 le volume molaire du soluté. Le champ de phase est un paramètre d'ordre non conservé, on écrit donc l'équation de relaxation :

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -K \frac{\delta F}{\delta \varphi} \quad (15)$$

avec K une constante cinétique positive. On remarque que l'augmentation de φ au cours du temps (solidification) entraîne la diminution de l'énergie libre. En calculant la dérivée fonctionnelle $\frac{\delta F}{\delta \varphi}$ on obtient,

$$\frac{1}{K} \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \sigma \nabla^2 \varphi - H f'_{dw} + e'(\varphi)c + \frac{\tilde{g}'(\varphi)}{2} \frac{L}{T_0} (T - T_0), \quad (16)$$

soit, en divisant par H ,

$$\tau_0 \frac{\partial \varphi}{\partial t} = W_0^2 \nabla^2 \varphi + \varphi - \varphi^3 + \frac{\tilde{g}'(\varphi)}{H} \left[\frac{\Delta e}{2} c + \frac{L}{T_0} (T - T_0) \right], \quad (17)$$

où le temps de relaxation s'écrit

$$\tau_0 = \frac{1}{KH}, \quad (18)$$

et l'épaisseur d'interface prend la forme

$$W_0 = \sqrt{\frac{\sigma}{H}}. \quad (19)$$

Le champ de concentration obéit à une équation de la conservation de la masse,

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot \left(M(\varphi, c) \vec{\nabla} \frac{\delta F}{\delta t} \right), \quad (20)$$

où $M(\varphi, c) = v_0 D q(\varphi) c / RT_0$ est la mobilité des atomes de soluté, $q(\varphi)$ une fonction d'interpolation et D le coefficient de diffusion du soluté dans le liquide. Les propriétés d'équilibre du modèle sont imposées par les équations

$$\frac{\delta F}{\delta c} = \mu_E, \quad (21)$$

$$\frac{\delta F}{\delta \varphi} = 0, \quad (22)$$

où μ_E est le potentiel chimique à l'équilibre. Pour mesurer la variation du potentiel chimique μ par rapport à sa valeur d'équilibre on introduit une variable adimensionnée u qui, en tenant compte de l'équation (21), s'écrit [10, 13]

$$u = \frac{v_0}{RT_0} (\mu - \mu_E) \quad (23)$$

$$= \ln \left\{ \frac{2c}{c_l^0 [1 + k - (1 - k) \tilde{g}(\varphi)]} \right\}, \quad (24)$$

où $c_l^0 = c(T_{eq}) = c_\infty / k$ est la concentration du liquide à la température d'équilibre T_{eq} . L'équation d'évolution du champ de phase s'écrit donc d'après (17)

$$\tau_0 \frac{\partial \varphi}{\partial t} = W_0^2 \nabla^2 \varphi + \varphi - \varphi^3 + \frac{C}{1 - k} \tilde{g}'(\varphi) \left(e^u - 1 - \frac{T - T_0}{m c_l^0} \right), \quad (25)$$

avec le coefficient de couplage concentration/température

$$C = \frac{2\sqrt{2}}{3} W_0 \Delta T_0 / (2\Gamma), \quad (26)$$

le coefficient de Gibbs-Thomson

$$\Gamma = \frac{\gamma T_0}{L}, \quad (27)$$

et l'écart thermique entre le Liquidus et le Solidus

$$\Delta T_0 = mc_\infty \frac{k-1}{k}. \quad (28)$$

L'équation d'évolution de la concentration s'écrit donc

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot \left[Dq(\varphi) c \vec{\nabla} u + \frac{1}{2\sqrt{2}} W_0 (1-k) c_l^0 e^u \frac{\partial \varphi}{\partial t} \vec{n} \right], \quad (29)$$

le vecteur $\vec{n} = -\frac{\vec{\nabla} \varphi}{|\vec{\nabla} \varphi|}$ étant le vecteur unitaire normal à l'interface. Pour simplifier les équations, on considère dans la suite le champ U défini par

$$\begin{aligned} U &= \frac{e^u - 1}{1 - k} \\ &= \frac{1}{1 - k} \left[\frac{2c/c_l^0}{1 + k - (1 - k)h(\varphi)} - 1 \right], \end{aligned} \quad (30)$$

où la fonction $\tilde{g}(\varphi)$ de l'équation (24) est remplacée par la fonction $h(\varphi)$ (dans la formulation non variationnelle). En tenant compte de la température imposée par le four,

$$T(z) = T_{eq} + G(z - V_p t), \quad (31)$$

où G est le gradient de température, V_p la vitesse de tirage et z la coordonnée dans la direction de croissance, l'équation (25) devient

$$\tau_0 \frac{\partial \varphi}{\partial t} = W_0^2 \nabla^2 \varphi + \varphi - \varphi^3 - C \tilde{g}'(\varphi) \left(U + \frac{z - V_p t}{l_T} \right), \quad (32)$$

où la longueur thermique

$$l_T = \frac{m(k-1)c_l^0}{G}. \quad (33)$$

Avec le choix $h(\varphi) = \varphi$ qui est utilisé dans les simulations numériques, l'équation d'évolution de U devient,

$$\begin{aligned} \left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2} \varphi \right) \frac{\partial U}{\partial t} &= \vec{\nabla} \cdot \left\{ Dq(\varphi) \vec{\nabla} U + \frac{1}{2\sqrt{2}} W_0 [1 + (1-k)U] \frac{\partial \varphi}{\partial t} \vec{n} \right\} \\ &\quad + \frac{1}{2} [1 + (1-k)U] \frac{\partial \varphi}{\partial t}. \end{aligned} \quad (34)$$

L'objectif est maintenant de raccorder le modèle du champ de phase donné par les équations (32) et (34) au modèle physique décrit par les équations (4), (5) et (10) du chapitre précédent. La procédure pour relier les paramètres du modèle aux paramètres physiques est la méthode du développement asymptotique.

2.2 Analyse asymptotique

L'analyse asymptotique commence par un changement de variable. On utilise la longueur capillaire d_0 comme unité de longueur ℓ et $t_0 = d_0^2/D$ comme unité de temps t . Les grandeurs se transforment donc comme

$$\ell \rightarrow \ell' = \frac{\ell}{d_0} \quad (35)$$

et

$$t \rightarrow t' = \frac{tD}{d_0^2} = \frac{t}{t_0}. \quad (36)$$

Sans perte de généralité, nous posons $t = 0$ de telle sorte que le terme $V_p t$ s'annule dans l'équation (32). Après le passage aux variables sans dimension, on obtient

$$\alpha \xi^2 \frac{\partial \varphi}{\partial t'} = \xi^2 \nabla'^2 \varphi + \varphi - \varphi^3 - a_1 \xi \tilde{g}'(\varphi)(U + \nu z') \quad (37)$$

pour l'évolution du champ de phase, avec le coefficient de diffusion adimensionné $\alpha = D\tau/W_0^2$, l'épaisseur adimensionnée de l'interface $\xi = W_0/d_0$, le rapport $\nu = d_0/l_T$ et a_1 une constante qui sera définie plus loin.

Pour le champ U , l'équation (34) devient

$$\begin{aligned} \left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2} \varphi \right) \frac{\partial U}{\partial t'} &= \vec{\nabla}' \cdot \left\{ q(\varphi) \vec{\nabla}' U + \frac{\xi}{2\sqrt{2}} \left[1 + (1-k)U \right] \frac{\partial \varphi}{\partial t'} \vec{n} \right\} \\ &+ \frac{1}{2} \left[1 + (1-k)U \right] \frac{\partial \varphi}{\partial t'}. \end{aligned} \quad (38)$$

Pour simplifier l'écriture, on omettra les primes correspondant aux variables adimensionnées dans la suite. Le calcul complet du développement asymptotique est assez technique. Il a été présenté en détail dans plusieurs publications [10, 14]. Pour ne pas répéter ces longs développements, on le limitera ici à l'ordre 1 en rappelant les grandes lignes du calcul. L'épaisseur adimensionnée de l'interface $\xi = W_0/d_0$ détermine le raccordement entre la zone interne (ZI) et la zone externe (ZE). Elle est donc choisie comme paramètre du développement de perturbation,

$$\varphi = \varphi_0 + \xi \varphi_1 + \xi^2 \varphi_2 + \dots \quad (\text{ZI}) \quad (39)$$

$$\hat{\varphi} = \hat{\varphi}_0 + \xi \hat{\varphi}_1 + \xi^2 \hat{\varphi}_2 + \dots \quad (\text{ZE}) \quad (40)$$

$$U = U_0 + \xi U_1 + \xi^2 U_2 + \dots \quad (\text{ZI}) \quad (41)$$

$$\hat{U} = \hat{U}_0 + \xi \hat{U}_1 + \xi^2 \hat{U}_2 + \dots \quad (\text{ZE}) \quad (42)$$

– *Résolution à l'ordre 0*

A l'ordre 0, on obtient à partir de l'équation (37)

$$\hat{\varphi}_0 - \hat{\varphi}_0^3 = 0 \quad (43)$$

ce qui implique (comme attendu) que le champ de phase prend une de ses valeurs d'équilibre $\hat{\varphi}_0 = \pm 1$ loin de l'interface ou $\hat{\varphi}_0 = 0$ à l'interface. La zone interne est destinée à décrire le système à l'échelle W_0 de l'épaisseur de l'interface. Le paramètre d'ordre dans la direction normale à l'interface varie très rapidement, sur une distance de quelques longueurs capillaires seulement. En revanche, dans la direction tangente à l'interface la variation s'étend sur une longueur de l'ordre du rayon de courbure des microstructures. Pour ajuster les deux échelles de longueur, nous définissons une nouvelle variable d'espace

$$\eta = \frac{r}{\xi}, \quad (44)$$

où r est la coordonnée suivant la direction normale à l'interface située en $r = 0$. Il suffit alors d'utiliser les formules classiques de la géométrie différentielle pour développer les opérateurs dans le nouveau repère dont l'origine est située en $\eta = 0$ (interface) et la vitesse est v_n . En négligeant la vitesse tangentielle v_t et la dérivée par rapport au temps d_t on obtient pour un scalaire X donné

$$\frac{\partial X}{\partial t} \simeq -\frac{1}{\xi} v_n \partial_\eta X \quad (45)$$

$$\nabla^2 X = \frac{1}{\xi^2} \partial_\eta^2 X + \frac{1}{\xi} \kappa \partial_\eta X - \kappa^2 \eta \partial_\eta X + \partial_s^2 X \quad (46)$$

$$z = z_i + \xi(\hat{n} \cdot \hat{z})\eta, \quad (47)$$

avec v_n la vitesse normale à l'interface, s la coordonnée suivant la direction tangentielle et z_i la position d'un point de l'interface. Dans le passage de la variable r à η , chaque dérivée spatiale première contribue par un facteur ξ^{-1} aux équations d'évolution de U et de φ . Donc l'équation (37) d'évolution du champ de phase φ devient

$$\begin{aligned} \partial_\eta^2 \varphi - f'_{dw}(\varphi) &+ \xi \left[(\kappa + \beta' v_n) \partial_\eta \varphi - a_1 \tilde{g}'(\varphi) (U + \nu z_i) \right] \\ &+ \xi^2 \left[-\kappa^2 \eta \partial_\eta \varphi + \partial_s^2 \varphi - a_1 \nu \tilde{g}'(\varphi) (\hat{n} \cdot \hat{z}) \eta \right] = 0, \end{aligned} \quad (48)$$

et l'équation (38) du champ U s'écrit

$$\begin{aligned} \partial_\eta \left(q(\varphi) \partial_\eta U \right) &+ \xi^2 \left[-\kappa^2 \eta q(\varphi) \partial_\eta U + \frac{\kappa v_n}{2\sqrt{2}} \left(1 + (1-k)U \right) \partial_\eta \varphi + \partial_s \left(q(\varphi) \partial_s U \right) \right] \\ &+ \xi \left\{ \left[v_n \left(\frac{1+k}{2} - \frac{1-k}{2} \varphi \right) + \kappa q(\varphi) \right] \partial_\eta U - \frac{v_n}{2} \left[1 + (1-k)U \right] \partial_\eta \varphi \right. \\ &\left. + \frac{v_n}{2\sqrt{2}} \partial_\eta \left[\left(1 + (1-k)U \right) \partial_\eta \varphi \right] \right\}. \end{aligned} \quad (49)$$

A l'ordre 0, l'équation du champ de phase dans la ZI devient

$$\partial_\eta^2 \varphi_0 + \varphi_0 - \varphi_0^3 = 0. \quad (50)$$

En tenant en compte de $\varphi_0 = 1$ loin dans le solide ($\eta \ll 0$) et $\varphi_0 = -1$ loin dans le liquide ($\eta \gg 0$) on obtient la solution

$$\varphi_0 = -\tanh\left(\frac{\eta}{\sqrt{2}}\right). \quad (51)$$

Pour résoudre l'équation d'évolution de U , on précise la condition de raccordement, qui est définie pour $\xi \rightarrow 0$,

$$\lim_{\eta \rightarrow \pm\infty} \left[U_0(\eta) - \hat{U}_0|\pm \right] = 0, \quad (52)$$

où $\hat{U}_0|\pm$ sont les limites du champ extérieur, le symbole $|\pm$ signifiant qu'il est évalué de part et d'autre de l'interface. A l'ordre zéro, l'équation de diffusion du soluté se réduit à la forme suivante :

$$\xi^{-2} \partial_\eta^2 U_0 = 0. \quad (53)$$

Par conséquent, en tenant compte des conditions de raccordement, on obtient une constante par rapport à η

$$U_0 = \bar{U}_0(s). \quad (54)$$

– *Résolution à l'ordre 1*

En conservant les termes à l'ordre un dans l'équation (48) du paramètre d'ordre φ on obtient

$$\partial_\eta^2 \varphi_1 - f''_{dw}(\varphi_0) \varphi_1 + (\kappa + \alpha v_n) \partial_\eta \varphi_0 - a_1 \tilde{g}'(\varphi_0) (U_0 + \nu z_i) = 0. \quad (55)$$

Cette équation différentielle pour la fonction φ_1 peut être réécrite sous la forme

$$L_1 \varphi_1 = E_1, \quad (56)$$

avec l'opérateur linéaire

$$L_1 = \partial_\eta^2 - f''_{dw}(\varphi_0) \quad (57)$$

et

$$E_1 = a_1 \tilde{g}'(\varphi_0) (U_0 + \nu z_i) - (\kappa + \alpha v_n) \partial_\eta \varphi_0. \quad (58)$$

Or d'après l'équation (50)

$$L_1 \partial_\eta \varphi_0 = \left(\partial_\eta^2 - f''_{dw}(\varphi_0) \right) \partial_\eta \varphi_0 \quad (59)$$

$$= \partial_\eta \left(\partial_\eta^2 \varphi_0 - f'_{dw}(\varphi_0) \right) = 0. \quad (60)$$

donc L_1 a comme fonction propre $\partial_\eta \varphi_0$ pour la valeur propre zéro. Par conséquent, la solution φ_1 existe si et seulement si

$$0 = \int_{-\infty}^{+\infty} d\eta E_1 \partial_\eta \varphi_0 = a_1 (U_0 + \nu z_i) J + (\alpha v_n + \kappa) I, \quad (61)$$

avec $I = \int_{-\infty}^{+\infty} (\partial_\eta \varphi_0)^2 d\eta$ et $J = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{g}'(\varphi_0) \partial_\eta \varphi_0 d\eta$. Le degré de liberté restant permet le choix

$$a_1 = \frac{I}{J}, \quad (62)$$

et cette intégrale permet d'établir l'expression

$$\bar{U}_0(s) = -(\kappa + \alpha v_n + \nu z_i), \quad (63)$$

qui est identique à la forme adimensionnée de la relation de Gibbs-Thomson (10) avec $\alpha = \beta D/d_0$ où β est le coefficient cinétique. Comme U_0 est une constante, $\partial_\eta U_0$ s'annule et les termes d'ordre $O(\xi^1)$ de l'équation de diffusion (49) donnent

$$\begin{aligned} \partial_\eta \left[q(\varphi_0) \partial_\eta U_1 + \frac{v_n}{2\sqrt{2}} \left(1 + (1-k)U_0 \right) \partial_\eta \varphi_0 \right] \\ - \frac{1}{2} v_n \left(1 + (1-k)U_0 \right) \partial_\eta \varphi_0 = 0. \end{aligned} \quad (64)$$

En intégrant une première fois cette équation par rapport η , on obtient le flux à travers l'interface,

$$q(\varphi_0) \partial_\eta U_1 - \frac{v_n}{2} \left(1 + (1-k)U_0 \right) \left(\varphi_0 - \frac{1}{\sqrt{2}} \partial_\eta \varphi_0 \right) = A_1(s), \quad (65)$$

Pour déterminer $A_1(s)$, on considère la condition de raccordement suivante

$$\lim_{\eta \rightarrow \pm\infty} \left[U_1(\eta) - \hat{U}_1 |^\pm - \eta \partial_r \hat{U}_0 |^\pm \right] = 0 \quad (66)$$

qui donne

$$A_1(s) = -\frac{v_n}{2} \left(1 + (1-k)U_0(s) \right). \quad (67)$$

On intègre à nouveau l'équation (65) entre 0 et η et on obtient

$$U_1 = \bar{U}_1 + \frac{v_n}{2} \left(1 + (1-k)U_0 \right) \int_0^\eta \frac{\varphi_0 - \partial_\epsilon \varphi_0 / \sqrt{2} - 1}{q(\varphi_0)} d\epsilon \quad (68)$$

où $q(\varphi_0) \neq 0$ et $\bar{U}_1$ est la valeur de U_1 à l'interface ($\eta = 0$). Cette solution sera utile pour la suite de l'analyse asymptotique.

A l'ordre deux on procède de la même manière qu'à l'ordre un. Les fonctions q et $\tilde{g}$ sont choisies pour retrouver la relation de Gibbs-Thomson :

$$q(\varphi) = (1 - \varphi)/2, \quad (69)$$

et

$$\tilde{g}'(\varphi) = (1 - \varphi^2)^2. \quad (70)$$

Par conséquent, d'après l'équation (62), $a_1 = 5\sqrt{2}/8$. Pour le matériau considéré ici les interfaces sont rugueuses, il est donc raisonnable d'annuler le terme d'attachement cinétique β , ce qui est assuré en imposant un couplage

$$C = \frac{\tau_0 D}{a_2 W_0^2}, \quad (71)$$

avec $a_2 = 47/75$, $\tau_0 = a_0 W_0^3 / (D d_0)$ et $a_0 = 47\sqrt{2}/120$ [14].

2.3 Anisotropie de l'énergie de surface

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

$$\gamma(\vec{n}) = \gamma_0 a_s(\vec{n}), \quad (72)$$

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

$$a_s(\vec{n}) = (1 - 3\varepsilon_4) + 4\varepsilon_4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4), \quad (73)$$

avec (n_x, n_y, n_z) les trois composantes de la normale à l'interface $\vec{n}$ suivant les axes cristallins (x, y, z) et ε_4 la valeur de l'anisotropie. On peut incorporer la fonction d'anisotropie au modèle du champ de phase par l'intermédiaire de l'épaisseur d'interface [19]

$$W(\vec{n}) = W_0 a_s(\vec{n}) = W_0 \left[(1 - 3\varepsilon_4) + 4\varepsilon_4(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) \right], \quad (74)$$

et du temps de relaxation

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 a_s^2(\vec{n}). \quad (75)$$

Dans l'équation (19), W_0 étant remplacé par $W(\vec{n})$, le paramètre énergétique σ devient

$$\sigma = W(\vec{n})^2 H. \quad (76)$$

Par rapport à l'analyse asymptotique précédente, on utilise ici l'épaisseur d'interface W_0 comme unité de longueur et le temps de relaxation τ_0 comme unité de temps. Les longueurs sont donc

adimensionnées suivant $\tilde{\ell} = \ell/W_0$ et le temps suivant $\tilde{t} = t/\tau_0$. En raisonnant de la même manière que précédemment, l'équation d'évolution du champ de phase φ s'écrit

$$\begin{aligned} \left[1 - (1-k)\frac{\tilde{z} - \tilde{V}_p\tilde{t}}{\tilde{l}_T}\right] a_s(\vec{n})^2 \frac{\partial \varphi}{\partial \tilde{t}} &= \tilde{\nabla} \cdot [a_s(\vec{n})^2 \tilde{\nabla} \varphi] \\ &+ \sum_{\tilde{\ell}=\tilde{x},\tilde{y},\tilde{z}} \partial_{\tilde{\ell}} \left(|\tilde{\nabla} \varphi|^2 a_s(\vec{n}) \frac{\partial a_s(\vec{n})}{\partial (\partial_{\tilde{\ell}} \varphi)} \right) \\ &+ (1 - \varphi^2) \left(\varphi - C(1 - \varphi^2) \right) \left(U + \frac{\tilde{z} - \tilde{V}_p\tilde{t}}{\tilde{l}_T} \right). \end{aligned} \quad (77)$$

Pour corriger des termes parasites liés à la courbure de l'interface et à la vitesse de croissance v_n [10], le temps de relaxation τ a été remplacé ici par

$$\tau(\vec{n}) = \tau_0 \left(1 - (1-k)\frac{\tilde{z} - \tilde{V}_p\tilde{t}}{\tilde{l}_T} \right) a_s^2(\vec{n}). \quad (78)$$

A l'aide du même adimensionnement, l'équation d'évolution de la concentration devient

$$\begin{aligned} (\alpha_p - \beta_p \varphi) \frac{\partial U}{\partial \tilde{t}} &= \tilde{\nabla} \cdot \left[\tilde{D}(1 - \varphi) \tilde{\nabla} U - \frac{(1 + \beta_p U)}{\sqrt{2}} \frac{\partial \varphi}{\partial \tilde{t}} \vec{n} \right] \\ &+ [1 + (1-k)U] \frac{\partial \varphi}{\partial \tilde{t}}, \end{aligned} \quad (79)$$

où $\alpha_p = (1+k)$, $\beta_p = (1-k)$ et $\tilde{D} = D\tau_0/W_0^2$. Pour simplifier l'écriture on omettra les tildes dans la suite.

2.4 Préconditionnement

La variation du champ de phase φ se fait dans un petit intervalle de longueur, ce qui rend difficile le suivi de l'interface sur le maillage numérique. Le principe du preconditionnement est d'effectuer un changement de variable pour linéariser ce profil et donc le rendre moins abrupt (figure 5) [15, 20]. La nouvelle variable est donnée par

$$\psi = \sqrt{2} \tanh^{-1}(\varphi) \quad (80)$$

et d'après l'équation (51) $\psi = -\tilde{r}$ est une fonction de distance signée à l'ordre zéro. Ce changement de variable permet, pour une précision numérique donnée, d'utiliser un pas de réseau et un pas de temps plus grands, ce qui réduit considérablement le temps de calcul. Les équations

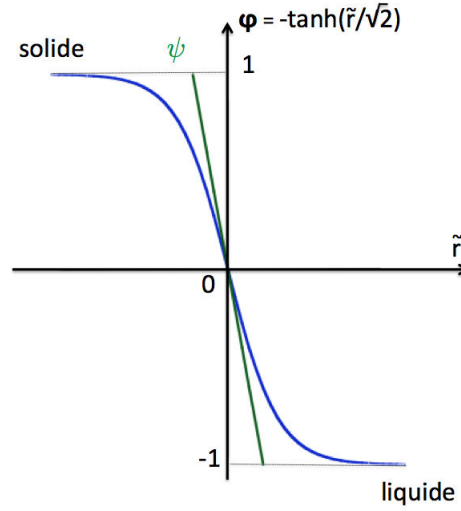


FIGURE 5 – Représentation graphique du champ de phase preconditionné ψ en comparaison avec le champ de phase habituel φ .

incluant le champ ψ sont obtenues à partir des dérivées partielles du premier ordre,

$$\partial_\ell \varphi = \frac{1}{\sqrt{2}}(1 - \varphi^2)\partial_\ell \psi, \quad \ell = x, y, z \quad (81)$$

$$\partial_t \varphi = \frac{1}{\sqrt{2}}(1 - \varphi^2)\partial_t \psi, \quad (82)$$

et des dérivées du second ordre,

$$\begin{aligned} \partial_\ell^2 \varphi &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[-2\varphi \partial_\ell \varphi \partial_\ell \psi + (1 - \varphi^2) \partial_\ell^2 \psi \right] \\ &= \frac{1 - \varphi^2}{\sqrt{2}} \left[\partial_\ell^2 \psi - \sqrt{2} \varphi (\partial_\ell \psi)^2 \right]. \end{aligned} \quad (83)$$

Le Laplacien s'écrit donc

$$\nabla^2 \varphi = \frac{1 - \varphi^2}{\sqrt{2}} \left[\nabla^2 \psi - \sqrt{2} \varphi |\vec{\nabla} \psi|^2 \right], \quad (84)$$

et pour $|\varphi| \neq 1$ le vecteur unitaire normal à l'interface a pour composantes

$$n_\ell = -\frac{\partial_\ell \varphi}{|\vec{\nabla} \varphi|} = -\frac{\partial_\ell \psi}{|\vec{\nabla} \psi|} \quad \text{avec } \ell = x, y, z. \quad (85)$$

En remplaçant φ par ψ selon les relations ci-dessus, chaque terme de l'équation (77) peut être simplifié par un facteur $\frac{1-\varphi^2}{\sqrt{2}}$ si $\varphi \neq \pm 1$ (région interfaciale). Selon l'équation (84), un terme supplémentaire apparaît dans l'expression de $\nabla^2 \varphi$ et l'équation d'évolution du champ de phase devient

$$\begin{aligned} \left[1 - (1-k)\frac{z - V_p t}{l_T}\right] a_s(\vec{n})^2 \frac{\partial \psi}{\partial t} &= \sqrt{2} \left[\varphi - C(1 - \varphi^2) \left(U + \frac{z - V_p t}{l_T} \right) \right] \\ &+ a_s(\vec{n})^2 \left[\nabla^2 \psi - \sqrt{2} \varphi |\vec{\nabla} \psi|^2 \right] \\ &+ 2a_s(\vec{n}) \vec{\nabla} a_s(\vec{n}) \vec{\nabla} \psi + \frac{\sqrt{2}}{(1 - \varphi^2)} \vec{\nabla} \vec{A}. \end{aligned} \quad (86)$$

Les composantes du vecteur d'anisotropie $\vec{A}$ s'écrivent ici

$$A_\ell = 16\varepsilon_4 \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} |\vec{\nabla} \psi| a_s(\vec{n}) n_\ell \left[(n_x^4 + n_y^4 + n_z^4) - n_\ell^2 \right] \quad \text{avec } \ell = x, y, z. \quad (87)$$

De la même manière l'équation (79) donnant l'évolution de la concentration devient

$$\begin{aligned} \left(\alpha_p - \beta_p \varphi \right) \frac{\partial U}{\partial t} &= D \vec{\nabla} \cdot \left[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U \right] + \left[1 + (1 - k) U \right] \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} \frac{\partial \psi}{\partial t} \\ &+ \vec{\nabla} \cdot \left[\left(1 + (1 - k) U \right) \frac{(1 - \varphi^2)}{2} \frac{\partial \psi}{\partial t} \frac{\vec{\nabla} \psi}{|\vec{\nabla} \psi|} \right]. \end{aligned} \quad (88)$$

2.5 Courant correctif

Durant la solidification d'un alliage binaire, le saut de concentration qui s'établit à l'interface peut conduire à un piégeage important de soluté à grande vitesse. Ce piégeage est artificiellement amplifié par le modèle de champ de phase, même aux faibles vitesses. Un courant correctif a été introduit par Alain Karma et ses collaborateurs [10, 13] pour éviter le piégeage artificiel du soluté dans le solide. Ce courant correctif $\vec{j}$ qui a déjà été incorporé aux équations précédentes a pour expression

$$\vec{j} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \beta_p c_\ell^0 W_0 B \vec{n}, \quad (89)$$

où

$$B = \left(1 + \beta_p U \right) \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{1 - \varphi^2}{\sqrt{2}} \left(1 + \beta_p U \right) \frac{\partial \psi}{\partial t}. \quad (90)$$

Avec ces notations, l'équation d'évolution de la concentration devient

$$\begin{aligned} \left(\alpha_p - \beta_p \varphi \right) \frac{\partial U}{\partial t} = & (1 - \varphi) D \nabla^2 U - \frac{(1 - \varphi^2)}{\sqrt{2}} D \vec{\nabla} \psi \vec{\nabla} U \\ & - \frac{1}{\sqrt{2}} \vec{n} \vec{\nabla} B + B \left(1 - \frac{\vec{\nabla} \vec{n}}{\sqrt{2}} \right). \end{aligned} \quad (91)$$

2.6 Discrétisation

Les équations (86, 91) sont résolues à l'aide des définitions des équations (73, 90) par la méthode des différences finies sur un maillage cubique de pas h . Quelques aspects de la discrétisation utilisée ont besoin d'être détaillés.

Le laplacien du champ de phase ψ sur un point de maillage (i, j, k) est écrit

$$\nabla^2 \psi_{i,j,k} = \frac{\psi_{i+1,j,k} + \psi_{i-1,j,k} + \psi_{i,j+1,k} + \psi_{i,j-1,k} + \psi_{i,j,k+1} + \psi_{i,j,k-1} - 6\psi_{i,j,k}}{h^2} \quad (92)$$

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

$$(\partial_x \psi)_{i,j,k} = \left(\frac{\psi_{i+1,j,k} - \psi_{i-1,j,k}}{2h} \right). \quad (93)$$

La composante suivant x de la normale à l'interface $\vec{n} = -\vec{\nabla} \psi / |\vec{\nabla} \psi|$ est définie comme

$$n_{x,i,j,k} = - \frac{1}{|\vec{\nabla} \psi|_{i,j,k}} (\partial_x \psi)_{i,j,k}. \quad (94)$$

Pour les autres directions, y et z , nous procédons de la même manière. Afin d'éviter des calculs inutiles dans la phase liquide et donc de gagner un temps de calcul important, le champ de phase ψ est calculé uniquement sur la partie basse du domaine. Dans nos simulations, sa hauteur est fixée à celle du solide augmentée d'une petite couche de liquide d'une douzaine de points de maillage de hauteur pour bien s'assurer que le champ φ atteint la valeur 1 avec une précision de 10^{-5} environ. En ce qui concerne le champ de concentration U , il est calculé sur la totalité du domaine sachant que l'on s'assure que le liquide a une hauteur au moins égale à $10D/V_P$, une contrainte qui s'avère nécessaire pour bien approcher la valeur asymptotique de U à la précision voulue (à 10^{-5} près en simple précision). La divergence d'un courant $\vec{J}$ sur un point donné (i, j, k) est calculée en additionnant l'ensemble des courants vers les points voisins comme décrit dans [10]. Si nous notons $[\vec{J}]_{i \rightarrow i+1}$ le courant $\vec{J}$ entre le point (i, j, k) et le point $(i+1, j, k)$, la divergence de $\vec{J}$ au point (i, j, k) s'écrit donc

$$(\vec{\nabla} \cdot \vec{J})_{i,j,k} = \frac{1}{h} \left\{ [\vec{J}]_{i \rightarrow i+1} + [\vec{J}]_{i \rightarrow i-1} + [\vec{J}]_{j \rightarrow j+1} + [\vec{J}]_{j \rightarrow j-1} + [\vec{J}]_{k \rightarrow k+1} + [\vec{J}]_{k \rightarrow k-1} \right\}. \quad (95)$$

Réécrivons l'équation de la concentration pour bien distinguer les termes discrétisés

$$\begin{aligned}
(\alpha_p - \beta_p \varphi) \frac{\partial U}{\partial t} &= D \vec{\nabla} \cdot [(1 - \varphi) \vec{\nabla} U] && \text{(terme 1)} \\
&- \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{1}{\sqrt{2}} B \vec{n} \right) && \text{(terme 3)} \\
&+ B && \text{(terme 2)}. \tag{96}
\end{aligned}$$

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

$$[(1 - \varphi) \vec{\nabla} U]_{i \rightarrow i+1} = \left(\frac{2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i+1,j,k}}{2} \right) \left(\frac{U_{i+1,j,k} - U_{i,j,k}}{h} \right), \tag{97}$$

Pour les autres liens nous procédons de la même manière. Par conséquent, le premier terme de l'équation (96) est discrétisé comme

$$\begin{aligned}
(D \vec{\nabla} \cdot [(1 - \varphi) \vec{\nabla} U])_{i,j,k} &= \frac{D}{2h^2} \left[(2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i+1,j,k})(U_{i+1,j,k} - U_{i,j,k}) \right. \\
&+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i-1,j,k})(U_{i-1,j,k} - U_{i,j,k}) \\
&+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j+1,k})(U_{i,j+1,k} - U_{i,j,k}) \\
&+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j-1,k})(U_{i,j-1,k} - U_{i,j,k}) \\
&+ (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j,k+1})(U_{i,j,k+1} - U_{i,j,k}) \\
&\left. + (2 - \varphi_{i,j,k} - \varphi_{i,j,k-1})(U_{i,j,k-1} - U_{i,j,k}) \right]. \tag{98}
\end{aligned}$$

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

$$[\partial_y \psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i,j+1,k} - \psi_{i,j-1,k} + \psi_{i+1,j+1,k} - \psi_{i+1,j-1,k}}{4h}, \tag{99}$$

$$\tag{100}$$

$$[\partial_z \psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i,j,k+1} - \psi_{i,j,k-1} + \psi_{i+1,j,k+1} - \psi_{i+1,j,k-1}}{4h}. \tag{101}$$

La composante parallèle à la liaison est plus simplement donné par

$$[\partial_x \psi]_{i \rightarrow i+1} = \frac{\psi_{i+1,j,k} - \psi_{i,j,k}}{h}. \tag{102}$$

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

$$\begin{aligned}
\left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{i \rightarrow i+1} &= -\left[(1 + \beta_p U) \frac{(1 - \varphi^2)}{2} \frac{\partial \psi}{\partial t} \frac{\vec{\nabla} \psi}{|\vec{\nabla} \psi|}\right]_{i \rightarrow i+1} \\
&= \frac{1}{2} \left[(1 + \beta_p U_{i,j,k}) \frac{(1 - \varphi_{i,j,k}^2)}{2} \partial_t \psi_{i,j,k} \right. \\
&\quad \left. + (1 + \beta_p U_{i+1,j,k}) \frac{(1 - \varphi_{i+1,j,k}^2)}{2} \partial_t \psi_{i+1,j,k} \right] \\
&\quad \times \left\{ \frac{-[\partial_x \psi]_{i \rightarrow i+1}}{\sqrt{([\partial_x \psi]_{i \rightarrow i+1})^2 + ([\partial_y \psi]_{i \rightarrow i+1})^2 + ([\partial_z \psi]_{i \rightarrow i+1})^2}} \right\}. \tag{103}
\end{aligned}$$

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

$$\begin{aligned}
\left(\vec{\nabla} \cdot \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]\right)_{i,j,k} &= \frac{1}{h} \left\{ \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{i \rightarrow i+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{i \rightarrow i-1} \right. \\
&\quad + \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{j \rightarrow j+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{j \rightarrow j-1} \\
&\quad \left. + \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{k \rightarrow k+1} + \left[\frac{1}{\sqrt{2}}B\vec{n}\right]_{k \rightarrow k-1} \right\}. \tag{104}
\end{aligned}$$

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

$$\psi(t + \Delta t) := \psi(t) + \Delta t \partial_t \psi, \tag{105}$$

et

$$U(t + \Delta t) := U(t) + \Delta t \partial_t U, \tag{106}$$

où $:=$ représente une égalité au sens des différences finies. À trois dimensions, avec la discrétisation du laplacien (92), le critère de convergence de la méthode des différences finies nous impose la condition

$$\Delta t \leq \frac{h^2}{6D}, \tag{107}$$

pour le pas de temps. Dans la pratique, Δt dépend de la variable $\xi = W_0/d_0$ puisque D est adimensionné comme $\tilde{D} = D\tau_0/w_0^2$ avec $\tau_0 = a_0 W_0^3/(Dd_0)$. Les simulations numériques sont réalisées sur un réseau cubique de paramètre $h = 1.2$. Pour sélectionner cette valeur, un test de convergence a été effectué en fonction h . Pour cela, nous avons diminué le paramètre h jusqu'à ce que la valeur U_{tip} définie comme la concentration à la pointe, ne dévie pas de plus de 0.3% par rapport à celle obtenue à $h = 0.5$ (figure 6) [22].

Les conditions initiales imposées sont de deux types :

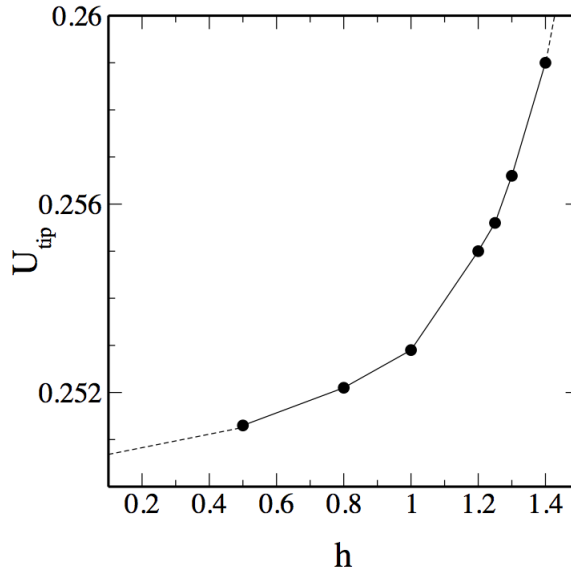


FIGURE 6 – Variation de la concentration à la pointe U_{tip} en fonction du pas de réseau h à une vitesse $V_p = 30\mu\text{m/s}$ et un gradient $G = 140\text{K/cm}$. La valeur de h retenue dans la suite est $h = 1.2$.

- dans les cas où on varie la vitesse de tirage V_p ou l'anisotropie ϵ_4 , on utilise une interface plane perturbée par un faible bruit.
- dans le cas d'un petit changement de la désorientation cristalline ou d'un changement de la taille du domaine à une vitesse fixe, on préfère partir de l'état final d'une simulation préalable pour suivre la même branche de solution.

Les dimensions des domaines numériques utilisés dans les simulations sont données dans le tableau (1).

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Largeur du domaine	x_0	10-1000	μm
Epaisseur du domaine	y_0	0-50	μm
Hauteur du solide	h_{sol}	180	μm

Tableau 1 – Dimensions physiques du domaine numérique.

2.7 Effets de l'épaisseur de l'interface

Au début de ce chapitre, nous avons montré que les équations du modèle du champ de phase se raccordent de manière asymptotique aux équations physiques. Ce raccordement devient satisfaisant lorsque le rapport $\xi = W_0/d_0$ est suffisamment petit, ce qui contraint l'épaisseur de l'interface à rester petite devant le rayon de courbure de la pointe [10]. Afin d'obtenir des résultats quantitatifs, il est donc nécessaire de faire une étude de convergence en diminuant le paramètre ξ , jusqu'à ce que les résultats numériques ne varient plus de manière significative avec l'épaisseur de l'interface W_0 . Le test de convergence effectué consiste à s'assurer qu'aucune ramification ne se produit en l'absence de bruit spatio-temporel imposé [3, 22, 23]. Ce test doit être reproduit à

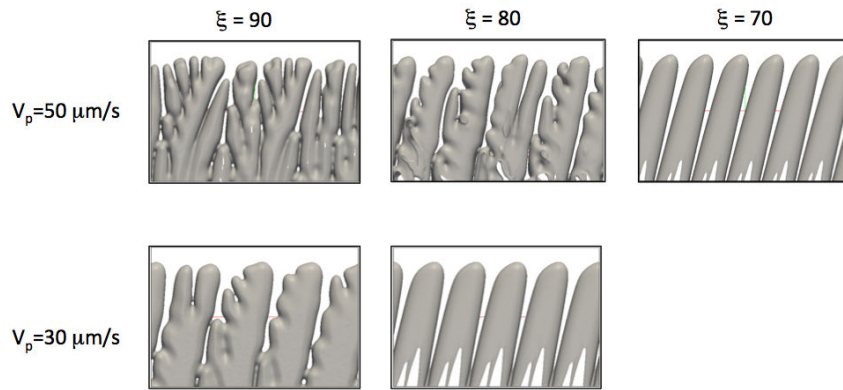


FIGURE 7 – Tests de convergence pour deux vitesses de tirage différentes pour une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$ et une désorientation cristalline $\theta_0 = 18^\circ$. Pour ξ , on retient les valeurs correspondant aux structures lisses.

chaque fois qu'un paramètre influant sur la courbure de la pointe des microstructures est modifié, comme la vitesse de tirage V_p , l'anisotropie ϵ_4 ou la désorientation θ_0 des axes cristallins par rapport à la direction du gradient thermique (qui sera définie dans le chapitre suivant). Dans la pratique, le paramètre de convergence ξ a donc été systématiquement réduit jusqu'à une valeur ξ_c pour laquelle les structures formées deviennent lisses (figure 7). Pour $\epsilon_4 = 1.1\%$ et $\theta_0 \leq 30^\circ$ ces tests nous ont permis de déterminer que ξ_c varie approximativement avec la vitesse de tirage suivant la relation

$$\xi_c = 90.0 - 0.5(V_p - V_0), \quad (108)$$

avec $V_0 = 10.0 \mu\text{m/s}$.

2.8 Introduction du bruit

Pour déclencher des instabilités secondaires comme les branchements dendritiques ou les modes oscillants, un bruit spatio-temporel est introduit en ajoutant une perturbation aléatoire dans l'équation du champ de phase ψ [3, 22, 23, 24]. L'évolution de ψ au cours du temps s'écrit sous la forme

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} := \frac{\psi(t + \Delta t) - \psi(t)}{\Delta t}, \quad (109)$$

Δt est le pas de temps numérique. En introduisant un bruit spatio-temporel $\eta(\vec{r}, t)$ de moyenne nulle cette relation devient

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} := \frac{\psi(t + \Delta t) - \psi(t)}{\Delta t} + \eta(\vec{r}, t). \quad (110)$$

Par conséquent,

$$\psi(t + \Delta t) := \psi(t) + \Delta t \partial_t \psi + \Delta t \eta(\vec{r}, t). \quad (111)$$

En un point donné, le bruit spatio-temporel ne dépend que du temps et ses corrélations temporelles doivent vérifier

$$\langle \eta(t) \eta(t') \rangle = F_0 \delta(t' - t), \quad (112)$$

où F_0 est une constante. Pour $t' = t + \Delta t$, en approximant $\delta(\Delta t)$ par une fonction porte

$$\langle \eta(t) \eta(t + \Delta t) \rangle = F_0 \delta(\Delta t) \simeq \frac{F_0}{\Delta t}. \quad (113)$$

La variable $\eta(t)$ peut être adimensionnée comme $\bar{\eta}(t) = \eta(t) / \sqrt{F_0 / \Delta t}$, ce qui donne

$$\psi(t + \Delta t) := \psi(t) + \Delta t \partial_t \psi + \sqrt{F_0 \Delta t} \bar{\eta}(t). \quad (114)$$

En posant $F = \sqrt{F_0}$, l'équation d'évolution de ψ au cours de temps s'écrit donc

$$\psi(t + \Delta t) := \psi(t) + \Delta t \partial_t \psi + F \sqrt{\Delta t} \bar{\eta}, \quad (115)$$

où F est l'amplitude du bruit et $\bar{\eta}$ une variable aléatoire uniforme variant de $-1/2$ à $1/2$. Une distribution gaussienne permettrait certainement d'avoir une meilleure description physique des fluctuations. Cependant, nous nous concentrons dans ce travail sur la présence (ou non) des branchements secondaires pour les structures inclinées, et sur l'existence (ou non) du mode oscillant. Pour ces instabilités secondaires la qualité du bruit n'est pas cruciale [3, 23]. De plus, la distribution uniforme permet de gagner un temps de calcul important car elle est plus rapide à générer et plus simple à utiliser numériquement. Lorsque l'on introduit un bruit uniforme dans nos simulations le temps de calcul augmente d'un facteur 1.75. La modélisation d'une distribution gaussienne nécessite des astuces et des opérations supplémentaires (calculs de cos, sin, log) et le temps de calcul augmente d'un facteur 2.5. Ceci explique donc le choix d'un bruit aléatoire uniforme dans nos simulations. Nous avons remarqué que la qualité du générateur de nombres aléatoires joue un rôle important sur le comportement des instabilités secondaires [25]. Ainsi, dans le cas du mode oscillant, un générateur de mauvaise qualité qui ne vérifie pas la relation de corrélation (112) ne permet pas d'obtenir des oscillations suffisamment régulières.

L'amplitude du bruit a été choisie en augmentant progressivement F jusqu'à obtenir des branches secondaires relativement stationnaires dans le cas des structures inclinées (figures 8, 9). Nous nous sommes assurés que l'amplitude choisie donne des branchements similaires aux résultats expérimentaux correspondants (figure 10). Dans nos simulations, l'amplitude F dépend seulement de l'anisotropie ϵ_4 et de la dimension du problème. Comme nous le verrons plus loin, elle prend des valeurs plus faibles dans les simulations bidimensionnelles (2D).

Dans la pratique, nous avons obtenu des valeurs de F de l'ordre de quelques pour cent (tableau 2). Ces valeurs peuvent être comparées à celles obtenues par Alain Karma et Wouter-Jan Rappel avec un bruit thermique correspondant à une distribution gaussienne [22]. Dans leurs simulations de solidification libre en 2D, ces auteurs utilisent un bruit conservé d'amplitude F_u dans l'équation de diffusion de la chaleur (puisque la chaleur est conservée) et un bruit non conservé d'amplitude F_φ dans l'équation du champ de phase. Ils établissent les relations :

$$F_u = \frac{k_B T_0^2 C_p}{L^2 W_0^3} \quad (116)$$

et

$$F_\varphi = a_1 J \xi F_u, \quad (117)$$

où k_B est la constante de Boltzmann et C_p la chaleur spécifique par unité de volume. Comme nous l'avons défini précédemment dans le paragraphe de l'analyse asymptotique, $a_1 J = I = 2\sqrt{2}/3 \simeq 1$ donc l'amplitude F_φ s'écrit comme

$$F_\varphi \simeq \xi F_u. \quad (118)$$

L'amplitude du bruit retenue par Alain Karma et Wouter-Jan Rappel, pour une anisotropie $\epsilon_4 = 3\%$, est $F_u = 2.5 \times 10^{-4}$. En prenant, comme dans nos simulations, $50 \leq \xi \leq 90$ on trouve

une amplitude F_φ de l'ordre de quelques pour cent ce qui est tout à fait comparable avec les amplitudes utilisées dans nos simulations 2D (tableau 2).

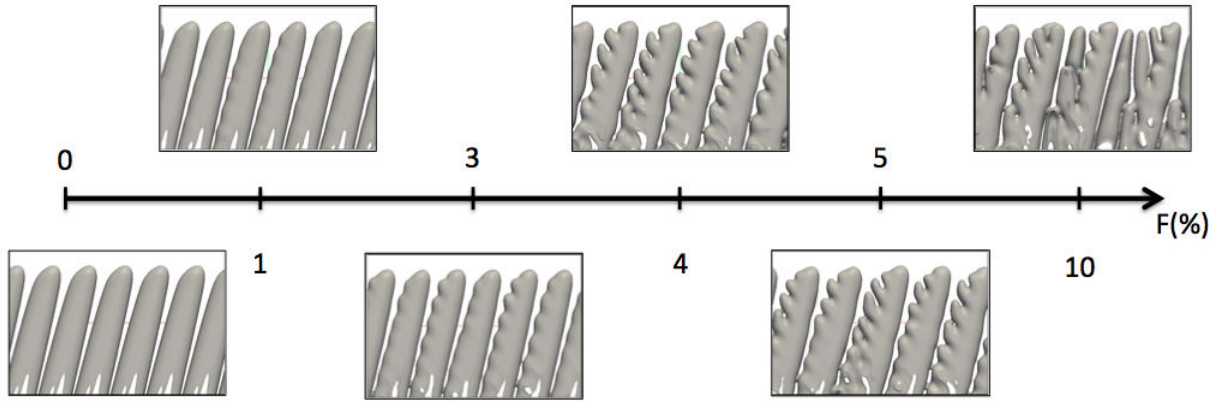


FIGURE 8 – Détermination de l'amplitude du bruit à 3D pour une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$. Évolution des branches secondaires en fonction de l'amplitude du bruit F pour une vitesse de tirage $V_p = 50\mu\text{m/s}$ et une désorientation cristalline $\theta_0 = 18^\circ$. L'amplitude retenue ici est $F = 5\%$. Au delà de cette valeur, les branches deviennent instables.

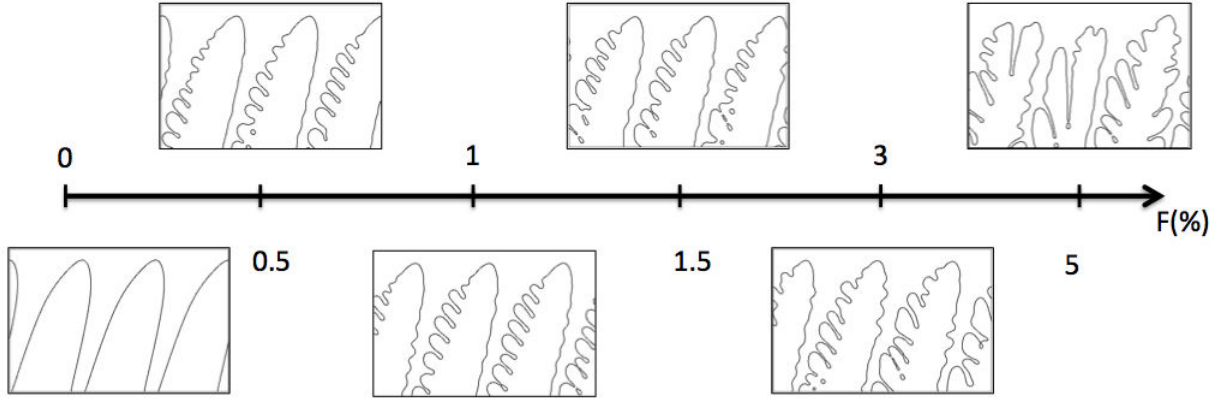


FIGURE 9 – Détermination de l'amplitude du bruit à 2D pour une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$. Évolution des branches secondaires en fonction de l'amplitude du bruit F pour une vitesse de tirage $V_p = 50\mu\text{m/s}$ et une désorientation cristalline $\theta_0 = 18^\circ$. L'amplitude retenue ici est $F = 1.5\%$. Au delà de cette valeur les branches deviennent instables.

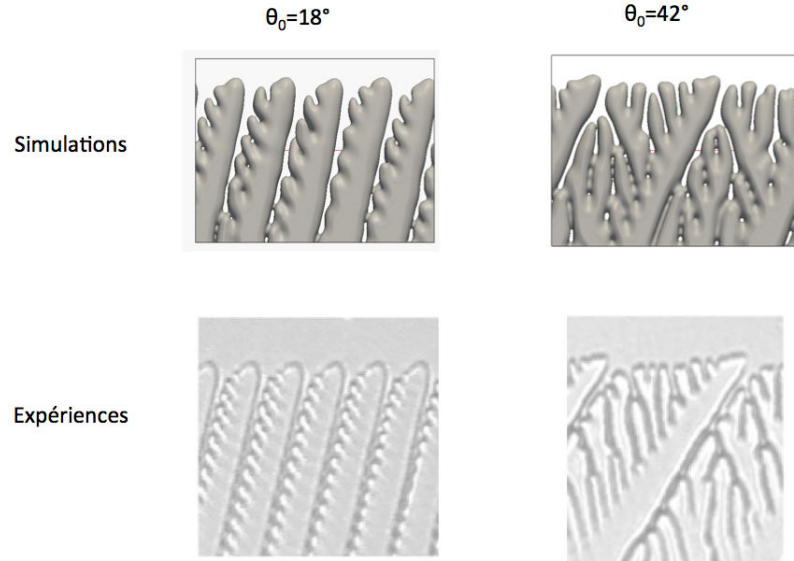


FIGURE 10 – Comparaison de formes obtenues dans les mêmes conditions dans les expériences [6] et par les simulations réalisées avec l’amplitude du bruit $F = 5\%$.

ϵ_4 (%)	F (%)	
	2D	3D
0.7	0.5	3.0
1.1	1.5	5.0

Tableau 2 – Amplitude F du bruit utilisée à 2D et à 3D pour deux valeurs de l’anisotropie cristalline ϵ_4 .

Remarque : L’anisotropie cristalline stabilise les structures. Comme notre critère sur l’amplitude du bruit correspond à l’obtention des branches secondaires stationnaires, on s’attend donc à que l’amplitude F augmente en augmentant l’anisotropie.

Les intervalles de variation des paramètres numériques utilisés dans les simulations sont donnés dans le tableau (3).

Paramètre	Symbole	Valeur	Unité
Épaisseur d'interface adimensionnée	ξ	50-90	d_0
Pas du maillage	h	1.2	W_0
Amplitude du bruit	F	0 – 5.0	%

Tableau 3 – Paramètres numériques utilisés dans les simulations.

2.9 Conditions aux limites

2.9.1 Conditions aux limites périodiques

Pour éviter les effets dus à la faible largeur des domaines qui ont été utilisés pour obtenir des résultats dans des temps raisonnables, nous imposons des conditions aux limites périodiques. Elles consistent à répéter la boîte de simulation dans la direction de la largeur x

$$\psi(0) = \psi(x_0), \quad (119)$$

avec x_0 la largeur du domaine. Ces conditions aux limites permettent d'atténuer cette limitation mais les microstructures restent soumises à des effets de quantification.

2.9.2 Le mouillage

Dans les expériences, l'épaisseur y_0 de l'échantillon est fixée à $50\mu\text{m}$ pour limiter les interactions avec les plaques de verre susceptibles de provoquer un comportement 2D. En prenant la même valeur dans nos simulations, une multicouche de structures apparaît (figure 11). Afin d'obtenir une seule rangée de structures, nous avons donc réduit l'épaisseur à $y_0 = 35\mu\text{m}$. Ce

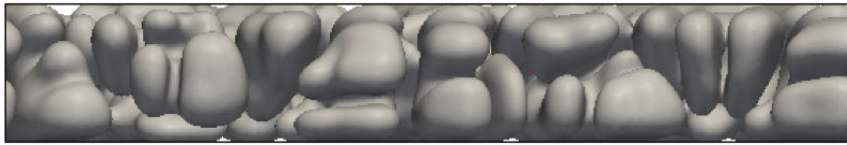


FIGURE 11 – Vue de dessus d'un front de solidification dans un domaine d'épaisseur $y_0 = 50\mu\text{m}$ et de largeur $x_0 = 300\mu\text{m}$ pour une vitesse de tirage $V_p = 50\mu\text{m/s}$ et $\theta_0 = 18^\circ$.

choix nous a bien permis d'obtenir une monocouche de structures, mais un mélange de micro-structures entières et de demi-structures apparaît comme on le voit sur la figure 12. Or, dans

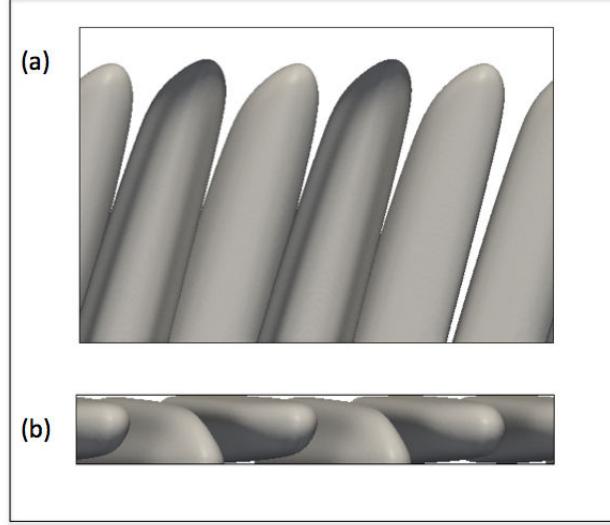


FIGURE 12 – Vues de face (a) et de dessus (b) du front de solidification dans un domaine d'épaisseur $y_0 = 35\mu\text{m}$ pour une vitesse de tirage $V_p = 50\mu\text{m/s}$ et $\theta_0 = 18^\circ$. Un mélange des structures et des demi-structures apparaît.

les expériences le liquide mouille systématiquement les plaques de verre. Dans les simulations, nous introduisons donc des conditions aux limites sur chaque paroi $y = 0$ et $y = y_0$ telles que

$$\left(\frac{\partial\psi}{\partial y}\right)_{y=0} = -\left(\frac{\partial\psi}{\partial y}\right)_{y=y_0} = \sigma_0, \quad \sigma_0 \text{ constante positive}, \quad (120)$$

qui imposent un angle de contact θ_c pour le liquide situé entre le solide et la paroi (figure 13). En

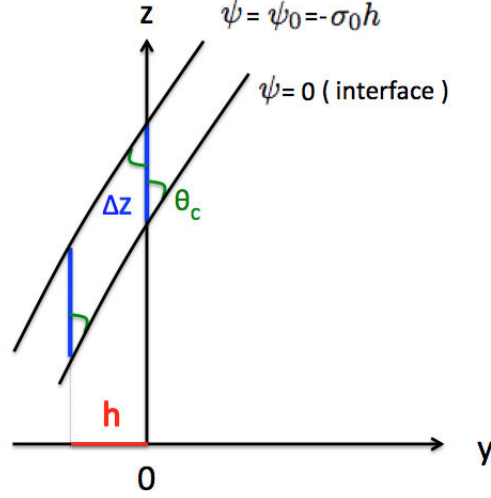


FIGURE 13 – Construction géométrique utilisée dans la détermination de l'angle de contact θ_c du mouillage dans les simulations numériques.

supposant que les iso-contours pour les valeurs de ψ proches de zéro (l'interface) sont parallèles entre eux,

$$\Delta z = \frac{h}{\tan \theta_c} = \frac{-\psi_0}{\sin \theta_c}, \quad (121)$$

où Δz est la distance verticale séparant deux iso-contours (figure 13). Par conséquent $\cos \theta_c = -\psi_0/h = \sigma_0$, l'angle de contact vérifie donc

$$\theta_c = \cos^{-1}(\sigma_0). \quad (122)$$

Cette relation géométrique rigoureusement valable à 2D résulte du fait que ψ est une fonction distance signée. Dans la pratique, puisque nous n'avons pas d'estimation de l'angle de contact expérimental, nous imposons la valeur $\sigma_0 = 1/h = 0.8333$ donc un angle de contact $\theta_c \simeq 33.5^\circ$. Cette valeur donne une impression visuelle comparable aux expériences (figure 14).

Des méthodes plus physiques pour introduire un angle de contact ont été développées et discutées

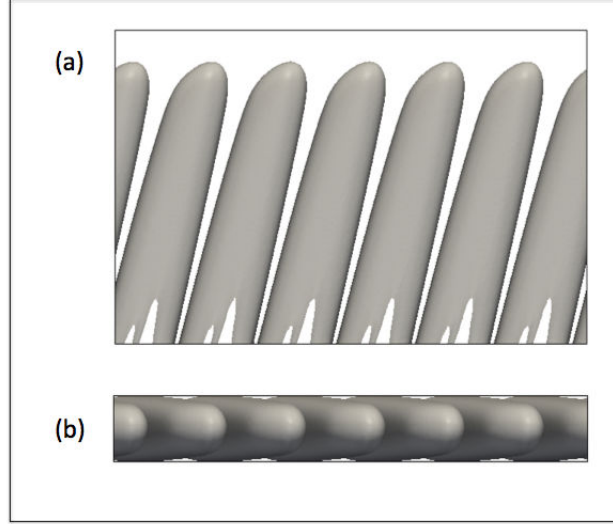


FIGURE 14 – Une monocouche de structures décrochées des parois dans un domaine d'épaisseur $y_0 = 35\mu\text{m}$. Vitesse de tirage $V_p = 50\mu\text{m/s}$, $\theta_0 = 18^\circ$ et $\sigma_0 = 0.8333$.

dans [26, 27]. Dans cet esprit, nous avons également essayé les conditions aux limites,

$$\left(\frac{\partial\psi}{\partial y}\right)_{y=0} = -\left(\frac{\partial\psi}{\partial y}\right)_{y=y_0} = \sigma_0(1 - \varphi^2), \quad (123)$$

qui permettent de décrire plus physiquement le mouillage car elles n'imposent un angle de contact différent de 90° qu'au voisinage de l'interface. Loin dans les deux phases ($1 - \varphi^2 \simeq 0$), elles deviennent des conditions miroirs usuelles. Avec ces conditions modifiées nous n'avons remarqué d'effet ni sur les structures inclinées et leur direction de croissance, ni sur le mode oscillant et sa période d'oscillation.

3 Structures inclinées

En solidification directionnelle, les recherches expérimentales, numériques et théoriques sont généralement réalisées dans des configurations modèles, éloignées des conditions naturelles ou industrielles [29, 30]. Il est donc important de compléter ces études en considérant des conditions de croissance plus générales. Dans ce but, un paramètre essentiel à prendre en compte est la désorientation des axes cristallins par rapport au gradient thermique. Les conséquences de cette désorientation sur la direction de croissance et la morphologie des microstructures sont spectaculaires [31, 32, 33]. En effet, la direction du gradient de température imposée par le four est une direction de croissance privilégiée. D'autre part, le réseau cristallin du succinonitrile est caractérisé par trois axes de symétrie cubique : les axes $[100]$ et $[001]$ qui se trouvent dans le plan de l'échantillon et l'axe $[010]$ perpendiculaire, autour duquel la rotation se fait (figure 15). Ces axes tentent également d'imposer leur direction pour la croissance. La combinaison des deux effets induit une direction de croissance intermédiaire. Cette désorientation modifie

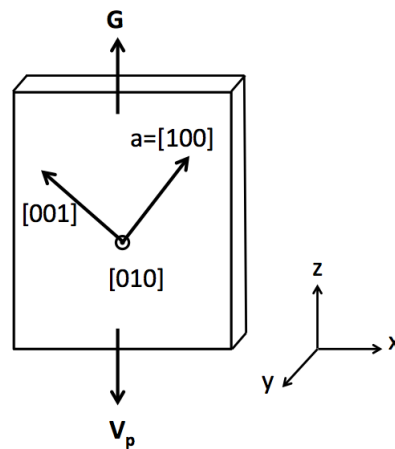


FIGURE 15 – Représentation des trois axes cristallins : dans les expériences la direction $[100]$ est la plus proche de la direction du gradient thermique G .

considérablement la forme des microstructures et donc les propriétés du matériau élaboré. Ainsi

- lorsque la direction cristalline $[100]$ est alignée avec le gradient de température, le front s'organise en cellules ou dendrites symétriques (figure 16.a).
- lorsque l'axe $[100]$ du cristal est dans une orientation comprise entre 0 et 44° , le front s'organise en structures asymétriques, inclinées (figure 16.b).
- une désorientation de l'axe $[100]$ s'approchant de 45° conduit à un mode dit "dégénéré" composé des structures se coupant en permanence à la pointe (figure 16.c).

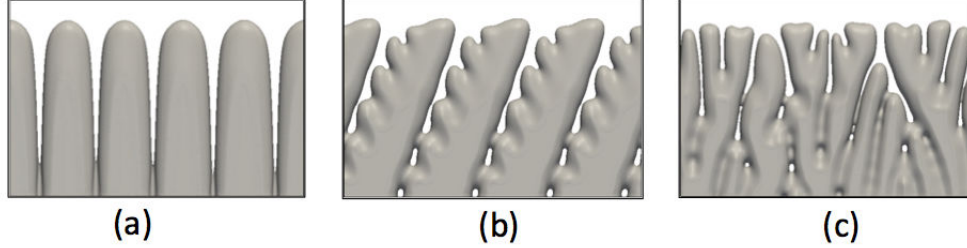


FIGURE 16 – Différentes morphologies adoptées par les microstructures de solidification dirigée pour une vitesse de tirage donnée, $V_p = 25\mu\text{m/s}$. Les différences sont dues aux effets de la désorientation de l'axe cristallin $[100]$ par rapport au gradient thermique. (a) Désorientation nulle : l'axe $[100]$ du cristal est aligné avec le gradient de température. (b) Désorientation intermédiaire égale à 18° . (c) Désorientation forte égale à 44.5° .

Dans ce chapitre, notre étude numérique sera dédiée à la détermination de la direction de croissance en fonction des paramètres du système. Nos résultats numériques seront directement comparés aux résultats expérimentaux obtenus principalement lors du travail de thèse de Julien Deschamps [6].

3.1 Variation de la direction d'anisotropie

D'une manière générale, la désorientation des axes cristallins est définie par les trois angles d'Euler. On se limite ici aux deux angles notés φ (précession) et θ (nutation) en coordonnées sphériques (figure 17), voire à l'angle θ seulement. Après avoir calculé les différentes composantes de la normale $\vec{n} = (n_x, n_y, n_z)$ dans le référentiel $(\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z)$ lié aux axes du domaine de calcul, on utilise les relations de projection des coordonnées sphériques,

$$n_r = \sin \theta \cos \varphi n_x + \sin \theta \sin \varphi n_y + \cos \theta n_z, \quad (124)$$

$$n_\theta = \cos \theta \cos \varphi n_x + \cos \theta \sin \varphi n_y - \sin \theta n_z, \quad (125)$$

$$n_\varphi = -\sin \varphi n_x + \cos \varphi n_y, \quad (126)$$

pour obtenir les composantes de $\vec{n}$ dans le référentiel $(\vec{u}_r, \vec{u}_\theta, \vec{u}_\varphi)$ lié aux axes cristallins. La fonction d'anisotropie $a_s(n_r, n_\theta, n_\varphi)$ conserve la forme qui a été donnée dans l'équation (73). On calcule donc le vecteur d'anisotropie $\vec{A}(A_r, A_\theta, A_\varphi)$ à partir des équations (87) avec $\ell = r, \theta, \varphi$, et on projette finalement ses trois composantes dans le repère $(\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z)$:

$$A_x = \sin \theta \cos \varphi A_r + \cos \theta \cos \varphi A_\theta - \sin \varphi A_\varphi, \quad (127)$$

$$A_y = \sin \theta \sin \varphi A_r + \cos \theta \sin \varphi A_\theta + \cos \varphi A_\varphi, \quad (128)$$

$$A_z = \cos \theta A_r - \sin \theta A_\theta. \quad (129)$$

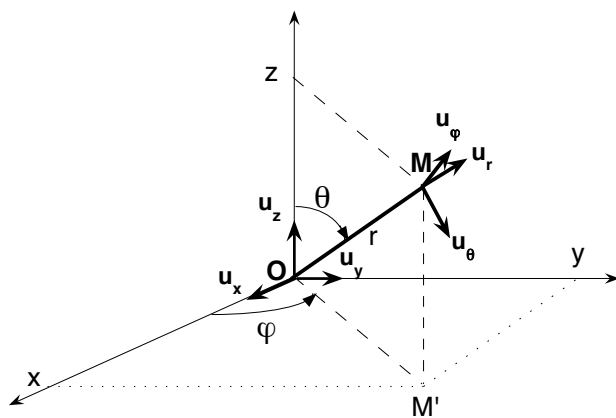


FIGURE 17 – Coordonnées sphériques et cartésiennes : $(\vec{u}_x, \vec{u}_y, \vec{u}_z)$ sont les vecteurs unitaires du domaine numérique et $(\vec{u}_r, \vec{u}_\theta, \vec{u}_\varphi)$ les vecteurs unitaires suivant les axes cristallins.

3.2 Loi d'orientation universelle

Une étude approfondie de la sélection des directions de croissance des microstructures en solidification dirigée a été menée par Julien Deschamps, Marc Georgelin et Alain Pocheau au moyen d'expériences réalisées avec différents matériaux, dont le succinonitrile [6, 7, 8]. L'analyse des résultats obtenus leur a permis d'établir une loi d'orientation donnant l'angle θ entre la direction de croissance $\vec{V}$ et l'axe cristallin $\vec{a}$, en fonction de l'angle θ_0 entre le gradient thermique $\vec{G}$ et $\vec{a}$ (figure 18). Cette étude expérimentale de la direction de croissance des microstructures a confirmé que l'angle θ dépend à la fois de leur espacement λ et de la vitesse de tirage V_p , donc de la variable combinée qui est le nombre de Péclet,

$$\text{Pe} = \lambda V_p / D. \quad (130)$$

Cette dépendance avait également été mise en évidence par Silvère Akamatsu et Thomas Ihle

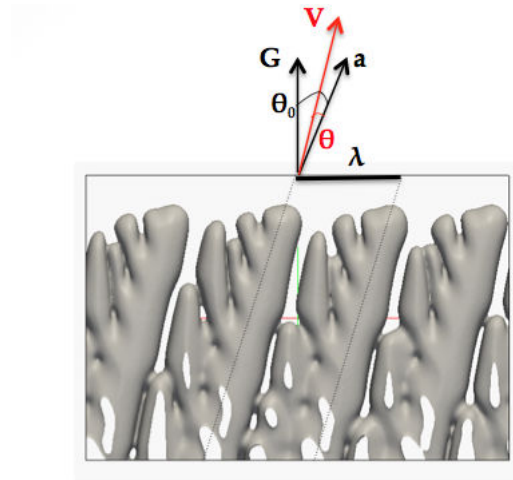


FIGURE 18 – Paramètres géométriques du système considéré : λ donne l'espacement entre deux microstructures voisines.

pour un alliage de $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ [34].

La loi comportementale de DGP prend la forme :

$$\theta/\theta_0 = [1 + \alpha(\theta_0)\text{Pe}^{5/4}]^{-1}, \quad (131)$$

avec

$$\alpha(\theta_0) = 1.1[1 - (\theta_0/46)^4], \quad (132)$$

l'angle θ_0 étant donné en degrés. Elle donne la réponse en orientation des microstructures sur l'ensemble de leur domaine d'existence en nombre de Péclet, pour des désorientations θ_0 inférieures ou égales à 45° . De plus, la loi DGP présente un certain caractère universel, puisqu'elle a été vérifiée pour différents matériaux. Cette réponse de la direction de croissance des structures à la désorientation fournit un point quantitatif de comparaison avec la simulation numérique qui sera détaillé dans la suite de ce chapitre.

3.3 Paramètres utilisés

Dans notre étude numérique des structures inclinées, nous avons simulé la solidification dirigée d'un alliage binaire à l'aide du modèle du champ de phase décrit par les équations (86) et l'équation (91). Nous utilisons ici les paramètres physiques et de contrôle donnés dans la thèse de Julien Deschamps et qui sont rassemblés dans le tableau (4).

Paramètre physique	Symbole	Valeur	Unité
Coefficient de partage	k	0.286	
Écart thermique entre Liquidus et Solidus	ΔT_0	5.0	K
Coefficient de diffusion dans le liquide	D	$1.35 \cdot 10^3$	$\mu\text{m}^2/\text{s}$
Coefficient de Gibbs-Thomson	Γ	0.0648	$\text{K}\mu\text{m}$
Longueur capillaire	d_0	0.01296	μm
Anisotropie	ϵ_4	0.7 ou 1.1	%
Paramètre de contrôle			
Gradient thermique	G	140	K/cm
Vitesse de tirage de l'échantillon	V_p	10 – 60	$\mu\text{m}/\text{s}$
Désorientation cristalline	θ_0	11 – 44.5	degrés
Vitesse critique	V_c	3.78	$\mu\text{m}/\text{s}$

Tableau 4 – Paramètres physiques et de contrôle et vitesse critique de l'expérience de solidification dirigée d'un alliage binaire dilué à base de succinonitrile.

Pour l'anisotropie cristalline des alliages à base de succinonitrile, on trouve habituellement la valeur $\epsilon_4 = 0.7\%$ dans la littérature [39], mais des mesures récentes indiquent plutôt $\epsilon_4 = 1.1\%$ [40]. Dans nos simulations, nous avons testé les deux valeurs. Notre étude a été limitée à des angles d'ouverture non négligeables, $\theta_0 \geq 11^\circ$, et à des vitesses de tirage $V_p \geq 2.65V_c$, auxquelles on obtient des microstructures développées.

3.4 Mesure de l'angle d'orientation θ

Dans un état stationnaire, les microstructures de solidification adoptant une direction de croissance inclinée par rapport à la direction du gradient G , elles dérivent le long du front avec une vitesse V_d (figure 19.a). Cette vitesse de dérive s'écrit en fonction de l'angle $\theta = (\vec{V}, \vec{a})$

$$V_d = V \sin(\theta_0 - \theta). \quad (133)$$

Comme la vitesse verticale est $V_p = V \cos(\theta_0 - \theta)$, la vitesse de dérive s'écrit $V_d = V_p \tan(\theta_0 - \theta)$. Par conséquent,

$$\theta = \theta_0 - \arctan\left(\frac{V_d}{V_p}\right). \quad (134)$$

Pour mesurer la vitesse de dérive d'une structure, nous suivons la position de sa pointe au cours

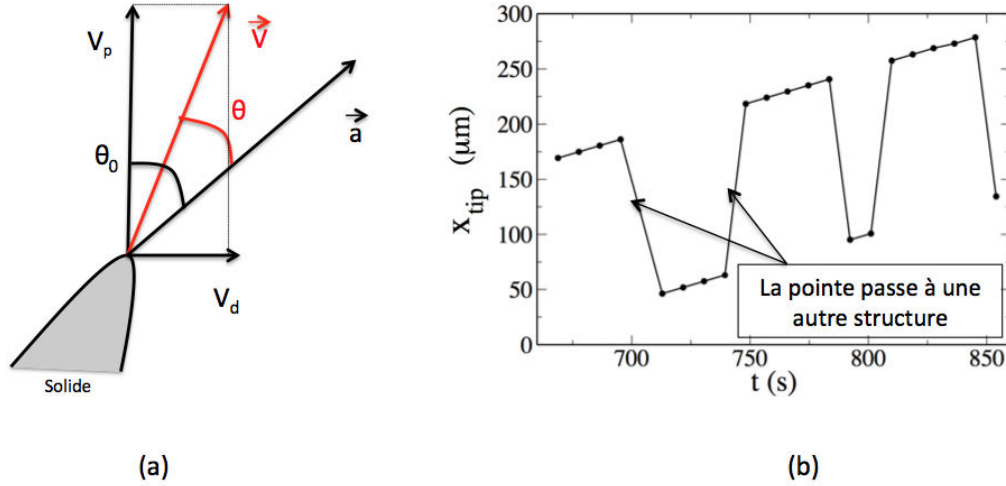


FIGURE 19 – Estimation numérique de l'orientation θ : (a) représentation de la vitesse de dérive V_d . (b) Évolution temporelle de l'abscisse de la pointe la plus haute x_{tip} .

du temps (figure 19.b). La vitesse V_d est donc calculée à partir de la distance parcourue par la pointe entre deux instants.

Nous avons également mesuré l'angle θ en traçant le front à des instants régulièrement espacés. L'orientation est donnée par l'angle d'inclinaison de la droite joignant les pointes d'une même structure par rapport la verticale (figure 20). La précision de ces mesures est de 0.5° . Les deux

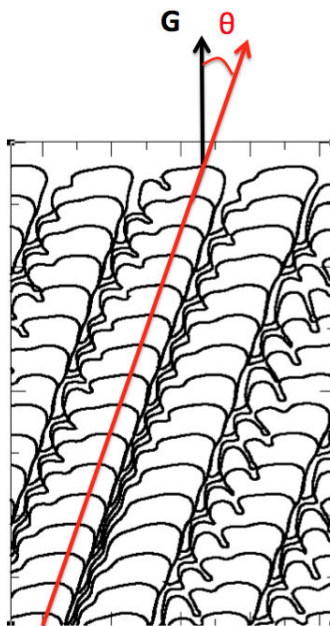


FIGURE 20 – Deuxième technique de mesure de l'orientation θ : évolution spatio-temporelle des structures.

méthodes de calcul de la vitesse de dérive donnent des résultats comparables pour des structures peu ramifiées, mais la seconde est plus délicate à mettre en oeuvre pour les structures très ramifiées (figure 21). Ceci nous a conduit à utiliser systématiquement la première méthode.

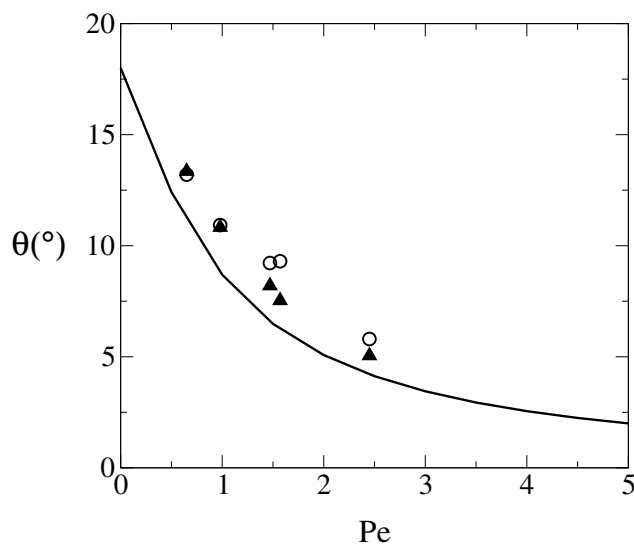


FIGURE 21 – Comparaison des valeurs de θ obtenues à partir de la vitesse de dérive donnée par $x_{tip}(t)$ (triangles) et par l'évolution spatio-temporelle des structures (cercles). La loi DGP est représentée par la ligne continue. Les deux techniques donnent des résultats comparables à petit Péclet, mais la seconde donne des résultats moins précis pour les structures très branchées.

3.5 Comportement en taille et en vitesse

Pour un angle θ_0 non nul, les structures de croissance présentent des différences notables avec celles obtenues habituellement pour $\theta_0 = 0$. Elles s'inclinent et présentent une pointe asymétrique avec l'apparition de branchements secondaires développés sur le flanc situé du côté opposé à l'inclinaison (figure 22). Une étude numérique récente de la solidification directionnelle a montré que l'espacement λ dépend fortement des conditions initiales et de la manière dont les paramètres de contrôle varient pendant la période transitoire [41]. Ici, on remarque une différence de taille entre les structures obtenues dans nos simulations et dans les expériences de DGP (figure 23). Ce désaccord peut être expliqué par les différences dans la taille du domaine (notamment sa largeur x_0), dans les conditions initiales, dans les transitoires et ainsi que par des origines différentes pour le bruit. Pour vérifier la gamme des tailles sélectionnées et les comparer avec les résultats expérimentaux, nous avons réalisé une simulation dans un plus grand domaine numérique. Les paramètres utilisés sont $x_0 = 1000\mu\text{m}$, $\theta_0 = 18^{\circ}$, $V_p = 30\mu\text{m/s}$. La gamme des tailles observées est de 60 à 80 μm dans les simulations. En comparaison, l'espacement est de 60 à 200 μm dans les expériences. Les tailles numériques sont donc plus petites en moyenne, mais

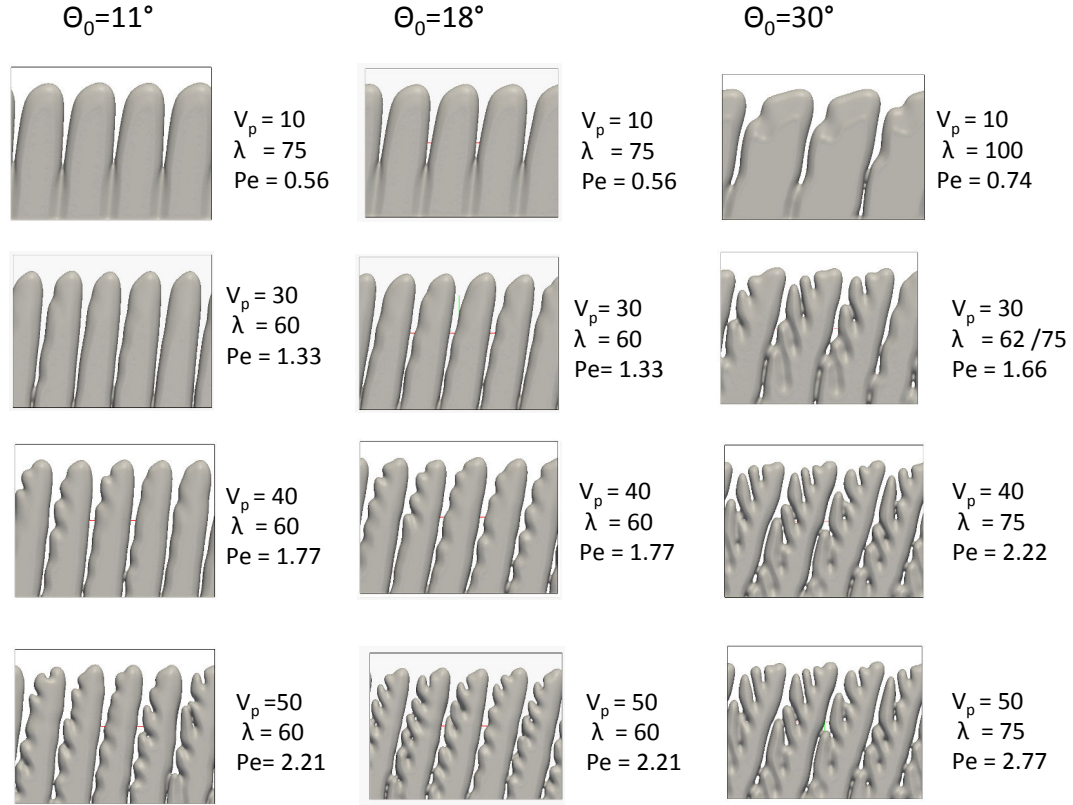


FIGURE 22 – Structures obtenues dans les simulations pour différents angles de désorientation θ_0 , différentes vitesses de tirage V_p ($\mu\text{m/s}$), et une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. La largeur du domaine numérique est de $300\mu\text{m}$. L'espacement λ est en μm .

elles sont néanmoins toujours comprises dans la gamme expérimentale.

Dans le but d'avoir des tailles plus grandes numériquement, nous avons testé l'effet d'une rampe de vitesse. Le test consiste à augmenter linéairement la vitesse de tirage entre 7 et 10 $\mu\text{m/s}$. La simulation nous a permis d'obtenir une taille plus grande, $\lambda = 100\mu\text{m}$, sachant que la taille obtenue en partant d'un front plan et en maintenant constamment une vitesse de tirage $V_p = 10\mu\text{m/s}$ est $\lambda = 75\mu\text{m}$. Cependant, les études expérimentales, ont montré que le paramètre pertinent n'est pas l'espacement λ mais le nombre de Péclet $Pe = \lambda V_p / D$ [34, 42, 43]. La différence des tailles sélectionnées n'est donc pas vraiment cruciale pour la présente étude, où on se concentre sur les effets de l'angle de désorientation θ_0 et de la vitesse de tirage V_p sur le nombre de Péclet et l'inclinaison des structures. La figure 23 permet de comparer directement les structures simulées aux

structures expérimentales : pour un nombre de Péclet et une désorientation très proches, elles sont en effet assez similaires pour ce qui concerne leur forme et le comportement des branches secondaires.

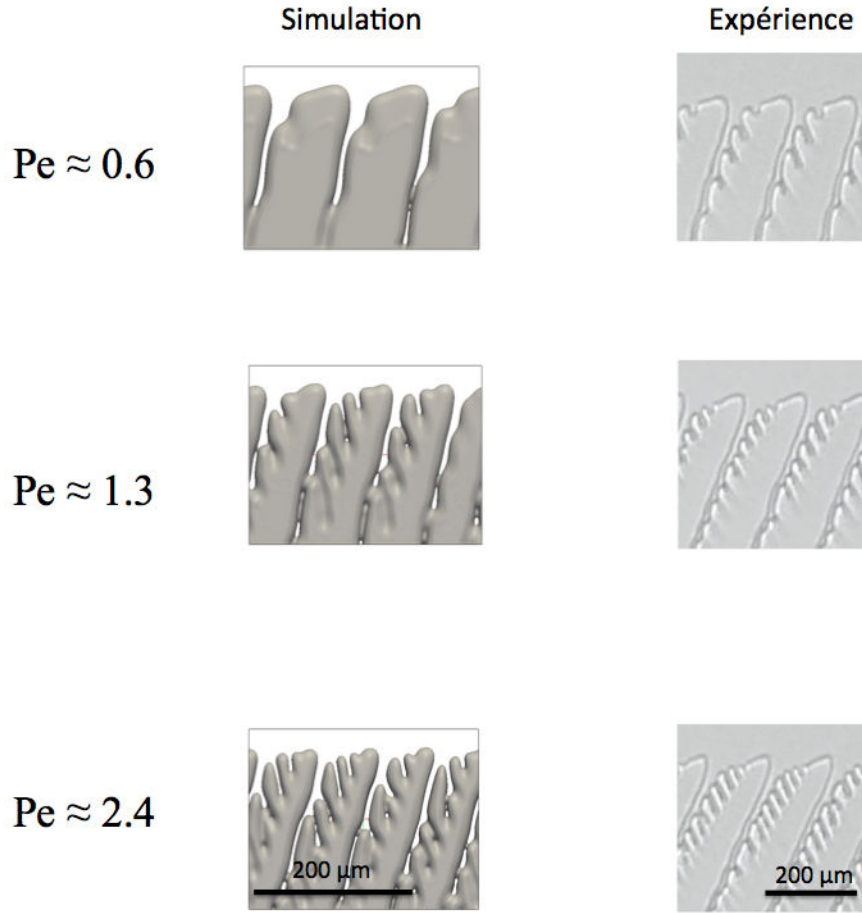


FIGURE 23 – Comparaison des structures obtenues dans les simulations avec une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$ à celles obtenues dans les expériences pour le même nombre de Péclet à une désorientation $\theta_0 = 30^\circ$.

3.6 Aspects géométriques

3.6.1 Effets dimensionnels

Plusieurs études numériques de la direction de croissance des microstructures ont été publiées mais toutes sont bidimensionnelles (2D) [7, 8, 34, 37]. La comparaison des simulations réalisées en 2D avec des simulations similaires effectuées dans des domaines tridimensionnels (3D) sera donc le premier test à réaliser.

Nous avons simulé la solidification pour différentes vitesses de tirage V_p et une désorientation $\theta_0 = 18^\circ$ et avec l'amplitude du bruit F adaptée aux deux géométries. Les directions de croissance, θ_{2D} et θ_{3D} , sont directement comparées à la loi expérimentale sur la (figure 24). Une

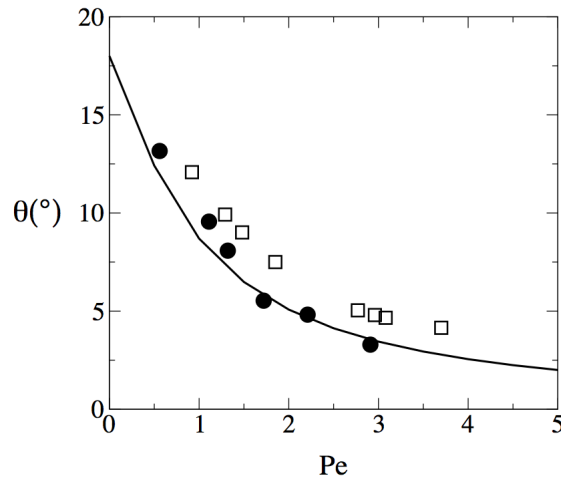


FIGURE 24 – Comparaison des résultats obtenus à 2D (carrés) et à 3D (cercles) à la loi DGP (ligne continue), la désorientation $\theta_0 = 18^\circ$, l'anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. Les résultats obtenus à 3D sont beaucoup plus proches de la loi expérimentale.

différence significative est mise en évidence : malgré un comportement en fonction du nombre de Péclet qualitativement similaire, un écart systématique apparaît entre l'inclinaison θ_{2D} des microstructures en 2D et la loi DGP. Pour mettre en évidence cette différence quantitative, nous traçons la différence angulaire entre les directions de croissance obtenues dans les simulations 2D et 3D,

$$\Delta\theta = \theta_{2D} - \theta_{3D}. \quad (135)$$

Des différences de plus d'un degré sont observées, une valeur qui est assez grande par rapport à $\theta_0 = 18^\circ$ (figure 25). Cela confirme donc l'existence d'un écart systématique dû à des effets dimensionnels. A très faible Péclet, l'inclinaison θ tend vers θ_0 indépendamment de la dimension

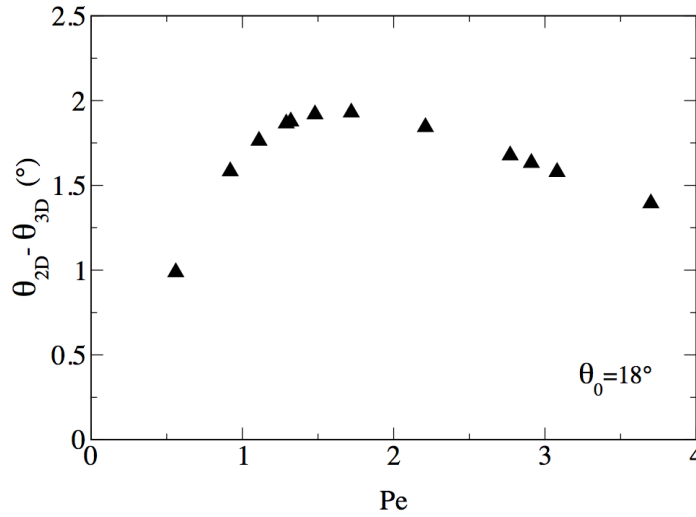


FIGURE 25 – Différence des inclinaisons θ obtenues dans des simulations 2D et 3D, en fonction du nombre Péclet pour une désorientation $\theta_0 = 18^\circ$.

de l'espace. Il s'agit de la zone des très grandes longueurs de diffusion D/V_p dans laquelle le front progresse en bloc dans la direction du gradient thermique.

À l'autre extrémité de la courbe, $\Delta\theta$ diminue de telle sorte que θ_{2D} tend vers θ_{3D} quand le nombre de Péclet augmente. En effet, à grande vitesse les branchements secondaires des microstructures sont très développés. La taille des structures devient nettement plus grande que le rayon de courbure à la pointe. A l'échelle de la pointe, les structures deviennent donc globalement plus plates ce qui favorise un comportement 2D dans cette limite. L'ensemble de ces propriétés suggère que la réponse d'orientation dans cette zone peut ne pas être qualitativement affectée par la dimension de l'espace, ce qui explique pourquoi les études numérique 2D précédentes ont conduit à un accord qualitatif avec les expériences.

Un écart maximal $\Delta\theta = 2^\circ$ est obtenu pour $Pe \simeq 1$. L'espacement λ est alors comparable à la longueur de diffusion D/V_p . Ici, les structures dépendent fortement des effets de diffusion et il est bien connu que l'équation de diffusion a des solutions très différentes à 2D et à 3D.

D'autre part, il semble impossible de parvenir à un accord quantitatif entre les simulations 2D et 3D dans la gamme des paramètres expérimentaux ainsi que le confirme l'évolution de $\Delta\theta/\theta_{3D}$ (figure 26). Cette différence relative augmente avec le nombre Péclet jusqu'à 70 pour cent, de sorte qu'il est absolument exclu d'obtenir des résultats quantitatifs avec les simulations 2D.

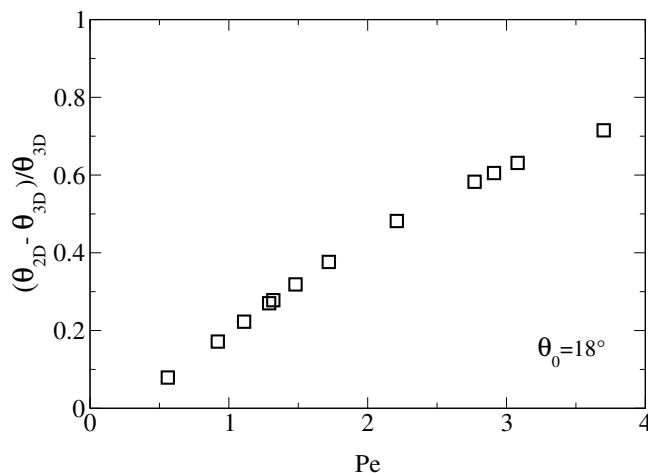


FIGURE 26 – Différence relative des inclinaisons θ obtenues dans des simulations 2D et 3D par rapport à la valeur θ_{3D} , en fonction du nombre Péclet pour une désorientation $\theta_0 = 18^\circ$.

3.6.2 Effets de l'épaisseur de l'échantillon

Comme il a été expliqué précédemment, ce sont des considérations pratiques, qui ont conduit aux choix de l'épaisseur de l'échantillon $y_0 = 35\mu\text{m}$ dans nos simulations. Dans les expériences, l'orientation des microstructures semble être peu sensible à l'épaisseur de l'échantillon [6]. Ce point est bien confirmé par les résultats numériques présentés sur la figure 27 où nous avons fait varier l'épaisseur y_0 entre 10 et $35\mu\text{m}$ pour un angle d'ouverture $\theta_0 = 18^\circ$ en gardant toujours nos conditions aux limites de mouillage. Le résultat obtenu à 2D confirme une fois encore la différence quantitative avec les structures 3D.

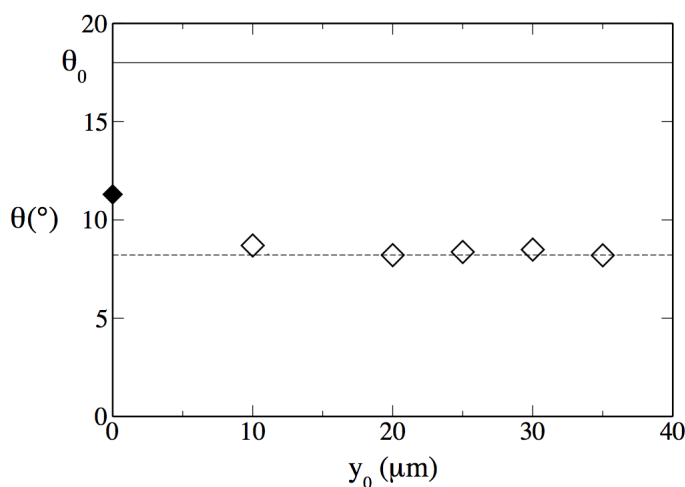


FIGURE 27 – Variation de l'angle de croissance θ avec l'épaisseur de l'échantillon y_0 . Pour $Pe = 1.33$. La ligne en pointillé est la valeur moyenne de θ à partir des résultats 3D (losanges vides) et l'erreur commise sur θ est de l'ordre de la taille du symbole. Le losange plein à $y_0 = 0$ correspond à une simulation purement bidimensionnelle (2D). (Image apparaissant dans la référence [38]).

3.6.3 Effets de quantification dus à la largeur de l'échantillon

En raison de temps de calcul nécessaire, la plupart des simulations ont été effectuées dans un domaine beaucoup plus petit, presque 10 fois moins large que celui de l'expérience. Les conditions aux limites périodiques le long de cette direction permettent d'atténuer cette limitation mais les microstructures sélectionnées restent soumises à des effets de quantification car nos domaines numériques n'accroissent qu'un nombre très limité de structures, deux à six structures en pratique. Cet effet de quantification est clairement visible sur la figure 28, où les résultats obtenus à la même vitesse de tirage dans deux systèmes de largeur $x_0 = 265\mu\text{m}$ et $x_0 = 300\mu\text{m}$ sont représentés. On voit clairement que les espacements des structures dépendent de x_0 . Le nombre de Péclet résultant et l'angle θ adaptent leur variation en glissant le long de la courbe

correspondant à la loi DGP. Dans la suite de ce chapitre, la taille du domaine numérique est maintenue à $x_0 = 300\mu\text{m}$.

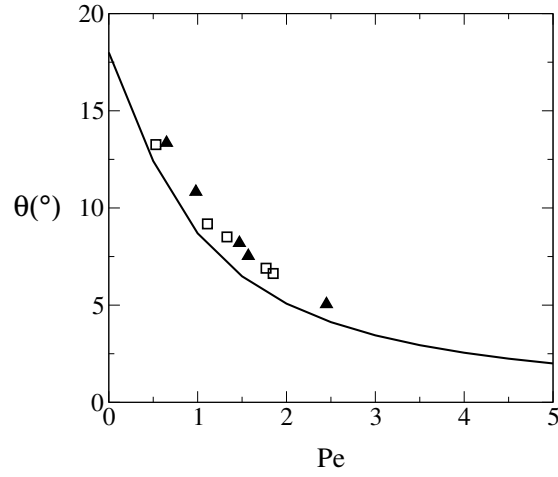


FIGURE 28 – Comparaison des données de simulation 3D avec la loi DGP pour un angle de désorientation $\theta_0 = 18^{\circ}$ et une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 0.7\%$. Deux largeurs d'échantillons sont considérées, $x_0 = 265\mu\text{m}$ (triangles) et $x_0 = 300\mu\text{m}$ (carrés). (Image apparaissant dans la référence [38]).

3.7 Influence de l'anisotropie cristalline et du bruit

Nous avons effectué des simulations avec les deux estimations de la littérature $\epsilon_4 = 0.7\%$ et 1.1% . Les résultats numériques sont présentés sur la figure 29, avec les résultats expérimentaux obtenus pour la même désorientation θ_0 . Pour $\epsilon_4 = 1.1\%$, un meilleur accord des données avec

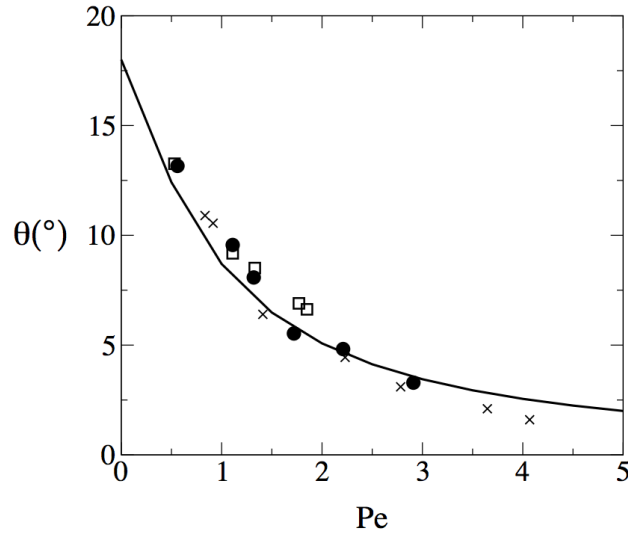


FIGURE 29 – Comparaison des résultats obtenus avec l'anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$ (cercles) et $\epsilon_4 = 0.7\%$ (carrés) à la loi DGP (ligne continue). La désorientation imposée est $\theta_0 = 18^{\circ}$. Les résultats expérimentaux (croix) sont obtenus pour la même désorientation. (Image apparaissant dans la référence [38]).

la loi DGP est obtenue. De plus, le réseau des structures obtenu avec cette valeur est plus homogène en taille (figure 30). Pour ces raisons nous avons gardé $\epsilon_4 = 1.1\%$ pour la suite de notre étude.

La cohérence de nos résultats est encore confirmée par le fait que les simulations effectuées sans

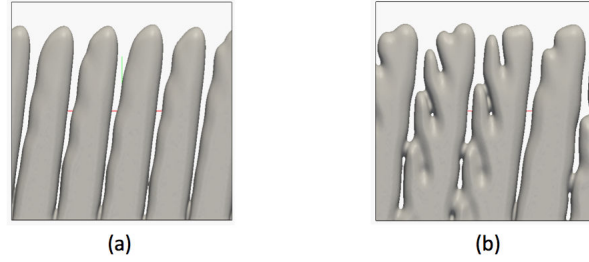


FIGURE 30 – Homogénéité du réseau simulé pour une désorientation $\theta_0 = 18^\circ$ et une vitesse $V_p = 30\mu\text{m/s}$. Les structures (a) correspondent à $\epsilon_4 = 1.1\%$ et (b) à $\epsilon_4 = 0.7\%$. Le réseau obtenu avec la première valeur est plus homogène en taille que l'autre.

bruit (structures lisses) et celles effectuées avec un bruit (structures ramifiées) sont toutes en bon accord avec la loi expérimentale (figure 31). Cela renforce l'idée que le bruit est nécessaire pour l'apparition des branches secondaires mais qu'il n'affecte pas vraiment la réponse d'orientation des structures. La direction de croissance des microstructures ramifiées, qui ressemblent d'avantage aux structures expérimentales, se rapproche un peu plus de la loi DGP, sachant que le bruit n'est pas négligeable dans l'expérience, même s'il est de nature différente. Le meilleur accord obtenu avec le bruit numérique fournit ainsi une validation supplémentaire de notre modèle.

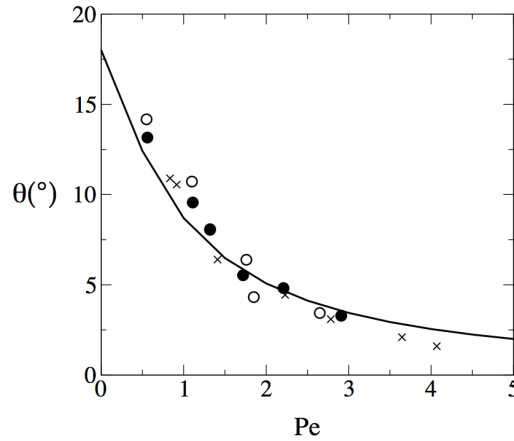


FIGURE 31 – Comparaison pour une désorientation $\theta_0 = 18^\circ$ des résultats expérimentaux (croix) et les résultats numériques obtenus avec l'anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$ (cercles) à la loi DGP (ligne continue). Deux amplitudes de bruit sont prises en compte dans nos simulations numériques : $F = 0$ (cercles vides) et $F = 5\%$ (cercles pleins).

3.8 Variations de la direction de croissance avec θ_0

Nous nous sommes concentrés jusqu'ici sur un angle de désorientation $\theta_0 = 18^\circ$. Une étude complémentaire consiste à fixer le nombre de Péclet et à comparer les structures obtenues pour différentes désorientations θ_0 . Pour cela, les données expérimentales et numériques obtenus pour un nombre de Péclet $Pe \simeq 1.4$ sont extrapolées à cette valeur. Il est clair d'après la figure 32 que l'évolution de l'angle de croissance θ est linéaire dans le domaine des faibles désorientations ($\theta_0 \leq 30^\circ$). Cette linéarité signifie que le coefficient α donné par l'équation (132) de la loi DGP

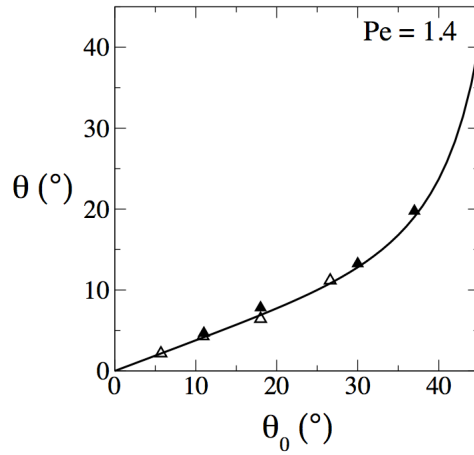


FIGURE 32 – Variation de l'angle de croissance θ en fonction de l'angle de désorientation θ_0 : expériences (triangles vides) et simulations avec une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$ (triangles pleins). Toutes les données correspondent à $Pe = 1.4$ et la ligne continue est obtenue à partir la loi DGP. (Image apparaissant dans la référence [38]).

est à peu près constant pour $\theta_0 \leq 30^\circ$. Quand θ_0 augmente au-delà de 30° , les structures commencent à développer des branches secondaires plus importantes et leur largeur augmente de façon significative. Ce changement de morphologie est suivi par une variation non-linéaire de l'orientation des structures : l'angle θ augmente désormais plus vite que θ_0 (figure 32). Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus dans la littérature [7, 34, 42].

Nos résultats numériques pour la variation de θ en fonction de Pe (figure 33) peuvent être utilisés pour obtenir le paramètre α de la loi DGP par un ajustement linéaire. Une estimation du coefficient α est obtenue pour chaque valeur de θ_0 . Ces estimations sont représentées en fonction de la désorientation sur la figure 34, avec les valeurs expérimentales de α . Les valeurs obtenues forment un plateau jusqu'à $\theta_0 \simeq 20^\circ$ puis présentent une décroissance nette au delà. Toutes ces données montrent des variations très cohérentes qui valident l'expression pa-

ramétrique $\alpha(\theta_0) = 1.1[1 - (\theta_0/46)^4]$ représentée par la courbe continue sur la figure 34 .

Nos données numériques pour la variation de la direction de croissance θ en fonction de Pe

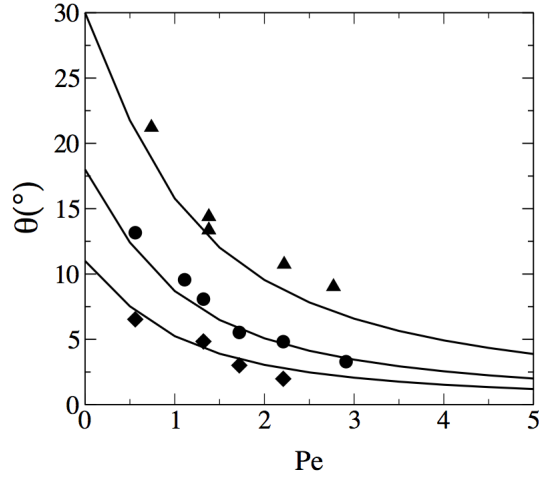


FIGURE 33 – Variation de θ pour différentes désorientations θ_0 et pour une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$ avec la loi DGP (courbes continues) correspondant à chaque ouverture. $\theta_0 = 11^\circ$ (losanges), $\theta_0 = 18^\circ$ (cercles) et $\theta_0 = 30^\circ$ (triangles).

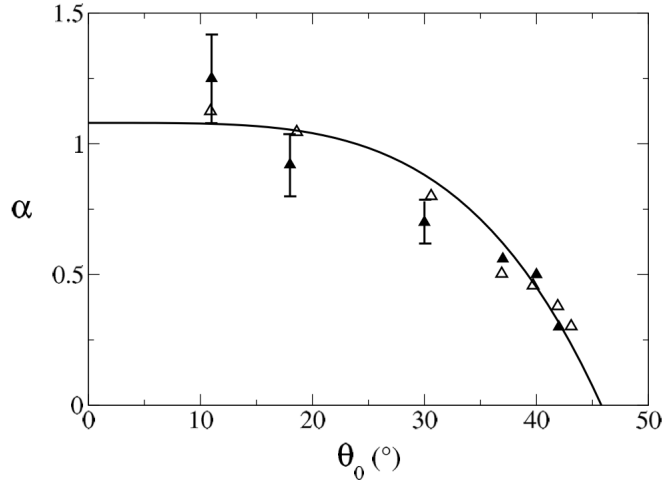


FIGURE 34 – Comparaison des coefficients α estimés à partir des données expérimentales (triangles vides) et à partir des données numériques pour anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$ (triangles pleins) avec la loi DGP (courbe continue). Les barres d'erreur ne sont représentées que lorsque l'erreur est plus grande que la taille du symbole. (Image apparaissant dans la référence [38]).

peuvent être représentées selon la loi d'échelle $\theta/\theta_0 = [1 + \alpha(\theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$ (figure 35). Cela conduit à un regroupement de l'ensemble des données, à tout nombre de Péclet Pe et à tout angle de désorientation θ_0 . Nos points numériques forment un bon regroupement autour de la loi expérimentale avec une dispersion du même ordre de grandeur que pour les points expérimentaux. Ceci confirme encore une fois l'universalité de la réponse en orientation des structures à la vitesse de tirage, à l'espacement et à la direction cristalline.

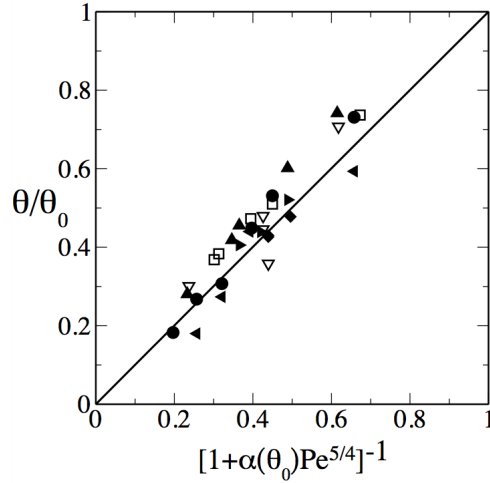


FIGURE 35 – Evolution du rapport θ/θ_0 en fonction du regroupement $[1 + \alpha(\theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$ pour $\epsilon_4 = 1.1\%$ et $11^\circ \leq \theta_0 \leq 42^\circ$, comparaison à la loi DGP (courbe continue).

3.9 Mode Dégénéré

Lorsque l'angle de désorientation θ_0 est proche de 45° , les structures adoptent un autre mode de croissance, c'est le mode dégénéré qui est instationnaire. Le système ne forme plus de dendrites mais des structures instables et soumises en permanence à des coupures de pointe (tip-splitting). Nous décrivons dans la suite la transition mode dendritique/mode dégénéré.

3.9.1 Définition

Plus les ouvertures θ_0 sont importantes, plus le front se déstabilise en structures très ramifiées et instationnaires. Ces microstructures subissent constamment des coupures de pointe et ont tendance à occuper tout l'espace disponible, il est donc difficile de déterminer leur taille : c'est le mode dégénéré.

Les structures obtenues numériquement à grandes désorientations sont présentées sur la figure 36. Dans ce régime également, elles se comparent très bien avec les structures expérimentales correspondant à des Péclets équivalents (figure 37).

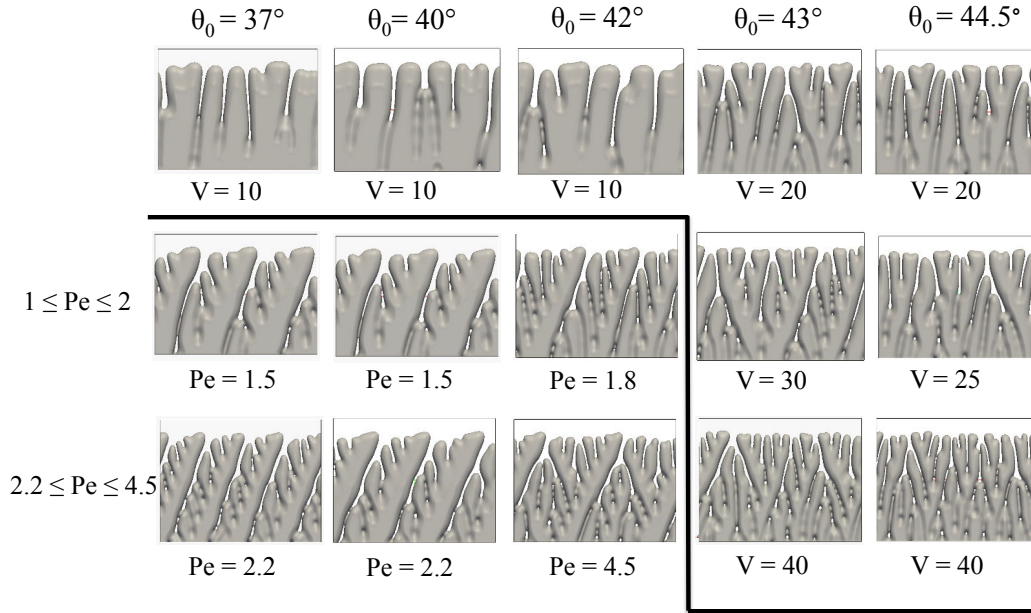


FIGURE 36 – Structures de croissance numériques obtenues numériquement pour des grands angles de désorientation θ_0 et une anisotropie $\epsilon_4 = 1.1\%$. La ligne continue sépare le mode dendritique très ramifié (au dessous) du mode dégénéré (au dessus). Le domaine numérique a une largeur de $300\mu\text{m}$. (Image apparaissant dans la référence [38]).

3.9.2 La transition mode dendritique/mode dégénéré

Afin de détecter l'apparition du mode dégénéré, nous faisons varier la désorientation θ_0 à des vitesses de tirage V_p fixées. Nous remarquons une augmentation de l'espacement essentiellement par le développement des branches secondaires. Les dernières dendrites stationnaires dont la taille est identifiable déterminent la transition et donnent Pe_ℓ , le nombre de Péclet limite en dessous duquel les dendrites ne sont plus stables. Les données numériques et expérimentales correspondant aux dernières structures dendritiques observées en s'approchant de la transition vers le mode dégénéré sont tracées sur la figure 38. Ces résultats permettent d'identifier les domaines d'existence du mode dendritique et du mode dégénéré et de mettre en évidence la transition entre les deux. L'accord entre l'expérience et les simulations révèle la force et la versatilité de notre code tridimensionnel.

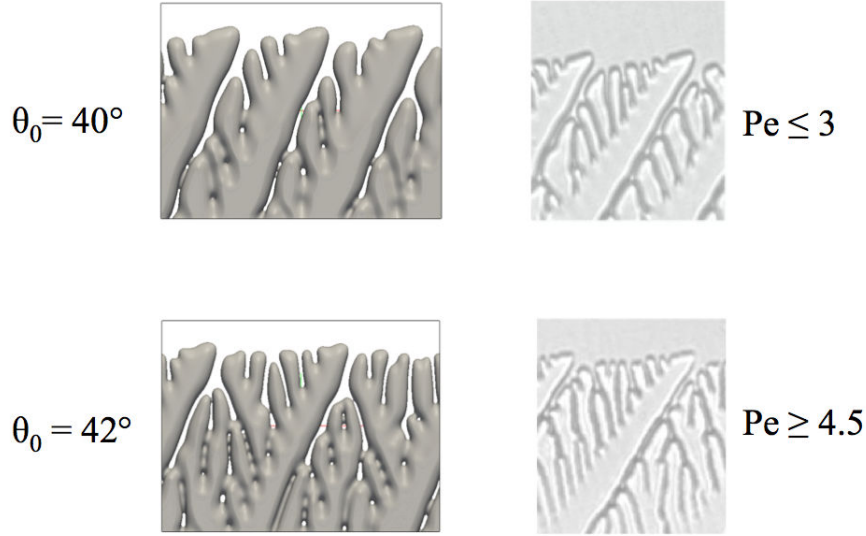


FIGURE 37 – Comparaison des structures dendritiques obtenues dans les simulations avec une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$ à celles obtenues dans les expériences pour la même gamme de Péclet à grandes désorientations. Le domaine numérique a une largeur de $300\mu\text{m}$.

Pour vérifier l'effet de l'anisotropie cristalline sur la limite entre le mode dendritique et le mode dégénéré, un test a été effectué pour l'anisotropie $\epsilon_4 = 0.7\%$, pour une vitesse $V_p = 40\mu\text{m/s}$ et pour différentes désorientations θ_0 . Le mode dégénéré apparaît au même Pe_ℓ et au même θ_0 (à un degré près), qu'avec $\epsilon_4 = 1.1\%$. L'anisotropie cristalline affecte donc peu la limite de la transition entre les deux modes.

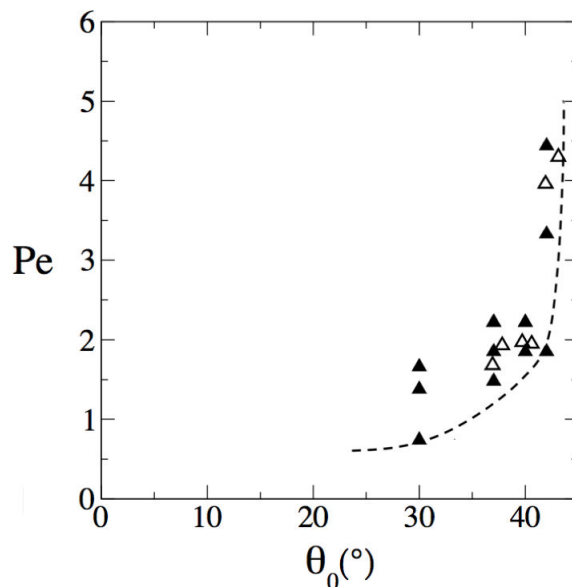


FIGURE 38 – Diagramme de stabilité au voisinage de la transition des structures inclinées vers le mode dégénéré. Les symboles correspondent aux dernières structures dendritiques observées à l’approche de la transition vers le mode dégénéré. Les triangles vides représentent les données expérimentales et les triangles pleins les résultats numériques pour l’anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. La ligne en pointillés donne approximativement la limite $Pe_\ell(\theta_0)$ entre les deux modes. (Image apparaissant dans la référence [38]).

3.10 Conclusion

L’inclinaison des microstructures par rapport la direction du gradient thermique G affecte significativement la morphologie et la dynamique du front de solidification. Pour bien caractériser et modéliser cette situation, il a été nécessaire de limiter notre étude à des conditions bien définies, à savoir une couche unique de structures dans l’épaisseur de l’échantillon et une répartition très homogène des tailles. Ce cadre a permis une comparaison fine avec les résultats expérimentaux sur une grande gamme de nombres de Péclet et pour différents angles de désorientation.

Le modèle du champ de phase a permis de réaliser cette comparaison en utilisant les paramètres expérimentaux. Les simulations 2D ont montré qu’un comportement qualitatif similaire à l’expérience peut être obtenu mais une différence quantitative avec la loi DGP a été mise en évidence. Nos simulations tridimensionnelles, malgré les différences géométriques mentionnés précédemment dans ce chapitre, ont permis d’obtenir des accords qualitatifs et quantitatifs remarquables avec les expériences. Ainsi, un très bon accord est obtenu pour les formes des

structures, leurs orientations et leurs instabilités à grandes désorientations.

Des informations pertinentes sont apportées par les simulations numériques. Un premier résultat est qu'il n'y a pas d'influence réelle de l'épaisseur de l'échantillon sur la direction de croissance des microstructures, un résultat qui avait été brièvement noté expérimentalement [6].

Un deuxième résultat concerne les effets du bruit spatio-temporel introduit dans notre modèle. Nous observons que s'il est bien nécessaire pour faire apparaître les branchements secondaires quand ils existent, il n'affecte pas l'orientation de ces structures.

En ce qui concerne la loi d'orientation, le bon accord entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques valide le fait que l'angle de croissance θ dépend à la fois du nombre de Péclet et de l'angle de désorientation θ_0 . A Péclet donné, la variation de θ est quasi-linéaire pour les faibles désorientations θ_0 .

Enfin, le mode dégénéré étant un mode de croissance purement instationnaire (tip-splitting en permanence), il apporte des informations complémentaires, puisque il diffère par sa nature du mode des structures inclinées. Ce mode est également bien décrit par notre modèle du champ de phase. Les résultats expérimentaux et numériques coïncident à nouveau avec une précision très satisfaisante. Ainsi, un bon accord quantitatif a été trouvé pour la frontière entre les deux modes.

Nos résultats numériques confirment donc non seulement la loi d'orientation DGP mais aussi l'expression paramétrique du coefficient α . D'autre part, ils valident le modèle du champ de phase tridimensionnel et prouvent sa capacité à reproduire la dynamique de solidification non seulement qualitativement mais aussi quantitativement. Par conséquent, nous pouvons maintenant envisager d'utiliser notre code pour étudier d'autres dynamiques de croissance encore plus complexes et plus rares, comme par exemple le mode oscillant $2\lambda - O$, en s'appuyant sur les résultats expérimentaux.

4 Mode oscillant $2\lambda - O$

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à des expériences où la désorientation cristalline est négligeable et les vitesses de tirage plus proches de la vitesse critique [17]. En solidification dirigée, différentes instabilités secondaires ont été observées et on peut citer par exemple le branchement dendritique [45, 46], les doublets [47] et les modes oscillants [3, 4, 5, 9]. Ici nous considérons le mode $2\lambda - O$ qui a été observé expérimentalement par Marc Georgelin et Alain Pocheau (GP) dans des lames minces [5, 9]. La première partie de ce chapitre regroupe quelques généralités et la seconde est consacrée à la comparaison de nos résultats numériques avec les résultats expérimentaux de GP.

4.1 Généralités et définitions

4.1.1 Diagramme de stabilité

Les instabilités secondaires des fronts de solidification ont généralement été observées dans des lames minces. Une étude détaillée de ces instabilités a été réalisée par GP qui les ont rassemblées sur un diagramme de stabilité (figure 39) [5]. Ce diagramme a été établi pour les variables adimensionnées V_p/V_c et $ql_T = \frac{2\pi l_T}{\lambda}$, avec l_T la longueur thermique et λ la taille de la structure. Donnons rapidement la signification des différentes instabilités représentées :

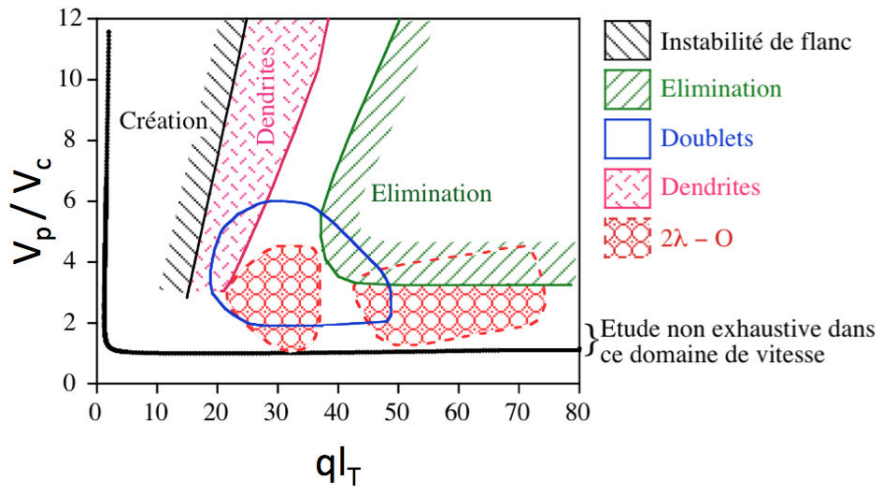


FIGURE 39 – Diagramme de stabilité établi expérimentalement pour un gradient $G = 110\text{K/cm}$ [5]. Les lignes correspondent à la limite d'observation des différentes instabilités. La ligne en gras représente la limite de stabilité du front plan [17].

Élimination : lorsqu'une structure recule par rapport à ses voisines ou lorsqu'elle est trop étroite, elle devient instable et peut disparaître (figure 40.a).

Création : il s'agit d'une instabilité qui se manifeste sur les structures les plus larges. Une nouvelle structure est créée, soit à la suite d'une coupure de la cellule au niveau de la pointe (tip-splitting) (figure 40.b), soit à partir d'un branchement qui se développe sur le flanc (figure 40.c).

Doublet : lorsque deux cellules se dissymétrisent en rapprochant leur pointe l'une de l'autre cela conduit à un état de paire appelé doublet (figure 40.d). Les doublets peuvent présenter sur leur flanc extérieur des ondulations similaires aux branchements dendritiques et ils peuvent également osciller.

Oscillation : ce mode d'instabilité correspond à des oscillations périodiques de la largeur et de la hauteur des structures (figure 40.e). Nous nous intéressons dans la suite du chapitre au mode oscillant $2\lambda - O$ où deux cellules voisines oscillent en opposition de phase.

À plus grande vitesse on observe l'apparition d'un nouveau mode :

Dendrite : cette instabilité correspond à l'émission de branchements sur les flancs de la structure (figure 40.f).

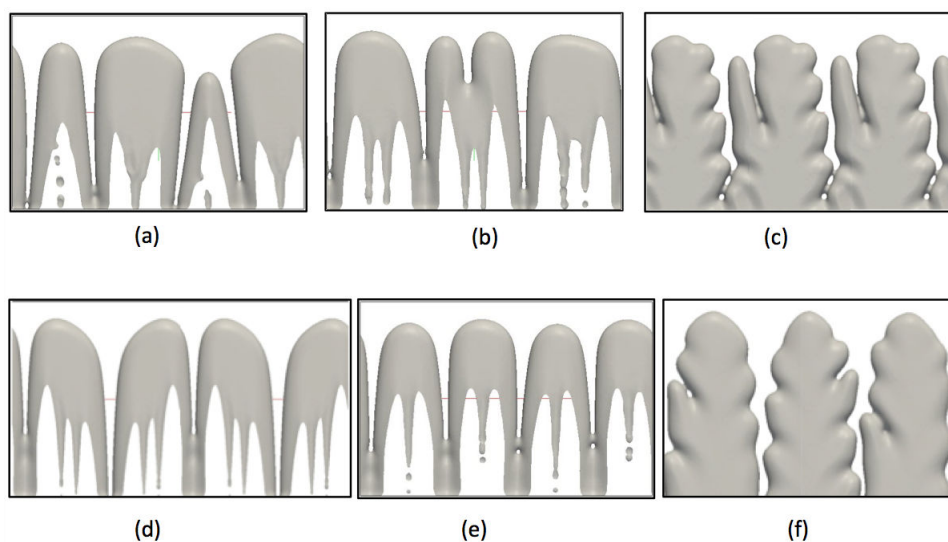


FIGURE 40 – Résultats numériques illustrant les différentes instabilités présentes sur le diagramme de la figure 39.

4.1.2 Mode oscillant $2\lambda - O$

Signalons en préambule que l'étude numérique et expérimentale du mode oscillant est délicate car il est très sensible aux variations des paramètres du système.

Ce mode d'instabilité se caractérise par une oscillation périodique (O) de la hauteur et de la largeur des cellules. Ces oscillations impliquent au moins deux cellules voisines qui oscillent en opposition de phase avec un doublement de longueur d'onde (2λ). La série d'images de la figure 41 montre une période d'oscillation. Il est à rappeler que des conditions aux limites périodiques sont imposées ici selon la direction de la largeur. On remarque une alternance de structures de grande et de petite taille. Les vitesses de deux cellules voisines sont de sens opposées comme indiqué sur la figure 41.

Dans ce chapitre, nous décrivons les observations numériques des oscillations $2\lambda - O$ obtenues

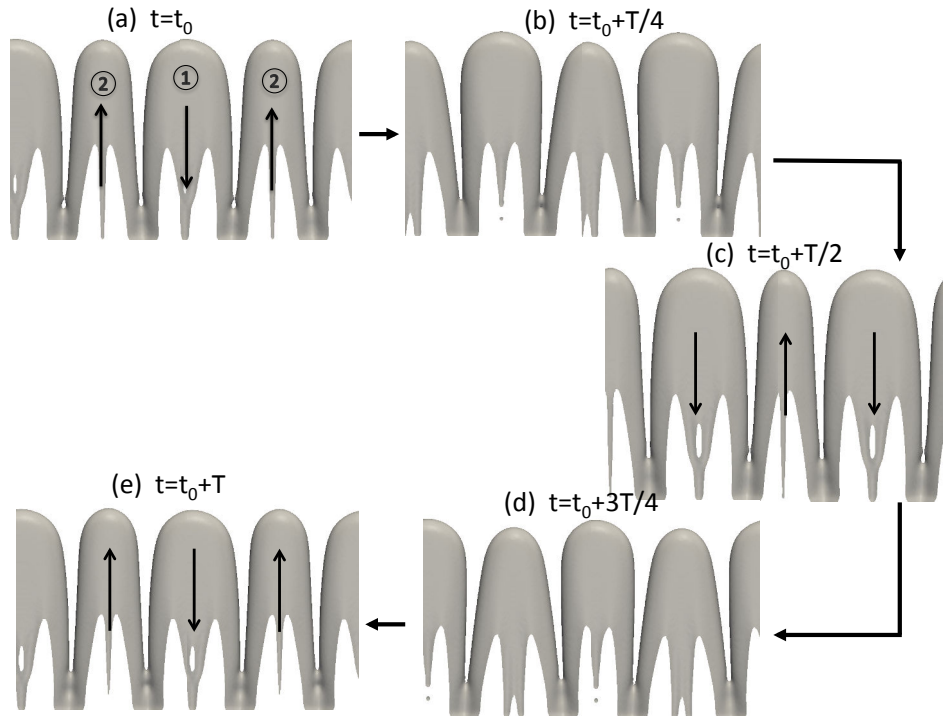


FIGURE 41 – Séquence montrant une période du mode oscillant obtenue numériquement. La largeur du domaine est $310\mu\text{m}$, la vitesse de tirage $V_p = 9\mu\text{m/s}$, le gradient thermique $G = 110\text{K/cm}$ et l'anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. La période d'oscillation $T = 108\text{s}$. Les flèches donnent le sens de la vitesse de la pointe. Cette vitesse est nulle sur les images (b) et (d).

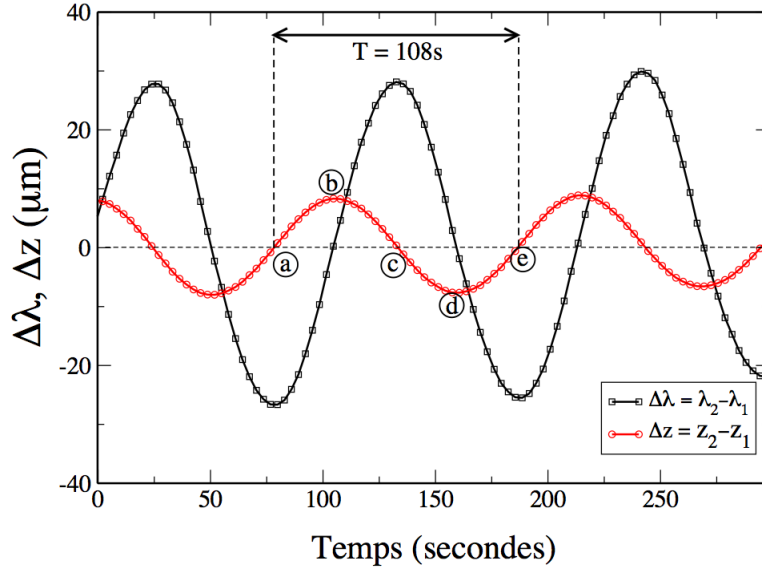


FIGURE 42 – Les oscillations de la largeur relative $\Delta\lambda$ et de la hauteur relative Δz correspondant à la séquence présentée dans la figure 41. La période d'oscillation est $T = 108\text{s}$.

dans des domaines d'épaisseur $35\mu\text{m}$ et nous les comparons aux résultats expérimentaux [5, 9]. Nous caractérisons ce mode et son évolution d'abord en régime libre puis en régime forcé.

4.1.3 Paramètres utilisés

Les paramètres de contrôle utilisés dans les simulations sont donnés dans le tableau (5) et pour les paramètres physiques nous utilisons ceux indiqués dans le tableau (4) du chapitre

Paramètre de contrôle	Symbole	Valeur	Unité
Gradient thermique	G	110	K/cm
Vitesse de tirage de l'échantillon	V_p	4 – 10	$\mu\text{m/s}$
Vitesse critique	V_c	2.97	$\mu\text{m/s}$

Tableau 5 – Paramètres de contrôle et vitesse critique utilisés dans l'étude des structures oscillantes.

précédent. Pour obtenir des oscillations, nous avons fait varier la vitesse de tirage et la taille du domaine de simulation qui a été limitée à une largeur accommodant une paire de structures. Le mode oscillant a été observé dans le voisinage du seuil critique, $4 < V_p < 10\mu\text{m/s}$. Nous avons utilisé le même bruit spatio-temporel que celui décrit précédemment.

4.2 Période d'oscillation

L'étude expérimentale des oscillations $2\lambda - O$ [5, 9] a permis d'établir une loi donnant la période T (en secondes) en fonction de la vitesse de tirage V_p (en $\mu\text{m/s}$),

$$T = 2600V_p^{-1.5}. \quad (136)$$

Cette loi permet une comparaison quantitative avec les simulations numériques.

Dans notre étude numérique du mode $2\lambda - O$ nous observons des oscillations de la largeur et de la hauteur des structures, similaires à celles obtenues dans les expériences. Les périodes d'oscillation obtenues sont représentées sur la figure 43 avec la loi expérimentale. Il est à noter que nos données numériques peuvent être ajustées selon la forme $T_{num} = 2900V_p^{-1.53}$ qui est en bon accord avec la loi expérimentale (moins de 15% d'écart sur le coefficient).

Dans les expériences, il n'est pas facile de dire si la période d'oscillation dépend de la largeur

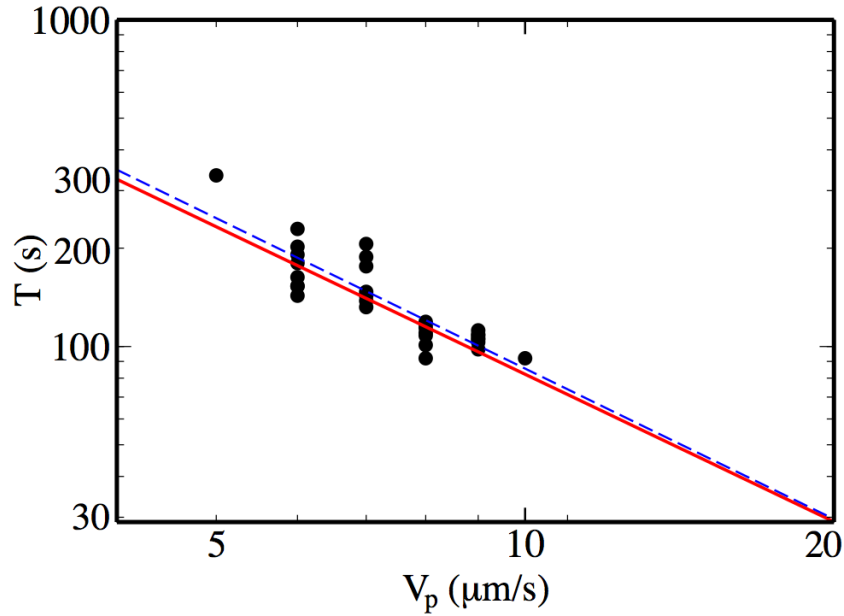


FIGURE 43 – Comparaison des périodes d'oscillation simulées avec $G = 110\text{K/cm}$ (cercles) à la loi expérimentale $T = 2600V_p^{-1.5}$ (ligne continue). La ligne discontinue est le résultat d'un ajustement des points numériques donnant la forme $T_{num} = 2900V_p^{-1.53}$. Anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. Les échelles sont logarithmiques.

des structures. Par contre, nous observons une variation systématique de la période numérique T en fonction de l'espacement λ , comme on le voit sur la figure 44 qui présente les résultats obtenus à une vitesse $V_p = 8\mu\text{m/s}$. Sur cette figure une variation de 30% est mise en évidence. En

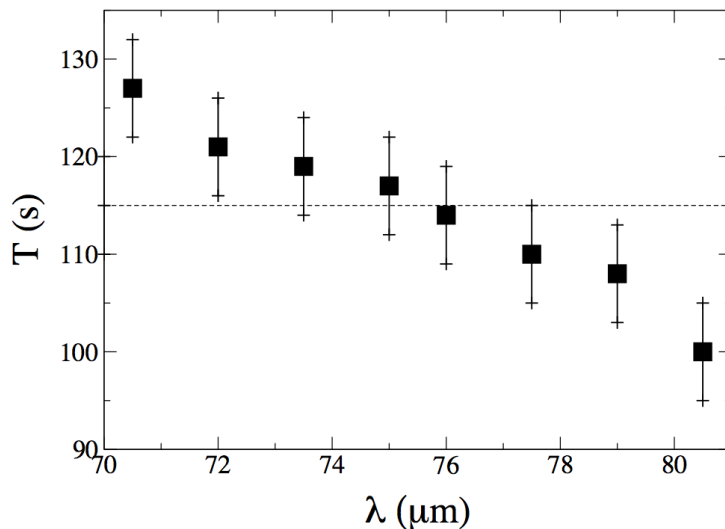


FIGURE 44 – Variation de la période d'oscillation avec la taille des structures à une vitesse $V_p = 8\mu\text{m/s}$, $G = 110\text{K/cm}$ et $\epsilon_4 = 1.1\%$. La ligne en pointillé est la valeur de la période donnée par la loi expérimentale de l'équation (136).

s'éloignant du point moyen (situé à $\lambda = 75\mu\text{m}$ et $T = 115$ secondes qui est la période donnée par la loi expérimentale), la période numérique varie soit en augmentant quand l'espacement λ diminue, soit en diminuant quand λ augmente. Cette variation pourrait être due à l'amortissement des oscillations ou au changement de forme des structures (apparition des doublets oscillants) résultant des changements de l'espacement λ (figure 45). En effet, la saturation des oscillations est loin d'être le cas général. La plupart du temps l'oscillation disparaît soit en s'amortissant au cours du temps soit en croissant jusqu'à ce qu'une élimination se produise. Les points proches du centre représentent les cas où le mode $2\lambda - O$ oscille pendant plusieurs périodes en maintenant des oscillations bien régulières d'amplitude constante au cours du temps comme on les voit sur l'exemple représenté sur la figure 45.b. Dans ces cas, on obtient une période numérique très proche de la valeur expérimentale. Malgré la variation de période observée, nos points

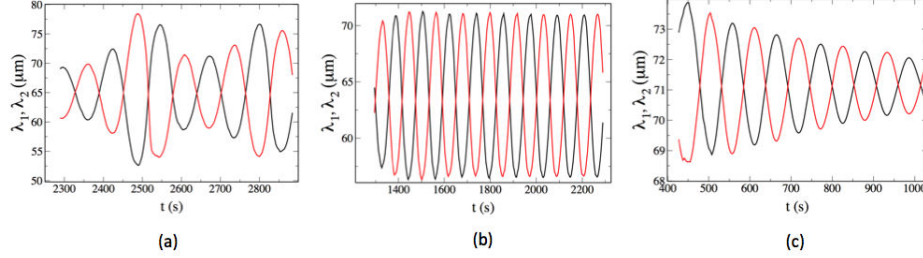


FIGURE 45 – Evolution du comportement des oscillations avec la taille λ des structures à une vitesse $V_p = 8 \mu\text{m/s}$ et un gradient thermique $G = 110 \text{K/cm}$. (a) correspond à $\lambda = 70.5 \mu\text{m}$, les oscillations ne sont pas régulières. (b) $\lambda = 75 \mu\text{m}$, les oscillations sont régulières. (c) $\lambda = 79 \mu\text{m}$, les oscillations sont amorties.

numériques forment un bon regroupement autour de la loi expérimentale et la valeur moyenne des périodes simulées reste toujours très proche de la période donnée par la loi expérimentale [5].

Certains modes oscillants ont été également mis en évidence dans le cas des systèmes tridimensionnels étendus. Pour une symétrie hexagonale, les différents types d'instabilité sont répertoriés par C. Pirat et L. Gil dans la référence [48]. À 3D, les oscillations avec un déphasage π ne sont généralement pas durables [4, 52]. Les instabilités stationnaires observées correspondent plutôt au mode $2\pi/3$ obtenu numériquement pour la première fois par I. Daumont et ses collaborateurs [49]. Ce mode oscillant a également été obtenu par des simulations numériques de la solidification dirigée en 3D [52, 53]. Plus récemment, il a été observé dans des expériences de solidification dirigée d'un alliage succinonitrile-camphre réalisées dans des échantillons massifs placés en microgravité [3, 4]. Des simulations tridimensionnelles ont été effectuées avec la méthode du champ de phase, qui ont permis de retrouver les principales caractéristiques du mode oscillant $2\pi/3$, de faire des comparaisons quantitatives avec les observations expérimentales 'in situ' en microgravité et de donner des nouvelles informations sur la dynamique de ce mode (figure 55) [3]. Bien que l'alliage, le mode d'oscillation et la géométrie soient différents, la période expérimentale du mode $2\pi/3$ varie comme $T = 2800V_p^{-1.5}$, une loi assez proche de celle trouvée par GP pour le mode $2\lambda - O$ dans des échantillons minces. On peut imaginer que ce bon accord serait lié à la nature du constituant majoritaire (succinonitrile dans les deux cas) [3].

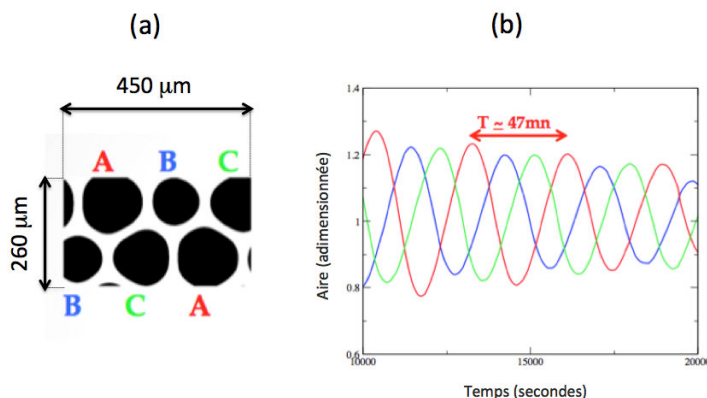


FIGURE 46 – (a) Vue de dessus d'une simulation 3D du champ de phase montrant des cellules oscillant avec un déphasage de $2\pi/3$. (b) Variation des aires (adimensionnée) des trois cellules au cours du temps [3].

4.3 Diagramme d'existence

Dans le diagramme de stabilité de la figure 39, deux régions d'existence du mode $2\lambda - O$ ont été déterminées expérimentalement pour les faibles valeurs de V_p/V_c : des structures de petite largeur à droite et de grande largeur à gauche. Ces deux régions sont séparées par une zone de cellules stationnaires de tailles intermédiaires. Dans cette zone centrale, les oscillations sont absentes car une perturbation suffisante pour déclencher les instabilités n'a jamais été atteinte en pratique. Cela n'exclut pas totalement l'existence du mode $2\lambda - O$ dans cette zone.

Comme on l'a vu précédemment, l'incertitude expérimentale sur les paramètres physiques est une source importante d'imprécision. Pour limiter ses effets sur le diagramme de stabilité, nous optons pour une représentation en fonction de la vitesse de tirage V_p et de la largeur des structures λ qui sont connues avec une bonne précision (figure 47).

En représentant de la sorte nos résultats numériques et les résultats expérimentaux, on remarque qu'ils sont en excellent accord en ce qui concerne la gamme de vitesse (figure 47). D'autre part, d'après notre étude des structures inclinées, nous savons que les tailles numériques sont plus petites que celles obtenues dans l'expérience. Par conséquent, on s'attend bien à ne pas retrouver les plus grandes tailles dans les simulations. Cela explique donc l'absence de résultats numériques dans la zone des cellules larges.

En ce qui concerne la zone des cellules étroites, les oscillations n'ont pas pu être observées dans les simulations car les structures sont peu profondes par rapport l'expérience et les simulations

amènent systématiquement à une élimination. Donc nos points numériques existent essentiellement à des tailles intermédiaires même si on trouve un certain recouvrement avec les points expérimentaux. Nos oscillations les plus régulières se placent au centre de cette zone. Ceci nous laisse penser et confirmer l'idée d'avoir un décalage en taille par rapport l'expérience.

En nous référant à l'étude des structures inclinées où le paramètre pertinent est le nombre

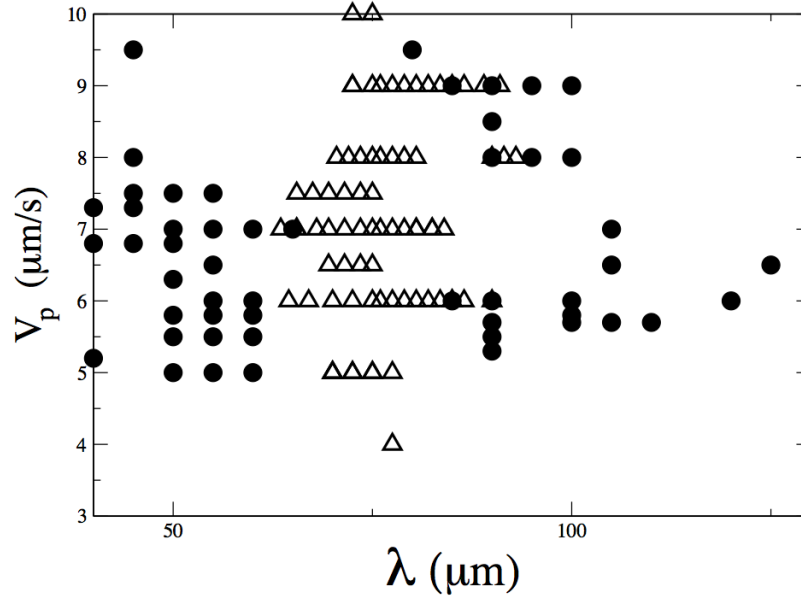


FIGURE 47 – Diagramme d'existence du mode $2\lambda - O$. Résultats obtenus numériquement (triangles vides) pour un gradient de température $G = 110\text{K/cm}$ et une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. Les cercles pleins représentent les données expérimentales.

de Péclet, $Pe = \lambda V_p / D$, nous pouvons également utiliser ce nombre pour délimiter le domaine d'existence du mode $2\lambda - O$. Nous obtenons dans les simulations $0.25 < Pe < 0.6$ alors que dans les expériences est $0.15 < Pe < 0.9$. Là encore, les nombres de Péclet numériques sont compris dans la gamme expérimentale.

Sur la figure 47, l'ensemble des instabilités oscillantes est représenté sans distinction. En fait, en changeant de taille λ , les cellules changent de forme et le comportement des oscillations est également modifié. La figure 48 montre que les oscillations numériques sont bien de plusieurs types :

- les triangles pleins représentent le cas où les oscillations durent au moins trois périodes.
- les triangles vides représentent le cas où les cellules oscillent pendant quelques périodes jusqu'à ce que l'amplitude d'oscillation devienne très grande et entraîne l'élimination de

l'une des deux cellules.

- les carrés représentent les oscillations à très faible amplitude. Le système a tendance à s'amortir.
- les losanges représentent les doublets oscillants. Ils apparaissent dans des systèmes de grande taille après une élimination suivie d'une création.

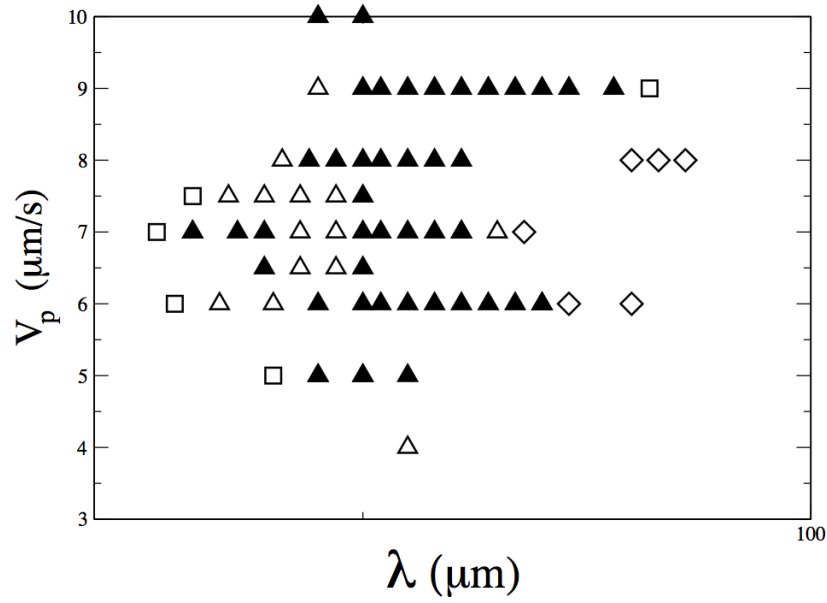


FIGURE 48 – Différents types d'instabilités oscillantes $2\lambda - O$ obtenues numériquement pour un gradient thermique $G = 110\text{K/cm}$ et une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$.

4.4 Effets dimensionnels

En nous référant au chapitre précédent où les simulations 2D ont montré un comportement qualitatif similaire à l'expérience, mais une différence quantitative nette avec la loi DGP, nous avons réalisé des simulations bidimensionnelles pour vérifier la réponse du système dans le cas du mode oscillant. En utilisant les mêmes paramètres de contrôle explorés en 3D (même gradient thermique G et même gamme de vitesse de tirage V_p), les simulations 2D n'ont permis d'obtenir que des oscillations de faible amplitude (4 à 5 μm au maximum) et qui s'amortissent systématiquement. La gamme de taille observée reste toujours supérieure à celle obtenue en 3D, un résultat qui a déjà été mis en évidence dans le chapitre précédent pour l'étude des structures inclinées. Par contre, les périodes d'oscillations sont nettement plus grandes que la période expérimentale comme le montre la figure 49. Les données numériques 2D peuvent être ajustées selon la forme $T_{num} = 1100V_p^{-0.76}$ (presque 50% d'écart sur le coefficient et l'exposant). Cette différence avec la loi expérimentale confirme donc l'existence d'un écart systématique avec les structures 3D. Cet écart dû à des effets dimensionnels justifie bien la nécessité des simulations 3D.

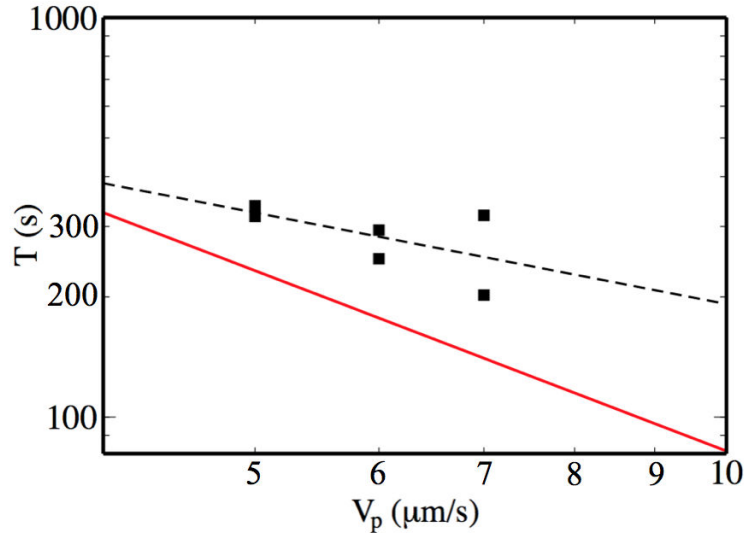


FIGURE 49 – Comparaison des périodes d'oscillation simulées en 2D avec $G = 110\text{K/cm}$ (carrés) à la loi expérimentale $T = 2600V_p^{-1.5}$ (ligne continue). La ligne discontinue est le résultat d'un ajustement des points numériques donnant la forme $T_{num} = 1100V_p^{-0.76}$. Anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. Les échelles sont logarithmiques.

4.5 Cycle limite

Dans le voisinage de la partie supérieure du domaine d'instabilité, $6 \leq V_p \leq 9 \mu\text{m/s}$, on observe une saturation de l'instabilité. Les variations de la position relative des pointes $\Delta z(t) = z_1 - z_2$ et de la largeur relative des cellules $\Delta \lambda(t) = \lambda_1 - \lambda_2$ sont représentées sur la figure 50. Elles montrent des oscillations d'amplitude constante proche de 5 et $15 \mu\text{m}$, respectivement. Chaque signal est de forme sinusoïdale, avec un déphasage qui apparaît entre les oscillations de la pointe et de la largeur (figure 50).

La valeur instantanée $\Delta \lambda(t)$ dépend du niveau auquel la mesure de la largeur est effectuée. Plus

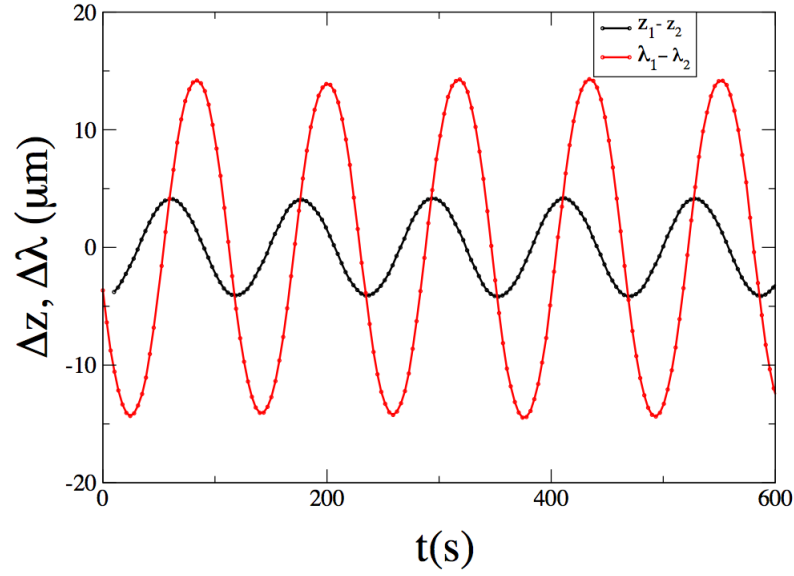


FIGURE 50 – Variation sinusoïdale de la largeur et de la hauteur relatives des deux structures à une vitesse $V_p = 8 \mu\text{m/s}$, $\lambda = 75 \mu\text{m}$, un gradient thermique $G = 110 \text{K/cm}$, une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$ et la période d'oscillation $T = 117 \text{s}$.

on s'éloigne de la pointe, plus on remonte dans le temps : ce qui se passe au niveau du sommet à l'instant t se retrouve plus tard à une distance donnée de la pointe (figure 51). Pour cette

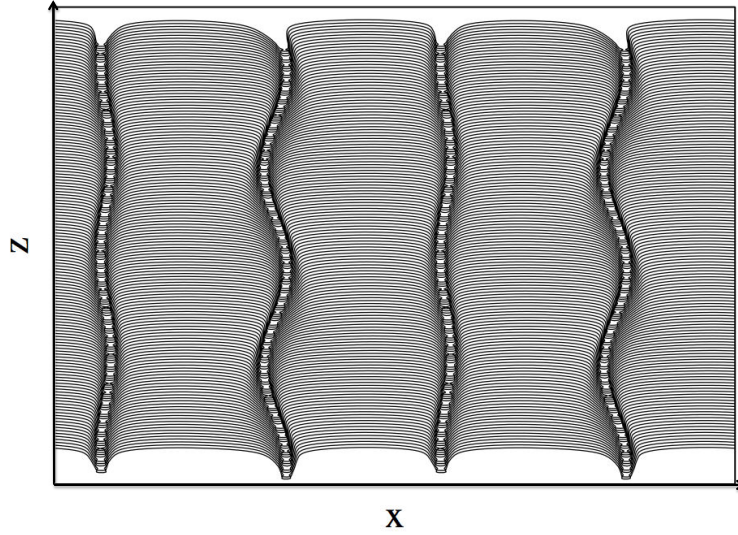


FIGURE 51 – Diagramme spatio-temporel obtenu numériquement à $V_p = 8\mu\text{m/s}$, $\lambda = 75\mu\text{m}$, pour un gradient thermique $G = 110\text{K/cm}$ et une anisotropie cristalline $\epsilon_4 = 1.1\%$. La période d'oscillation est $T = 117\text{s}$. L'image montre le front de solidification à des instants séparés de 1.75 secondes.

raison, nous calculons la largeur λ à un niveau donné et nous compensons le décalage induit par translation entre la pointe et le niveau de la mesure. Comme le montre la figure 52, le tracé de $\Delta\lambda$ corrigé temporellement en fonction de Δz décrit un cycle limite. Un déphasage de l'ordre de 10° entre les oscillations verticales de la pointe et les oscillations horizontales de la largeur est mis en évidence.

Dans l'expérience, les difficultés qui ont été rencontrées pour observer des oscillations cohérentes

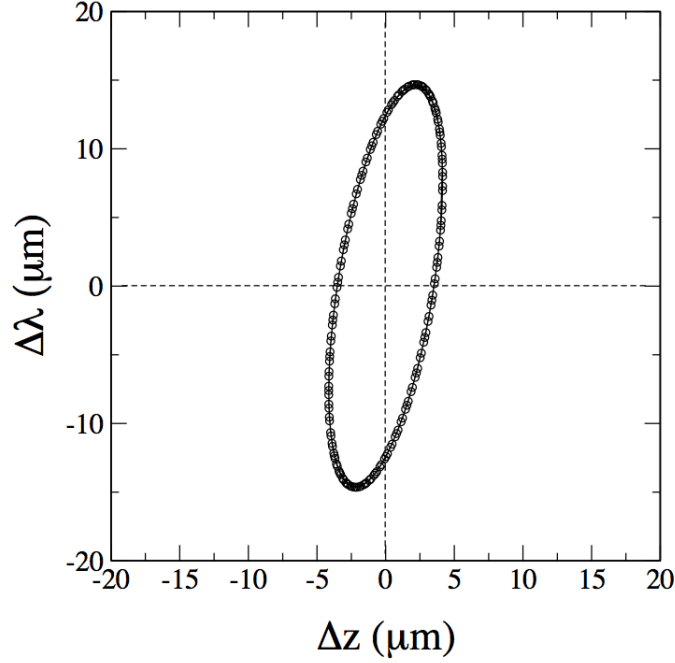


FIGURE 52 – Cycle limite correspondant à des oscillations obtenues à une vitesse $V_p = 8\mu\text{m/s}$, $\lambda = 75\mu\text{m}$, $G = 110\text{K/cm}$ et $\epsilon_4 = 1.1\%$.

qui se maintiennent au cours du temps a compliqué l'obtention d'un cycle limite [5, 9]. En comparaison avec l'expérience (figure 53), on remarque que les deux tracés, expérimental et numérique, sont en bon accord en ce qui concerne l'amplitude des oscillations de la largeur et de la hauteur. Cependant, le cycle limite expérimental est obtenu pour $G = 140\text{K/cm}$, un gradient plus grand que celui utilisé dans nos simulations, où la forme des structures est sensiblement différente. Ce cycle semble être très sensible à la forme des cellules et donc aux paramètres physiques. Cela peut expliquer qu'expérimentalement un déphasage de -10° est obtenu (figure 53). Numériquement, nous avons pas pu obtenir des oscillations cohérentes et qui se maintiennent au cours du temps à un gradient $G = 140\text{K/cm}$. À titre d'essai, nous avons donc réalisé des simulations avec une

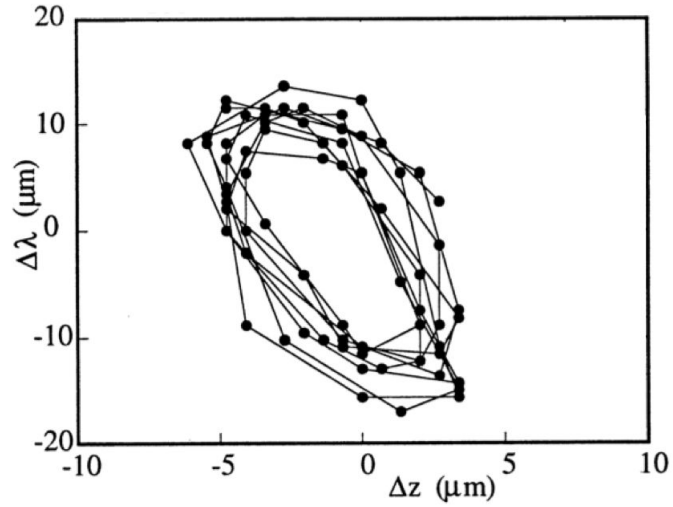


FIGURE 53 – Cycle limite expérimentale correspondant à des oscillations obtenues à une vitesse $V_p = 13\mu\text{m/s}$, $\lambda = 45\mu\text{m}$ et $G = 140\text{K/cm}$. Image tirée de la thèse de Marc Georgelin [5].

anisotropie cristalline différente $\epsilon_4 = 0.7\%$. Nous avons obtenu des oscillations bien régulières à une vitesse $V_p = 15.74\mu\text{m/s}$ et un gradient thermique $G = 110\text{K/cm}$. Les résultats numériques correspondants sont présentés sur la figure 54. Ici également, la modification de l'anisotropie cristalline provoque un changement de déphasage du cycle limite. Cela est cohérent avec l'idée que le cycle limite est très sensible aux paramètres physiques.

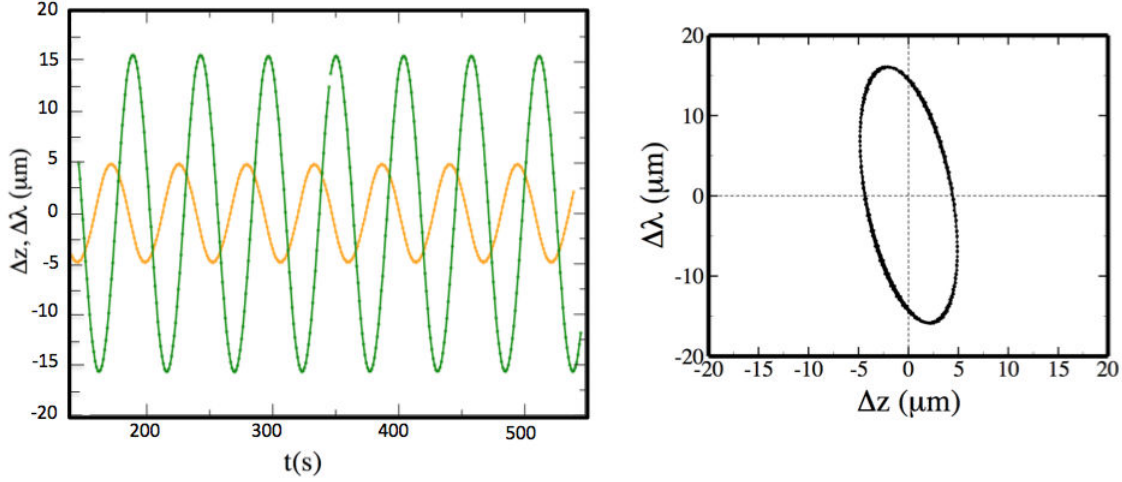


FIGURE 54 – Oscillations de la largeur et de la hauteur et le cycle limite correspondant obtenus numériquement à une vitesse $V_p = 15.74 \mu\text{m/s}$, $\lambda = 57.5 \mu\text{m}$, $G = 110 \text{K/cm}$ et $\epsilon_4 = 0.7\%$.

4.6 Forçage

Le forçage des structures de solidification a déjà été étudié numériquement et expérimentalement, par exemple dans le cas des doublets forcés par un rayonnement UV étudiés par Wolfgang Losert et ses collaborateurs dans la référence [55]. Dans le but de mieux comprendre la nature du mode oscillant $2\lambda - O$, nous forçons cette instabilité à se développer à la limite de sa gamme d'existence spontanée. Nous cherchons à vérifier dans ce paragraphe si le mode forcé a bien les mêmes caractéristiques que le mode libre. Nous étudions la réponse du système en terme de période d'oscillation en fonction de la période de forçage et nous comparons les oscillations forcées obtenues avec les résultats expérimentaux discutés dans la thèse de Marc Georgelin [5]. Un avantage supplémentaire de la simulation, qui est sensiblement complémentaire à l'expérience, est que l'on peut faire varier la période de forçage avec un pas plus fin. Cela nous permet de localiser plus précisément le pic de résonance de l'instabilité des cellules.

Nous suivons la même démarche que dans l'expérience en imposant une perturbation temporelle sous la forme d'une vitesse de tirage sinusoïdale $V_p(t)$,

$$V_p(t) = V_p + \delta V_p \cos\left(\frac{2\pi}{T_f}t\right), \quad (137)$$

où V_p est la vitesse moyenne, δV_p l'amplitude d'oscillation et T_f la période temporelle de forçage. Ces deux derniers paramètres permettent de modifier le forçage et d'explorer la réponse du système. Comme le but ici est essentiellement l'étude de la réponse du système en période d'oscillation en fonction de la période de forçage, à une vitesse de tirage V_p donnée nous fixons

l'amplitude δV_p à une valeur permettant d'établir un mode $2\lambda - O$ relativement stable dans le temps. Généralement, δV_p est comprise entre 0.2 et 0.5 $\mu\text{m/s}$. En revanche, nous varions assez largement la période de forçage T_f .

4.6.1 Variation de la période de forçage

Comme nous l'avons déjà montré sur la figure 48, il existe des oscillations de très faible amplitude qui s'amortissent au cours du temps. Ce sont de bonnes candidates pour le forçage. Nous avons choisi la vitesse $V_p = 7\mu\text{m/s}$ à laquelle des structures de largeur $\lambda = 65.5\mu\text{m}$ oscillent avec une amplitude de $2\mu\text{m}$ avant de s'amortir et avec une période naturelle d'oscillation $T = 201\text{s}$. L'amplitude du forçage est fixée ici à $\delta V_p = 0.2\mu\text{m/s}$. En appliquant une perturbation sinusoïdale, on peut observer deux comportements différents :

- Les cellules avancent et reculent en phase. Le front suit les variations de la vitesse ce qui induit un mouvement périodique à la période de forçage.
- Les cellules présentent un mouvement d'oscillation de leurs largeurs et de leurs hauteurs en opposition de phase comme dans le cas du mode $2\lambda - O$ libre. Ces oscillations se produisent à la période temporelle double de la période de forçage.

Ces modes peuvent soit coexister soit apparaître séparément au cours du temps. Afin de mieux comprendre ces comportements, nous avons testé plusieurs périodes T_f . Sur la figure 55, nous représentons l'amplitude des oscillations en opposition de phase obtenues en forçant le système à une période donnée. Une amplitude nulle correspond à un mouvement en phase des structures. Dans le cas d'un mélange des modes en phase et en opposition de phase, le choix du mode dominant repose sur la durée comparée des deux modes.

En dehors d'un intervalle assez restreint autour de $T_f = T/2$, le système semble hésiter entre réagir au forçage où les cellules suivent toutes la variation de la vitesse de tirage imposée, ou bien rester libre et reproduire le mode $2\lambda - O$ à sa période naturelle. Cela explique que l'on observe encore une opposition de phase pendant un intervalle de temps très court et que le reste du temps ce sont essentiellement des oscillations en phase à la période de forçage.

Les périodes très proches de $T_f = T/2$, induisent toujours un comportement initialement uniforme où les structures oscillent en phase, puis elles parviennent au bout de quelques périodes à déclencher les oscillations en opposition de phase du mode $2\lambda - O$. Le système réagit donc avec une période double de la période de forçage.

Nous remarquons sur la figure 55 que l'amplitude des oscillations forcées atteint un maximum à une période de forçage légèrement supérieure à la demi-période d'oscillation naturelle $T/2$. Ce léger décalage est similaire à celui d'un oscillateur mécanique forcé. Pour la période de forçage $T_f = 115\text{s}$, le système a pu maintenir durant plus que six périodes des oscillations en opposition de phase avec une période $T = 230\text{s}$ qui est le double de T_f et une amplitude moyenne d'oscillation égale à $7\mu\text{m}$. Il est clair que l'ajustement de nos points numériques n'est pas facile car nos données sont très dispersées. Nous avons essayé un ajustement par une lorentzienne et par une

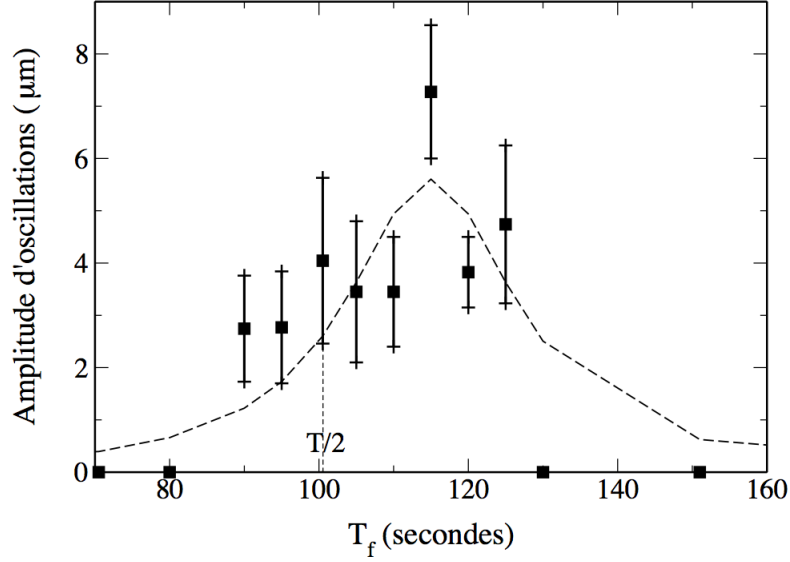


FIGURE 55 – Variation de l’amplitude des oscillations $2\lambda - O$ en fonction la période de forçage T_f à une vitesse $V_p = 7\mu\text{m/s}$, $\lambda = 65.5\mu\text{m}$, $G = 110\text{K/cm}$. La période d’oscillation naturelle est $T = 201\text{s}$. Une amplitude nulle correspond à une oscillation en phase. La courbe en pointillé est un ajustement des points numériques (carrés) sous la forme d’une lorentzienne donnant l’expression $433 / [73 + (T_f - 115)^2] + 0.34$.

gaussienne mais la forme asymétrique de la lorentzienne représente le choix le plus raisonnable bien qu’il ne soit pas complètement convaincant ici.

Le résultat principal de ce paragraphe est donc l’apparition du mode oscillant au double de la période de forçage et avec une période spatiale double (2λ) (des oscillations en opposition de phase). Pour mettre en évidence un lien naturel entre le forçage et le doublement de la période temporelle d’oscillations, nous représentons sur la figure 56 la variation temporelle de la concentration moyenne c_{moy} sur un plan situé à $4.2\mu\text{m}$ au dessus des pointes. Nous avons considéré ici la vitesse $V_p = 9\mu\text{m/s}$ à laquelle des structures de largeur $\lambda = 77.5\mu\text{m}$ oscillent naturellement avec une amplitude régulière de $15\mu\text{m}$ et avec une période naturelle d’oscillation $T = 108\text{s}$. Nous remarquons que la concentration moyenne c_{moy} oscille à la demi-période du mode oscillant ($2\lambda - O$). Pour mieux comprendre ce comportement, nous traçons sur la figure

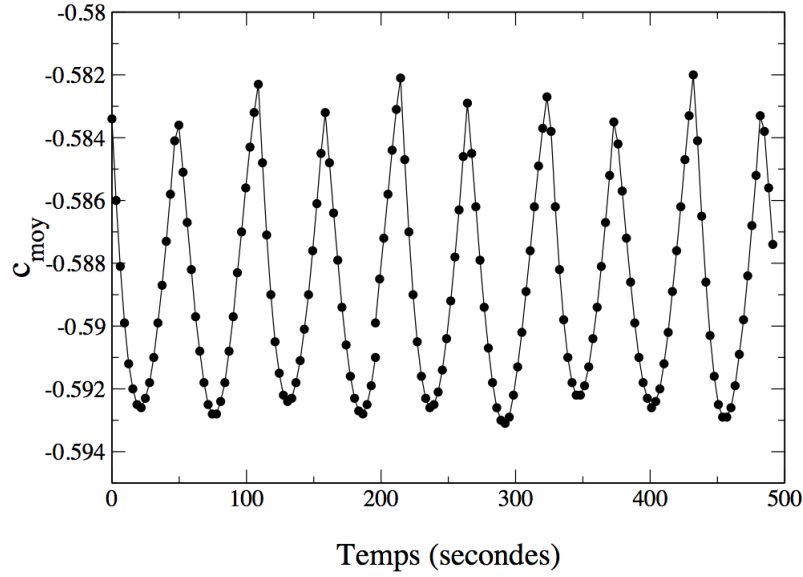


FIGURE 56 – Oscillations de la concentration moyenne sur un plan situé quelques microns ($4.2\mu\text{m}$) au dessus des pointes des structures correspondant à une vitesse $V_p = 9\mu\text{m/s}$, $\lambda = 77.5\mu\text{m}$, $G = 110\text{K/cm}$ et une période d'oscillation naturelle $T = 108\text{s}$.

57 la différence des deux concentrations qui sont moyennées sur les demi-plans situés au dessus des pointes (comme indiqué sur le schéma à droite de la figure). Avec une bonne approximation, on obtient des oscillations sinusoïdales à la période des oscillations naturelle $T = 108\text{s}$. Cela montre donc qu'un forçage à la période T_f peut induire des oscillations en opposition de phase (2λ) avec une période $2T_f$.

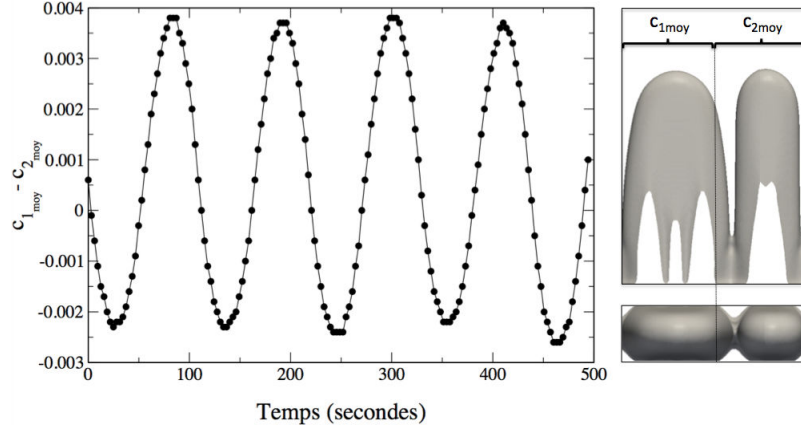


FIGURE 57 – Oscillations de la différence de la concentration moyenne des deux structures correspondant à une vitesse $V_p = 9\mu\text{m/s}$, $\lambda = 77.5\mu\text{m}$, $G = 110\text{K/cm}$ et une période d'oscillation naturelle $T = 108\text{s}$.

4.7 Conclusion

Nous avons mis en évidence le mode d'oscillant en nous appuyant toujours sur des résultats expérimentaux dans des lames minces [5, 9]. Ce mode $2\lambda - O$ correspond à des oscillations en opposition de phase en largeur et en hauteur de deux cellules voisines. Nous avons étudié ce mode en régime libre en nous basant sur le diagramme de stabilité expérimental puis en régime forcé en déterminant sa réponse à un forçage temporel périodique. Nos simulations 2D préliminaires n'ayant pas donné de résultats concluants pour la recherche du mode $2\lambda - O$ dans le domaine d'existence expérimental, nous avons donc systématiquement réalisé des simulations tridimensionnelles pour étudier ce mode.

Pour ces simulations, un excellent accord avec l'expérience est obtenu en ce qui concerne la gamme des vitesses auxquelles le mode $2\lambda - O$ apparaît. Quant à la gamme des tailles, nous avons remarqué que nos espacements numériques sont systématiquement inférieurs à ceux obtenus dans les expériences. Cela explique probablement l'absence de résultats numériques dans la zone des cellules larges. Les oscillations des cellules à petite taille n'ont pas pu être observées car les structures sont peu profondes par rapport à l'expérience et les simulations amènent systématiquement à une élimination dans ce régime. Il en résulte donc une existence des tailles intermédiaires qui marque un léger recouvrement avec les points expérimentaux.

Les périodes d'oscillation obtenues numériquement forment un bon regroupement autour de la loi expérimentale donnée par l'équation (136) [5]. Les résultats expérimentaux et numériques

coïncident à nouveau avec un bon accord quantitatif. De plus, nos simulations ont montré une variation de la période en fonction de la largeur des structures, un résultat qui avait été brièvement discuté mais qu'il est difficile à tester expérimentalement. Nos résultats numériques ont montré une sensibilité importante des oscillations de la largeur et de la hauteur aux paramètres physiques qui se traduit par un changement de direction du cycle limite résultant.

Par ailleurs, nous avons forcé le système en appliquant une perturbation temporelle sous la forme d'une vitesse de tirage sinusoïdale, afin d'induire le mode $2\lambda - O$ de manière systématique. Le mode oscillant forcé est apparu soit sous la forme d'oscillations en phase à la période du forçage, soit comme un mode $2\lambda - O$ à la période temporelle double de la période de forçage. Il à noter que le mode $2\lambda - O$ ne s'est manifesté que sur une gamme assez réduite de la période de forçage autour de la demi-période d'oscillation naturelle. Ce comportement est assez similaire à celui qui a été observé expérimentalement.

Conclusion générale

Ce mémoire présente un travail consacré à l'étude des microstructures de solidification dirigée pour un alliage binaire dilué à base de succinonitrile, à l'aide d'une méthode numérique s'appuyant sur le formalisme du champ de phase. C'est une méthode qui permet de traiter le problème de la solidification dans des situations expérimentales variées.

Après un bref rappel du contexte dans lequel s'inscrit ce travail, des principes de base de la solidification dirigée et des différentes instabilités morphologiques (chapitre 1), une description du modèle de champ de phase en solidification dirigée est réalisée dans le deuxième chapitre. L'analyse asymptotique développée dans ce chapitre détermine la forme du courant correctif de l'équation de diffusion. Ce courant est introduit pour minimiser le piégeage de soluté dans la phase solide [10, 13]. Nous avons également reformulé les équations constitutives du modèle (c'est à dire les équations (77) et (79)) en utilisant le préconditionnement proposée par Glasner [15, 20]. Avec cette technique, il est possible d'utiliser un pas de réseau et donc un pas de temps plus grands, ce qui réduit considérablement le temps de calcul. Notre code a été validé systématiquement par un test de convergence avec l'épaisseur d'interface qui consiste à s'assurer qu'aucune ramification ne se produit. Pour déclencher les instabilités secondaires un bruit spatio-temporel a été introduit au modèle [3, 22, 23, 24].

C'est ce modèle du champ de phase qui est à la base du code tridimensionnel que nous avons développé. Initialement, ce code nous a permis l'étude de la désorientation de l'axe cristallin du matériau par rapport à l'axe du gradient thermique imposé par le procédé de la solidification dirigée. Ce sont des situations couramment rencontrées durant les processus industriels, qui modifient considérablement les microstructures de la solidification, et donc les propriétés mécaniques du matériau. L'étude s'appuie sur des résultats obtenus expérimentalement pour la solidification dirigée du succinonitrile en lames minces [6, 7, 8]. Les résultats numériques obtenus sont présentés dans le chapitre 3 et ils sont comparés qualitativement et quantitativement avec les observations expérimentales. Les simulations nous ont permis de tester la variation de la direction de croissance des microstructures avec de nombreux paramètres comme l'épaisseur de l'échantillon et sa largeur, la force de l'anisotropie cristalline et le niveau de bruit, et de la comparer avec la loi expérimentale DGP décrite par les équations (131) et (132). Cette loi donne la réponse en orientation des microstructures sur l'ensemble de leur domaine d'existence en nombre de Péclet.

Un premier test a montré que les simulations bidimensionnelles ont un comportement qualitatif similaire à l'expérience mais une différence quantitative avec la loi DGP a été mise en évidence. Cela confirme qu'il est nécessaire d'assurer une description quantitative donc réaliser des simulations 3D. Malgré l'utilisation de domaines d'épaisseur et de largeur inférieures à celles de l'expérience, nos simulations tridimensionnelles ont permis d'obtenir des accords qualitatifs

et quantitatifs très satisfaisant avec les expériences. Un très bon accord est obtenu pour les formes des structures, leurs orientations et leurs instabilités à grandes désorientations. En ce qui concerne la loi d'orientation, ce bon accord valide le fait que l'angle de croissance θ dépend à la fois du nombre de Péclet et de l'angle de désorientation θ_0 .

De plus, de nouvelles informations pertinentes sont apportées par les simulations numériques. Nous avons montré que l'épaisseur de l'échantillon n'influence pas réellement la direction de croissance des microstructures, un résultat qui avait été noté expérimentalement [6]. Nous avons aussi remarqué que si le bruit spatio-temporel introduit dans notre modèle est bien nécessaire pour faire apparaître les branchements secondaires quand elles existent, il n'affecte pas l'orientation des microstructures. Enfin, une valeur d'anisotropie proposée récemment $\epsilon_4 = 1.1\%$ [40] nous a permis d'obtenir un meilleur accord avec la loi DGP en comparaison à la valeur indiquée dans la littérature. Par conséquent, nous avons gardé $\epsilon_4 = 1.1\%$ dans la suite de notre étude.

Une deuxième partie de ce chapitre consiste à étudier le mode dégénéré. C'est un mode de croissance purement instationnaire durant lequel le système ne forme plus de dendrites mais des structures instables et soumises en permanence à des coupures de pointe (tip-splitting). Ce mode est également bien décrit par notre modèle du champ de phase. Les résultats expérimentaux et numériques coïncident à nouveau avec une précision très satisfaisante. Ainsi, un bon accord quantitatif a été trouvé pour la frontière de la transition mode dendritique-dégénéré.

Dans le chapitre 4, nous avons considéré une dynamique de croissance encore plus complexe et plus rare (c'est le mode oscillant appelé $2\lambda - O$) en nous appuyant toujours sur des résultats expérimentaux dans des lames minces [5, 9]. Dans ce mode, deux cellules voisines oscillent en opposition de phase en largeur et en hauteur. Nous avons caractérisé ce mode et son évolution en régime libre et en régime forcé. Nos simulations 2D n'ont pas donné de résultats probants pour la recherche du mode $2\lambda - O$ dans le domaine d'existence expérimental. Nous avons donc systématiquement utilisé notre code tridimensionnel pour réaliser l'étude de ce mode. Un excellent accord est obtenu en ce qui concerne la gamme des vitesses auxquelles le mode $2\lambda - O$ apparaît et la période des oscillations. Nos données numériques suivent raisonnablement bien la loi expérimentale donnée par l'équation (136) [5].

Ces oscillations ont été observées sur une zone d'espacements intermédiaires par rapport aux tailles expérimentales. Nous avons remarqué, tout au long de ce travail de thèse, que les tailles numériques sont toujours inférieures à celles obtenues dans l'expérience ce qui explique donc l'absence de résultats numériques dans la zone des cellules larges. L'origine de ce désaccord n'est pas complètement élucidée à ce jour. Les oscillations à petite taille n'ont pas pu être observées car les structures sont peu profondes par rapport l'expérience et les simulations amènent systématiquement à une élimination dans ce régime. De plus, nos simulations ont montré la sen-

sibilité des oscillations aux paramètres physiques visible notamment sur le cycle limite résultant.

Nos résultats numériques ont montré une sensibilité des oscillations de la largeur et de la hauteur aux paramètres physiques qui se traduit par un changement de direction du cycle limite résultant.

Dans une seconde partie de ce chapitre, nous étudions la situation où le système est soumis à une variation sinusoïdale de vitesse de tirage afin d'obtenir un mode $2\lambda - O$ forcé. Les oscillations obtenues varient entre des oscillations en phase à la période du forçage et en opposition de phase à la période temporelle double de la période forcée. C'est un comportement assez similaire à celui qui a été observé expérimentalement.

En conclusion, le bon accord entre l'expérience et les simulations révèle la force et la versatilité de la méthode utilisée. Cela valide notre code numérique tridimensionnel et prouve sa capacité à reproduire la dynamique de solidification non seulement qualitativement mais aussi quantitativement. En conséquence, on peut maintenant envisager d'utiliser notre approche pour étudier la dynamique de la pointe (rayon de courbure) ou la dynamique des branchements secondaires ou pour simuler des conditions de solidification encore plus complexes, éventuellement en réseau étendu tridimensionnel, tout en restant au contact de l'expérience.

Références

- [1] J.A. Dantzig, M. Rappaz, Solidification, EPFL Press, Switzerland, 2009.
- [2] P. Pelcé, Théorie des formes de croissance.
- [3] N. Bergeon, D. Tournet, L. Chen, J.M. Debierre, R. Guérin, A. Ramirez, B. Billia, A. Karma et R. Trivedi, Phys. Rev. Lett. **110**, 226102 (2013).
- [4] L. Chen, Thèse de doctorat, université Aix Marseille (2013).
- [5] M. Georgelin, Thèse de doctorat, université de Provence (1997).
- [6] J. Deschamps, Thèse de doctorat, université de Provence (2007).
- [7] J. Deschamps, M. Georgelin et A. Pocheau, Phys. Rev. E **78**, 011605 (2008).
- [8] J. Deschamps, M. Georgelin et A. Pocheau, Europhys Lett. **76**, 291 (2006).
- [9] M. Georgelin et A. Pocheau, Phys. Rev. Lett. **79**, 2698 (1997).
- [10] B. Echebarria, R. Folch , A. Karma et M. Plapp, Phys. Rev. E **70**, 061604 (2004).
- [11] K. Somboonsuk et R. Trivedi, Acta. Metall. **33**, 1051 (1985).
- [12] R. Trivedi et K. Somboonsuk, Acta. Metall. **33**, 1061 (1985).
- [13] A. Karma, Phys. Rev. Lett. **87**, 115701 (2001).
- [14] A. Karma et WJ. Rappel, Phys. Rev. E **57**, 4323 (1998).
- [15] K. Glasner, J. Compt. Phys. 174 (2001).
- [16] G. Reinhart, Thèse de doctorat, université Paul Cézanne (2006).
- [17] M. W. Mullins et R. F. Sekerka, J. Appl. Phys. **35**, 444 (1964).
- [18] L.D. Landau et E.M. Lifshitz, Physique statistique, Ed. Mir (1967).
- [19] A. Wheeler et G. B. McFadden, Proc. Roy. Soc. Lond. A 453 (1997).
- [20] K. Kassner, R. Guérin, T. Ducouso et J.M. Debierre, Phys. Rev. E **82**, 021606 (2010).
- [21] T. Ducouso, Thèse de doctorat, université Paul Cézanne (2009).
- [22] A. Karma et WJ. Rappel, Phys. Rev. E **60**, 3614 (1999).
- [23] D. Tournet, A. Karma, Acta Mater. **82**, 64 (2015).
- [24] B. Echebarria, A. Karma et S. Gurevich, Phys. Rev. E **81**, 021608 (2010).
- [25] Numerical Recipes in Fortran, Second Edition.
- [26] L. Granasy, T. Pusztai, D. Saylor et JA. Warren Phys. Rev. Lett. **98**, 035703 (2007).
- [27] JA. Warren, T. Pusztai, L. Környei et L. Granasy Phys. Rev. B. **79**, 014204 (2009).
- [28] R. Trivedi et K. Somboonsuk, Mater. Sci. Eng. **65**, 65 (1984).
- [29] Ch.A. Gandin, M. Eshelman et R. Trivedi, Metall. Mater. Trans. A 2727 (1996).

- [30] J. M. Vieira, R. A. Silva, R. F. Silva et F.M. Costa, *Applied Surface Science* **258**, 9175 (2012).
- [31] A.G. Borisov, O.P. Fedorov et V.V. Maslov, *J. Cryst. Growth* **112**, 463 (1991).
- [32] W.J. Boettinger, S.R. Coriell, A.L. Greer, A. Karma, W.Kurz, M. Rappaz, et R. Trivedi, *Acta Mater.* **48**, 43 (2000).
- [33] M. Asta, C. Beckermann, A. Karma, W. Kurz, R. Napolitano, M. Plapp, G. Purdy, M. Rappaz, R. Trivedi, *Acta Mater.* **57**, 941 (2009).
- [34] S. Akamatsu et T. Ihle, *Phys. Rev. E* **56**, (1997).
- [35] M. Perrut, S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau et G. Faivre, *Phys. Rev. E* **79**, 032602 (2009).
- [36] S.H. Han et R. Trivedi, *Acta Metall. Mater.* **42**, 25 (1994).
- [37] H. Xing, J.-Y.Wang, C.-L. Chen, K.-X. Jin et L.-F. Du, *Chin. Phys. B* **23**, 038104 (2014).
- [38] J. Ghmadh, J. M. Debierre, J. Deschamps, M. Georgelin, R. Guérin et A. Pocheau, *Acta Mater.* **74**, 255 (2014).
- [39] S. Gurevich, A. Karma, M. Plapp et R. Trivedi, *Phys. Rev. E* **81**, 011603 (2010).
- [40] R. Trivedi, Communication privée.
- [41] S. Gurevich, M. Amoorezaei et N. Provatas, *Phys. Rev. E* **82**, 051606 (2010).
- [42] T. Okada et Y. Saito, *Phys. Rev. E* **54**, 650 (1996).
- [43] J. Li, Z. Wang, Y. Wang et J. Wang, *Acta Mater.* **60**, 1478 (2012).
- [44] S. Gurevich, A. Karma, M. Plapp et R. Trivedi, *Phys. Rev. E* **81**, 011603 (2010).
- [45] R. Trivedi, Y. Shen, S. Liu, *Metall. Mater. Trans. A.* **34**, 395 (2003).
- [46] M. Georgelin et A. Pocheau, *Phys. Rev. E.* **57**, 3189 (1998).
- [47] H. Jamgotchian, R. Trivedi et B. Bilia, *Phys. Rev. E.* **47**, 4313 (1993).
- [48] C. Pirat et L. Gil, *Physica D* **179**, 92 (2003).
- [49] I. Daumont, K. Kassner, C. Misbah et A. Valance, *Phys. Rev. E* **55**, 6902 (1997).
- [50] P. Couillet et G. Iooss, *Phys. Rev. Lett.* **64** (8), 866 (1990).
- [51] P. Couillet, R.E. Goldstein et G.H. Gunaratne, *Phys. Rev. Lett.* **63** (18), 1954 (1989).
- [52] K. Kassner, JM. Debierre, B. Bilia, N. Noël et H. Jamgotchian, *Phys. Rev. E.* **57**, 2849 (1998).
- [53] M. Plapp et M. Dejmek, *Europhys. Lett.* **65**, 276 (2004).
- [54] E. Meca et M. Plapp, *Metall. Mater. Trans. A.* **38**, 1407 (2007).
- [55] W. Losert, D.A. Stillman, H.Z. Cummins, P. Kopczyński, W.-J. Rappel et A. Karma, *Phys. Rev. E* **58**, 7492 (1998).