AVERTISSEMENT

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

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

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

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

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm







Université de Lorraine
Ecole Doctorale Chimie - Mécanique - Matériaux - Physique

Thèse de Doctorat

présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de Lorraine
en Science et Ingénierie des Matériaux et Métallurgie

par

Matthieu Degeiter

Etude numérique de la dynamique des défauts d'alignement des précipités γ' dans les superalliages monocristallins à base de nickel

Soutenue le 26 mars 2019 devant le jury composé de :

Florence Pettinari-Sturmel	cemes, Université Toulouse iii-cnrs	Présidente et Rapporteure
Helena Zapolsky	gpm, Université de Rouen-cnrs	Rapporteure
Céline Varvenne	cinam, Université d'Aix-Marseille-cnrs	Examinatrice
Jonathan Cormier	Institut Pprime, isae-ensma-cnrs	Examinateur
Mikael Perrut	dmas, onera	Co-encadrant de thèse
Alphonse Finel	lem, onera-cnrs	Co-encadrant de thèse
Yann Le Bouar	lem, onera-cnrs	Co-directeur de thèse
Benoît Appolaire	ijl, Université de Lorraine-cnrs	Directeur de thèse

Thèse préparée à l'onera et au
Laboratoire d'Etude des Microstructures, onera-cnrs (umr104)
29, avenue de la Division Leclerc, 92320 Châtillon

À Agathe, que j'aime de tout mon coeur et qui illumine ma vie,

Remerciements

Ce travail de thèse a été financé par l'ONERA et est issu d'une collaboration entre l'unité Matériaux Métalliques, Microstructures et Procédés (M3P) et le Laboratoire d'Etude des Microstructures (LEM, ONERA-CNRS) au Département Matériaux et Structures (DMAS) de l'ONERA. Je remercie Franck Gallerneau, Jean-François Maire et Anne Denquin de m'avoir accueilli au sein du DMAS.

Je souhaite exprimer ma gratitude envers les membres du jury pour le temps qu'ils m'ont consacré, pour la richesse de nos discussions le jour de ma soutenance, ainsi que pour leur bienveillance et leurs encouragements. Je remercie Florence Pettinari-Sturmel et Helena Zapolsky d'avoir accepté d'être les rapporteures de mon manuscrit de thèse. Je ne peux qu'imaginer le temps et le travail supplémentaires que cette tâche représente, et pour lesquels je vous remercie sincèrement. Votre lecture précise de mon manuscrit m'a beaucoup apporté et appris, et en cela je vous suis très reconnaissant. Je remercie également Céline Varvenne et Jonathan Cormier de leur participation au jury, d'avoir examiné mon travail de thèse avec intérêt, ainsi que pour les échanges enrichissants que nous avons eus.

Autant pour leurs qualités humaines que scientifiques, j'exprime ma plus profonde gratitude à mon directeur de thèse Benoît Appolaire, à mon co-directeur Yann Le Bouar et à mes encadrants Mikael Perrut et Alphonse Finel. J'ai conscience de tout ce que je vous dois, et je souhaite d'abord vous remercier de votre confiance dans ce travail de recherche. Je vous suis profondément reconnaissant du temps que vous avez pris pour me transmettre une partie de vos connaissances scientifiques, ainsi que votre curiosité et votre passion des sciences.

Mikael, je te remercie de m'avoir fait découvrir le domaine passionnant de la *pattern formation* et pour la patience avec laquelle tu m'as enseigné des méthodes d'analyses originales. Merci de ta bienveillance, de ton aide régulière et de ta disponibilité pour discuter avec moi de résultats ou de nouvelles pistes, malgré un emploi du temps très chargé.

Alphonse, je te remercie de m'avoir chaleureusement accueilli au LEM et d'avoir pris le temps de me transmettre une partie de tes vastes connaissances. Merci pour ton enthousiasme, ton dynamisme et ta rigueur scientifique qui sont une incroyable source de motivation et d'apprentissage, et qui sont aussi communicatifs que ton goût pour les équations.

Yann, je te remercie pour la patience et la pédagogie avec lesquelles tu m'as transmis des habitudes de travail méthodiques et rigoureuses, ainsi que pour les heures passées à travailler ensemble les équations de l'élasticité. Merci pour ta gentillesse et ta disponibilité, ainsi que pour tes conseils avisés qui ont largement contribué à l'aboutissement de ce travail.

Benoît, je te remercie pour ton perfectionnisme et ton exigence scientifique grâce auxquels j'ai tant appris. Merci pour ces nombreuses séances de travail menées avec beaucoup de patience et d'humour, au cours desquelles tu m'as notamment sensibilisé à la rigueur, au soin et à l'ésthétique du travail de recherche. Merci également pour ta grande disponibilité et pour tes conseils précieux qui m'ont guidé tout au long de ma thèse.

Je souhaite également adresser des remerciements tout particuliers à Jean-Sébastien Mérot. Merci Jean-Seb pour ton aide précieuse et généreuse, pour ta bienveillance ainsi que pour tout ce que tu m'as appris pendant ma thèse. Je remercie aussi Pierre Caron et Didier Locq de m'avoir transmis une partie de leurs connaissances sur les superalliages et pour le temps qu'ils m'ont consacré. Je tiens aussi à remercier Umut Salman et Damien Faurie pour leur patience, ainsi que pour leur accueil à Villetaneuse en post-doc.

Je remercie Dominique Daloz pour son accueil au sein de l'école doctorale C2MP, Sabine Denis pour sa bienveillance le jour de ma soutenance à mi-parcours, ainsi que les personnes qui m'ont apporté leur aide pour toutes les démarches administratives liées à la thèse : Viviane Cothias, Sophie Garabedian, Fadoua Hammami, Catherine Deutsch, Micheline Fougeray et Christine Sartori.

En travaillant à l'interface entre l'unité M3P et le LEM, j'ai eu la chance de rencontrer et d'interagir avec de nombreuses personnes qui ont contribué à faire de ma thèse une expérience scientifique et humaine particulièrement riche. Je souhaite remercier chaleureusement Fred, Mathieu, Hakim, Riccardo, Amandine, Benoit D., Armelle, Gilles, Annick, Ladislas, Georges et François D. ; ainsi que Agnès, Louise T., Zhao, Denis, Marie-Pierre, Sébastien, Cécile et Thomas G.
Pour tous les bons moments que nous avons vécu ensemble, je remercie également Luc, Pierre-Louis, Léonard, Ahmed, Laurent, Gader, Vanessa, Alice, Hocine, Carolina, Juba, Luis, Benoît D., Cora, Maoyuan, Henri, Alexandre, Etienne C. ainsi que Antoine R., Daniel, Francesca et Enrica. Merci à Antoine P., Laurence, Océane, François P., Thomas V., Antoine L., Christinée, Edi, Pierre, Anis, Julie, Louise, Théo et Virgil. Je tiens à adresser des remerciements particuliers à Etienne R.

Je souhaite exprimer ma reconnaissance à mes professeurs, Philippe Bocher, professeur à l'ETS Montréal, qui a dirigé mon projet de recherche de fin de maîtrise, ainsi que Bruno Dumont, Raoul Motte-Moitroux, Dominique Delesalle et Jean-Marie Odent, professeurs à HEI. J'ai également une pensée pour Dominique Crépin, qui a été mon professeur de Mathématiques et directeur du cycle préparatoire HEI.

Enfin, je remercie mes amis et ma famille, qui ont tant contribué à l'aboutissement de ce travail par leur présence, leur bienveillance et leur amour. Merci à mes amis d'enfance de Valezan, Versailles et Viroflay, et à mes amis de Montréal. Je remercie profondément mes amis de Lille pour leur soutien constant et leurs encouragements, et je souhaite en particulier témoigner ma reconnaissance à Louis, Quentin et Florence. Je remercie Patrick et Valérie, dont la présence à ma soutenance m'a particulièrement touché, ainsi que Adam, César, Edouard et Lorène, Papi Raoul et Mamie Bernadette. Je souhaite remercier mes oncles et tantes, ainsi que mes cousins et mes cousines pour leur soutien bienveillant. Merci à Emmanuel et Sophie pour leurs encouragements chaleureux et réguliers, et à William pour sa présence. Un grand merci à Marion, qui est venue d'Angleterre pour assister à ma soutenance, et pour qui j'ai une pensée particulière : Marion, tu peux compter sur moi pour être présent le jour de ta soutenance, qu'elle se déroule outre-manche ou outre-atlantique ! Je souhaite remercier ma grand-mère Maïe pour sa présence le jour de ma soutenance qui m'a beaucoup touché, et je remercie de tout mon coeur mon grand-père Fathy et mon arrière-grand-mère Mamie, à qui je pense souvent. A mes frères Romain et Thomas et à mes parents, que j'aime et à qui je dois tout : merci pour votre amour et votre soutien inconditionnels.

J'aimerais adresser mes derniers remerciements à Agathe, qui a été à mes côtés tout au long de ma thèse, pour son sourire et son amour qui rendent chaque jour plus beau.

Table des matières

Introduction 1

1 Théorie et méthodes numériques 7
1.1 Champ de phase : microstructure et élasticité . . . 8
1.1.1 Description continue de la microstructure . . . 8
1.1.1.1 Energie libre chimique . . . 9
1.1.1.2 Energie élastique . . . 10
1.1.2 Equilibre mécanique statique . . . 12
1.1.2.1 Solution analytique en élasticité homogène . . . 13
1.1.2.2 Résolution numérique en élasticité inhomogène . . . 15
1.1.2.3 Approximation du milieu élastique effectif . . . 17
1.1.3 Résolution de l'équation cinétique . . . 19
1.2 Méthodes d'analyse de la microstructure γ/γ' . . . 20
1.2.1 Morphologie des précipités . . . 20
1.2.2 Corrélations spatiales des barycentres . . . 22
1.2.3 Phénoménologie des structures hors-équilibre . . . 24
1.2.3.1 Structures modulées et diffusion de la phase . . . 24
1.2.3.2 Phases et modulations de la microstructure γ/γ' . . . 25
1.2.3.3 Squelettes des modulations et défauts de périodicité . . . 29
1.3 Conclusions . . . 30

2 Formation et dynamique des défauts d'alignement 31
2.1 Observations expérimentales et numériques . . . 32
2.2 Analyse de stabilité de la distribution périodique . . . 34
2.2.1 Perturbation statique du macroréseau cubique simple . . . 34
2.2.1.1 Instabilités d'arrangement induites par les formes . . . 38
2.2.1.2 Rôle de l'anisotropie élastique . . . 40
2.2.2 Développement des instabilités et formation de défauts . . . 41
2.2.2.1 Mode longitudinal instable selon $[\zeta, 0, 0]$ . . . 43
2.2.2.2 Mode transverse instable selon $[\zeta, \zeta, 0]$ . . . 44
2.3 Contributions stabilisantes de l'arrangement périodique . . . 44
2.3.1 Fraction volumique de phase γ' . . . 45
2.3.1.1 Paysages de stabilité des branches L et T_2 . . . 45
2.3.1.2 Ecrantage des interactions élastiques . . . 46

2.3.2 Inhomogénéité du module C' . . . 50
2.3.2.1 Courbures de l'énergie élastique de configuration . . . 50
2.3.2.2 Stabilisation, croissance et couplage de longueurs d'onde . . . 52
2.4 Dynamique des défauts d'alignement . . . 56
2.4.1 Montée et glissement des défauts pendant un recuit isotherme . . . 56
2.4.2 Evolution des défauts d'arrangement lors d'une mise en radeaux . . . 61
2.5 Conclusions et perspectives . . . 63

3 Modélisation champ de phase de microstructures à grande échelle **65**
3.1 Méthode de champ de phase S-PFM . . . 66
3.1.1 Formulation discrète de la méthode des champs de phase . . . 66
3.1.1.1 Formulation 1D invariante par translation . . . 66
3.1.1.2 Formulation discrète 3D . . . 68
3.1.2 Couplage d'un champ conservé et approche multichamps . . . 71
3.1.3 Couplage avec l'élasticité . . . 76
3.1.4 Stabilité du schéma mécanique . . . 78
3.2 Calibration du laplacien discret . . . 81
3.3 Modélisation de microstructures à grande échelle . . . 84
3.3.1 Statistiques des effets élastiques sur la taille des précipités . . . 84
3.3.2 Statistiques de l'influence de l'inhomogénéité en C' . . . 91
3.3.2.1 Etude de la taille, de la forme et de l'arrangement . . . 92
3.3.2.2 Analyse des densités de défauts d'alignement . . . 96
3.3.3 Synthèse des simulations à grande échelle . . . 99
3.4 Conclusions et perspectives . . . 100

Conclusions et perspectives **105**

Bibliographie **109**

Introduction

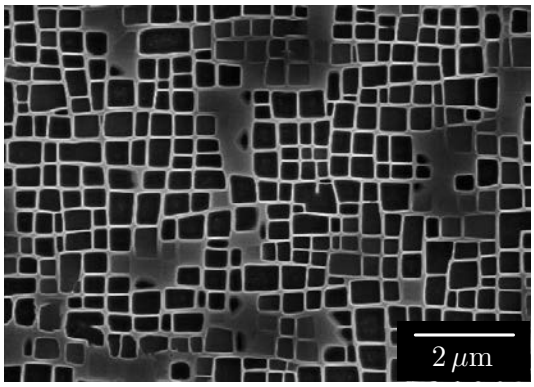
La forme et l'arrangement spatial des phases qui constituent un alliage métallique forment sa microstructure. Cette microstructure détermine les caractéristiques macroscopiques de l'alliage, comme par exemple ses propriétés mécaniques. Leur amélioration pour une application spécifique nécessite ainsi de mieux comprendre la formation et de l'évolution de la microstructure qui les détermine. Le travail présenté dans ce mémoire de thèse s'inscrit dans le domaine d'étude de l'évolution de microstructures issues de transformations de phase diffusives à l'état solide. Dans les alliages multiphasés, les différences de structure et/ou de composition entre les phases qui coexistent sont à l'origine d'un désaccord paramétrique entre elles. Si ce désaccord est tel que les interfaces entre matrice et précipités restent cohérentes, il déforme élastiquement le réseau cristallin. Une déformation libre est alors définie entre les phases pour caractériser le changement de structure et/ou de composition qui survient au cours de la transformation. L'ajustement cohérent du désaccord paramétrique génère ainsi des champs élastiques à longue distance dans la microstructure, qui peuvent avoir une influence significative sur sa formation et son évolution [48].

L'un des premiers effets remarquables de l'élasticité sur une microstructure cohérente est de modifier l'équilibre thermodynamique des phases [15, 26, 59]. Cet effet a notamment été étudié dans les travaux de Larché et Cahn [21, 56, 57, 58] et Johnson et Voorhees [47]. Il est ainsi nécessaire de distinguer le diagramme de phase incohérent du diagramme de phase cohérent, comme présenté par Allen et Cahn sur un diagramme Fe-Al [5]. Dans cette dernière étude, l'élasticité réduit la taille des domaines biphasés, ce qui modifie naturellement les concentrations et les fractions volumiques d'équilibre des phases.

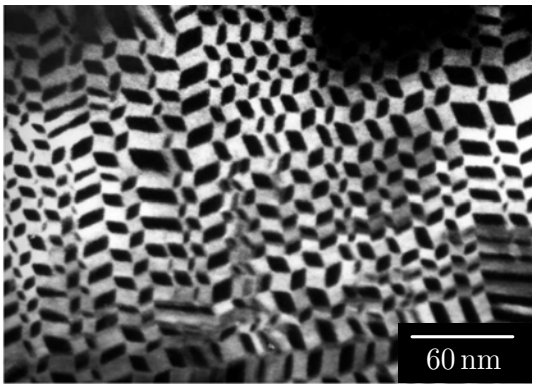
Les champs élastiques issus de la cohérence des interfaces sont généralement fortement anisotropes. Leur anisotropie peut provenir de la déformation libre, dans le cas d'une différence de structure entre matrice et précipité, ou encore des constantes élastiques associées à ces phases. Ainsi, une inclusion cohérente peut génèrer des champs élastiques anisotropes, qui affectent alors l'évolution de sa forme. Les travaux de Thompson, Su et Voorhees [91] sur la morphologie d'une inclusion cohérente décrivent la sélection d'une forme d'équilibre comme le résultat de la compétition entre l'énergie d'interface et l'énergie élastique du précipité. L'énergie d'interface prédomine cette compétition pour les précipités de petites tailles, tandis que l'élasticité l'emporte pour les inclusions plus grandes. Cette compétition donne lieu à une transition de forme des précipités pendant leur croissance, vers des morphologies favorisées par l'anisotropie de l'élasticité.

Lorsque la fraction volumique de seconde phase est suffisamment élevée, les champs élastiques à longue distance induits par les inclusions se recouvrent et interagissent. Ces interactions élastiques affectent la forme des précipités, et favorisent également la formation d'arrangements grâce auxquels les champs anisotropes générés par chaque inclusion se compensent [48].

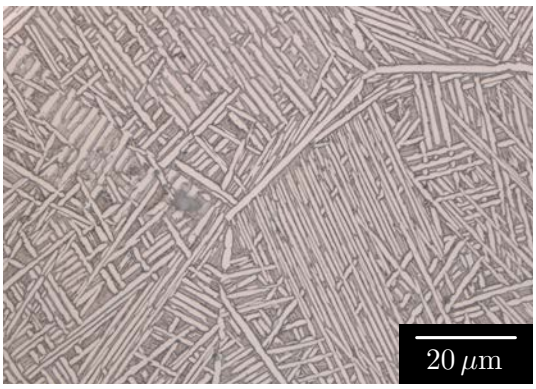
Dans certains alliages, l'élasticité conduit à la formation de microstructures étonnantes, dans lesquelles des précipités de forme anisotrope sont corrélés spatialement à longue distance (figure 0.1).



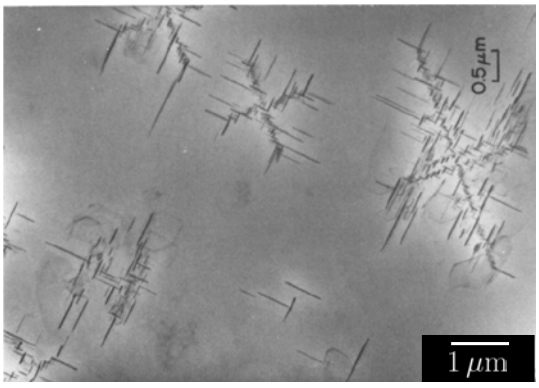
Structures en cuboïdes dans un superalliage monocristallin base Ni (F. Diologent [33])



Structures en damiers dans un alliage Co-Pt (Y. Le Bouar [13])



Structures de Widmanstätten en colonies d'aiguilles parallèles, dans un alliage base Ti (E. Aeby-Gautier *et al* [89])



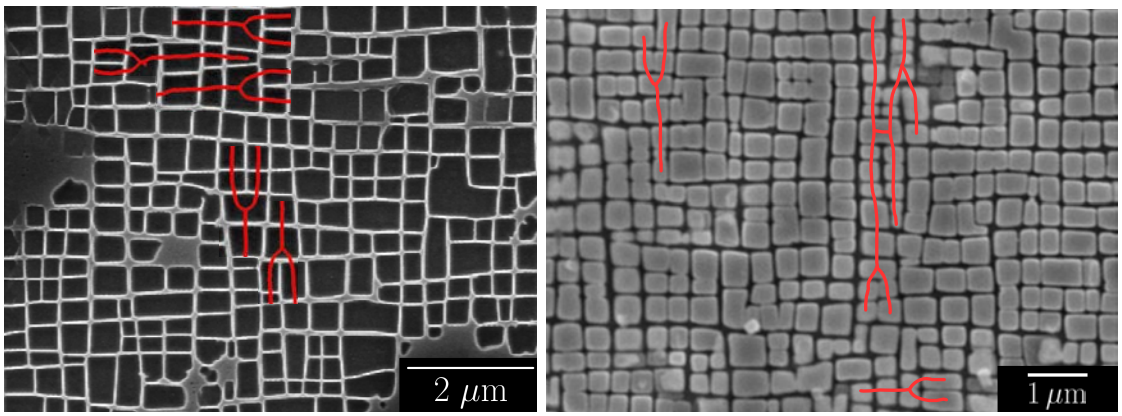
Structures en croix formées d'empilements de plaquettes, dans un alliage Al-wt.3%Cu (Perovic *et al* [75])

Figure 0.1: Exemples de microstructures formées sous l'influence de l'élasticité.

Dans ce manuscrit, nous nous intéressons à la microstructure γ/γ' des superalliages monocristallins à base de nickel. Cette microstructure est obtenue par précipitation de la phase γ' ordonnée $L1_2$ dans la matrice CFC γ, et l'élasticité joue un rôle essentiel dans sa formation et son évolution.

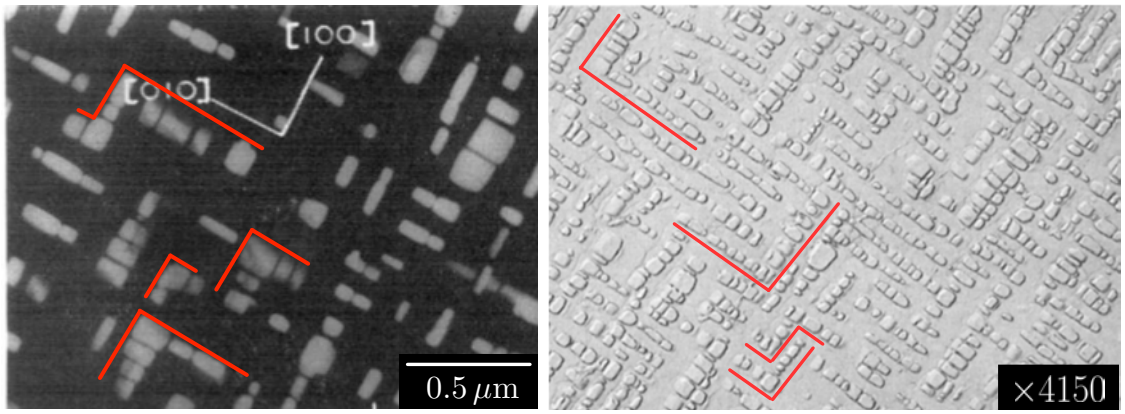
La précipitation de la phase γ' par mise en ordre cohérente entraîne la continuité des plans et directions cristallograpiques des structures de la matrice et des précipités. Les différences de composition entre les phases γ et γ' font cependant de chaque précipité un centre de contraction ou de dilatation isotrope du réseau cristallin, suivant le signe du désaccord paramétrique. Les constantes élastiques des phases possèdent une anisotropie cubique, qui est responsable de la forme cuboïdale et de l'arrangement des précipités. Leur morphologie évolue de sphéroïde à cuboïde pendant leur croissance, en raison de la compétition discutée précédemment entre l'énergie d'interface isotrope et l'énergie élastique anisotrope [48, 65, 66, 91]. Les interactions élastiques entre précipités favorisent leur alignement progressif selon les directions cubiques de la matrice [48, 85]. Cette reconfiguration induite par l'élasticité conduit à la formation d'arrangements quasi-périodiques de précipités cuboïdaux, comme celui présenté sur la figure 0.1.

De nombreuses études consacrées à la microstructure γ/γ' ont permis de mieux comprendre le rôle des interactions élastiques anisotropes dans la formation des alignements de précipités cuboïdaux. La microstructure γ/γ' possède cependant des défauts systématiques d'alignement de précipités γ'. A forte fraction volumique, des branches et des macro-dislocations dans les modulations brisent systématiquement la périodicité de l'arrangement (figure 0.2) [22, 33, 40, 88]. A de plus faibles fractions volumiques, des rangées de précipités alignées selon [100] et [010] tendent à être adjacentes, formant ainsi des structures coudées que nous appelons des motifs en chevrons (figure 0.3) [8, 10, 62, 64].



F. Diologent [33] D. Texier [88]

FIGURE 0.2: Défauts de périodicité dans l'arrangement des précipités de microstructures γ/γ' expérimentales à fortes fractions volumique de phase γ' : branches et macro-dislocations.



A.J. Ardell et R.B. Nicholson [8] W. T. Loomis *et al* [64]

FIGURE 0.3: Défauts de périodicité dans l'arrangement des précipités de microstructures γ/γ' expérimentales à de plus faibles fractions volumique de phase γ' : structures coudées ou motifs en chevrons.

Malgré les nombreuses études consacrées à la formation et à l'évolution de la microstructure γ/γ', l'origine et la dynamique des défauts de périodicité restent mal comprises. Ces travaux de thèse ont pour objectif d'étudier la dynamique des défauts d'alignement des précipités. Nous nous intéressons ainsi à l'influence de l'élasticité sur la formation et l'évolution des défauts identifiés sur les figures 0.2 et 0.3 dans la microstructure des superalliages monocristallins à base de nickel.

Dans ce contexte, nous avons besoin de méthodes numériques pour simuler l'évolution de la microstructure γ/γ' en couplant les forces motrices d'origine chimique et élastique. Dans la littérature, les travaux de recherche sur les superalliages ont conduit au développement d'approches pour étudier la microstructure γ/γ' à différentes échelles. A l'échelle macroscopique, des modèles mécaniques [25, 42, 44] incorporant une description de la microstructure [9, 32, 63, 98] ont été développés pour étudier le comportement mécanique des superalliages. A l'échelle microscopique ou atomique, plusieurs approches permettent d'étudier les mécanismes intervenant dans l'évolution de la microstructure à des échelles d'espace et de temps plus fines, par exemple la dynamique moléculaire [60, 106], ou encore les approches de type Monte Carlo [96, 97]. Dans notre étude, nous choisissons d'étudier la microstructure γ/γ' à une échelle intermédiaire. A l'échelle mésoscopique, il existe deux approches permettant de modéliser le couplage entre élasticité et microstructure : l' approche à interfaces étroites et la méthode des champs de phase.

Un modèle à interfaces étroites a été développé par Thornton *et al* [92, 93] pour simuler l'évolution d'une microstructure constituée de précipités dispersés en interaction élastique, au cours d'un régime de coalescence. Ces travaux ont notamment permis d'étudier le développement des corrélations spatiales entre précipités, et l'écart de leur morphologie à la forme d'équilibre d'un précipité isolé [91]. Ces méthodes nécessitent cependant de localiser explicitement les interfaces entre précipités et matrice à chaque pas de temps. Ce traitement des interfaces entraîne des difficultés numériques dans la description d'évènements comme la coagulation ou la dissolution de précipités. En l'absence de méthodes supplémentaires pour gérer ces évènements, l'approche à interfaces étroites est limitée à la simulation de microstructures contenant un taux de phase γ' relativement faible.

La méthode des champs de phase est l'approche de référence pour modéliser le couplage entre champs élastiques et évolution microstructurale à l'échelle mésoscopique. Dans cette approche, l'évolution de la microstructure est simulée à l'aide de champs continus. Les interfaces sont repérées par les gradients de ces champs, sans que la connaissance explicite de leur position ne soit requise. Bien que les interfaces aient une épaisseur bien supérieure à l'épaisseur physique, cette description est particulièrement adaptée à la simulation des évolutions morphologiques ou topologiques qui surviennent généralement dans les microstructures. De plus, la plupart des modèles de champ de phase entrent dans un cadre thermodynamique cohérent qui autorise les couplages multiphysiques. En champ de phase, le couplage entre une transformation de phase diffusive à l'état solide et l'élasticité est possible dans le cadre de la théorie de l'élasticité de Khachaturyan [48]. Cette approche permet d'exprimer simplement la force motrice élastique pour l'évolution microstructurale en considérant la variation d'énergie élastique associée à une variation de la microstructure [51].

Dans la littérature, les modèles de champ de phase couplant élasticité et microstructure ont permis de mieux comprendre les évolutions de forme et d'arrangement des précipités γ', ainsi que la cinétique de formation de la microstructure γ/γ'. Par exemple, les travaux de Wang *et al* [100] ont montré l'importance de décrire les variants de translation de la phase γ'. Vaithyanathan et Chen [94] ont étudié les effets du taux de phase γ' sur la cinétique d'évolution et sur la taille des précipités. L'influence de l'inhomogénéité élastique, c'est à dire de la différence de constantes élastiques entre les phases, a également été étudiée en champ de phase [15, 16, 45]. Zhu *et al* [110] ont montré que l'inhomogénéité du module de cisaillement ralentit la cinétique d'évolution d'une microstructure élastiquement isotrope, tandis qu'en élasticité anisotrope, M. Cottura *et al* [28] ont montré que l'inhomogénéité du module C' affecte la forme des précipités γ'. Dans les études que nous venons de citer, les microstructures simulées possèdent les mêmes défauts d'alignement des précipités que ceux identifiés sur les microstructures expérimentales des figures 0.2 et 0.3.

Ainsi, des branches et des macro-dislocations dans les alignements de précipités sont observées dans les simulations champ de phase de M. Cottura *et al* [28], Hu et Chen [45], et Zhu *et al* [110], tandis que des motifs en chevrons sont visibles dans les simulations de Vaithyanathan et Chen [94] et de Wang *et al* [100]. Ces observations justifient l'utilisation de la méthode des champs de phase pour l'étude de la dynamique des défauts d'alignement des précipités dans la microstructure γ/γ'.

Ce travail de thèse est une contribution à l'étude du couplage entre élasticité et microstructure dans les superalliages monocristallins. Cette étude a pour objectif de mieux comprendre l'influence de l'élasticité sur la dynamique des défauts d'alignement des précipités dans la microstructure γ/γ'. Ce mémoire de thèse se décompose en trois chapitres.

Dans le chapitre 1, nous introduisons la théorie et les méthodes numériques utilisées dans l'ensemble du manuscrit. Dans un premier temps, nous présentons un modèle de champ de phase classique pour simuler l'évolution d'une microstructure sous l'influence de l'élasticité, au cours d'un recuit isotherme. Le couplage de l'élasticité est décrit dans le cadre de l'approche de Khachaturyan. Dans le cadre des transformations de phase diffusives, l'équilibre mécanique statique de la microstructure est vérifié à chaque instant, et sa résolution est détaillée dans différents cas. Nous donnons également des éléments de résolution de l'équation cinétique, pour l'évolution du champ de concentration décrivant la microstructure. Dans un second temps, et après un bref état de l'art des méthodes d'analyse de la forme et de l'arrangement des précipités γ', nous proposons une méthode originale d'analyse de la microstructure γ/γ', issue de la phénoménologie des structures hors équilibre. Nous montrons que l'intérêt de cette méthode réside dans la décomposition des modulations de la microstructure et dans la détection automatique de la position et du type des défauts de périodicité.

Dans le chapitre 2, nous nous intéressons à la formation et la dynamique des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ'. Nous conduisons des analyses de stabilité statiques de l'arrangement cubique simple d'inclusions cohérentes. L'influence de la forme et celle du taux de phase γ' sur la stabilité de l'arrangement sont considérées. Les analyses statiques sont enrichies de simulations champ de phase de l'évolution de microstructures périodiques soumises à de légères perturbations initiales de la position des inclusions. Le rôle de l'inhomogénéité en C' sur la stabilité de l'arrangement est également étudié dans une analyse statique, puis dans des simulations de champ de phase. La fin de ce chapitre porte sur la dynamique des défauts d'alignement dans la microstructure γ/γ', au cours d'un recuit isotherme et pendant la mise en radeaux de la microstructure. Nous discutons finalement des perspectives de ce chapitre, pour lesquelles une étude statistique de la dynamique des défauts d'alignement serait nécessaire.

Dans le chapitre 3, nous réalisons une modélisation champ de phase de microstructures à grande échelle, selon la méthode S-PFM (*Sharp Phase Field Method*) récemment proposée par A. Finel *et al* dans [37]. Nous présentons dans un premier temps la méthode de champ de phase S-PFM, intrinsèquement discrète, dans laquelle les interfaces sont résolues essentiellement avec un pas de grille, sans friction de réseau, et avec une invariance par rotation précise. Nous décrivons le couplage d'un champ conservé dans le cadre de l'approche de Kim-Kim-Suzuki [53], puis nous présentons un modèle multichamps adapté à la description de la microstructure γ/γ'. Dans un second temps, nous réalisons une étude préliminaire visant à valider les paramètres choisis pour assurer l'invariance par rotation de l'interface étroite dans le modèle. Enfin, nous modélisons des microstructures à grande échelle avec et sans élasticité, puis en élasticité homogène et inhomogène en C'. Nous réalisons des analyses statistiques des microstructures issues de ces simulations, puis nous comparons l'évolution des densités de défauts d'alignement dans les microstructures homogène et inhomogène en C'.

1 Théorie et méthodes numériques

Nous présentons dans ce chapitre la théorie et les méthodes utilisées dans ces travaux de thèse. Dans un premier temps, nous présentons un modèle de champ de phase classique pour simuler l'évolution d'une microstructure sous l'influence de l'élasticité, au cours d'un recuit isotherme. Dans le cadre des transformations de phase diffusives à l'état solide, l'équilibre mécanique statique de la microstructure est vérifié à chaque instant, et nous décrivons sa résolution dans différents cas. Quelques éléments de résolution de l'équation cinétique du champ conservé sont également donnés. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à l'analyse de la forme et de l'arrangement des précipités γ'. Après un bref état de l'art des méthodes d'analyse de la forme des précipités cuboïdaux, nous présentons différents outils pour déterminer les corrélations spatiales de leur barycentre. Enfin, nous proposons une méthode originale, issue de la phénoménologie des structures hors-équilibre, d'analyse de la microstructure γ/γ' par le calcul des phases géométriques associées à l'arrangement des précipités. L'intérêt de cette nouvelle méthode réside dans la décomposition des modulations de la microstructure, et dans la détection automatique de la position et du type de défaut d'alignement.

Sommaire

1.1 Champ de phase : microstructure et élasticité . . . 8
1.1.1 Description continue de la microstructure . . . 8
1.1.1.1 Energie libre chimique . . . 9
1.1.1.2 Energie élastique . . . 10
1.1.2 Equilibre mécanique statique . . . 12
1.1.2.1 Solution analytique en élasticité homogène . . . 13
1.1.2.2 Résolution numérique en élasticité inhomogène . . . 15
1.1.2.3 Approximation du milieu élastique effectif . . . 17
1.1.3 Résolution de l'équation cinétique . . . 19
1.2 Méthodes d'analyse de la microstructure γ/γ' . . . 20
1.2.1 Morphologie des précipités . . . 20
1.2.2 Corrélations spatiales des barycentres . . . 22
1.2.3 Phénoménologie des structures hors-équilibre . . . 24
1.2.3.1 Structures modulées et diffusion de la phase . . . 24
1.2.3.2 Phases et modulations de la microstructure γ/γ' . . . 25
1.2.3.3 Squelettes des modulations et défauts de périodicité . . . 29
1.3 Conclusions . . . 30

1.1 Champ de phase : microstructure et élasticité

1.1.1 Description continue de la microstructure

Le champ de phase est une approche mésoscopique permettant de décrire la formation et l'évolution de microstructures complexes à l'aide de champs continus. Les interfaces y sont décrites par des régions localisant les gradients de ces champs. Dans la plupart des cas, les modèles de champ de phase entrent dans un cadre thermodynamique cohérent qui permet les couplages multiphysiques. L'élément central du champ de phase est une fonctionnelle d'énergie libre F construite sur les champs de paramètres d'ordre. Cette fonctionnelle peut être construite par changement d'échelle depuis l'échelle atomique [17] ou postulée sur la base d'arguments de symétrie selon la théorie de Landau. C'est cette deuxième voie que nous avons adoptée.

L'évolution de la microstructure est décrite par celle des paramètres d'ordre, de telle sorte que la dissipation de l'énergie libre F soit positive. Dans le cas d'un champ ϕ non conservé, l'hypothèse la plus simple pour assurer cette dissipation est une relation linéaire entre l'évolution de ϕ et la force thermodynamique locale. On obtient alors l'équation d'Allen-Cahn [6] :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t}(\boldsymbol{r},t) = -L\frac{\delta F}{\delta \phi(\boldsymbol{r},t)} \tag{1.1}$$

avec L un coefficient cinétique strictement positif en $\mathrm{m}^3.\mathrm{J}^{-1}.\mathrm{s}^{-1}$. Dans le cas d'un champ de concentration c, on postule que le flux d'atomes de l'espèce considérée est proportionnel au gradient de potentiel de diffusion. Cette hypothèse combinée à la conservation des espèces chimiques conduit à l'équation de Cahn-Hilliard [20] :

$$\frac{\partial c}{\partial t}(\boldsymbol{r},t) = \nabla.\left[M\nabla\frac{\delta F}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right] = M\nabla^2\frac{\delta F}{\delta c(\boldsymbol{r},t)} \tag{1.2}$$

avec M la mobilité en $\mathrm{m}^5.\mathrm{J}^{-1}.\mathrm{s}^{-1}$, supposée constante par souci de simplicité. Etant donné que nous nous intéressons à l'influence de l'élasticité sur l'évolution des microstructures, la fonctionnelle F est décomposée de manière classique en une somme d'énergies libres chimique F_{ch} et élastique E_{el} :

$$F = F_{ch} + E_{el} \tag{1.3}$$

Pour décrire la microstructure γ/γ' dans les superalliages, les paramètres d'ordre comptent au moins un champ de concentration c, et au plus quatre champs ϕ_i décrivant la mise en ordre chimique dans les précipités γ'. Dans la mesure où notre objectif est la compréhension de phénomènes génériques plutôt que la prédiction quantitative des microstructures dans un alliage spécifique, nous avons considéré un alliage binaire effectif Ni-Al, où le champ c correspond à la teneur en aluminium.

Par souci de simplicité dans la suite de ce chapitre, nous considérons une microstructure décrite uniquement par c. Les énergies libres chimique et élastique sont construites sur ce champ, et la force thermodynamique pour son évolution (1.2) est :

$$\frac{\delta F}{\delta c(\boldsymbol{r},t)} = \frac{\delta F_{ch}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)} + \frac{\delta E_{el}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)} \tag{1.4}$$

La suite de cette section est consacrée à la définition des énergies libre chimique et élastique. Nous présenterons également la résolution de l'équilibre mécanique statique de la microstructure, et nous donnerons des éléments de résolution de l'équation cinétique.

1.1.1.1 Energie libre chimique

Considérons une microstructure biphasée contenue dans un volume V et décrite par c. La densité volumique d'énergie libre chimique f_{ch} peut être développée en fonction des dérivées spatiales de c autour d'une énergie libre $f(c)$ associée à un état homogène. En utilisant les notations indicielles et la convention de sommation d'Einstein, le développement jusqu'au deuxième ordre s'écrit [20] :

$$f_{ch}(c, \nabla c, \nabla^2 c, ...) = f(c) + \left[\frac{\delta f_{ch}}{\delta(\partial_{r_i} c)}\right]_0 \frac{\partial c}{\partial r_i} + \left[\frac{\delta f_{ch}}{\delta(\partial^2_{r_i r_j} c)}\right]_0 \frac{\partial^2 c}{\partial r_i \partial r_j} + \frac{1}{2}\left[\frac{\delta^2 f_{ch}}{\delta(\partial_{r_i} c)\delta(\partial_{r_j} c)}\right]_0 \frac{\partial c}{\partial r_i}\frac{\partial c}{\partial r_j} + ... \quad (1.5)$$

où $\partial_{r_i} c$ désigne $\partial c/\partial r_i$ et où 0 est relatif à l'état homogène. En supposant que le milieu est isotrope, les coefficients du développement de Taylor ne dépendent plus de l'espace, et l'expression précédente devient simplement :

$$f_{ch}(c, \nabla c, \nabla^2 c) = f(c) + \lambda_1 \nabla^2 c + \lambda_2 |\nabla c|^2 \quad (1.6)$$

En intégrant cette densité sur le volume V et en utilisant le théorème de la divergence, on obtient à la forme usuelle de l'énergie libre chimique :

$$F_{ch} = \int_V \left(f(c) + \frac{\lambda}{2} |\nabla c|^2 \right) dV \quad (1.7)$$

où λ est le coefficient de gradient d'énergie en J.m^{-1}. La densité d'énergie libre homogène est une fonction de c dont les minima sont associés aux états d'équilibre (stable et/ou métastable) du système [55]. Elle présente deux minima aux concentrations d'équilibre c^0_γ et $c^0_{\gamma'}$, dans le cas d'une microstructure où les phases γ et γ' coexistent. Nous considérons une densité d'énergie libre homogène de la forme :

$$\frac{f(c)}{A} = -2(c - c_\mathrm{m})^2 + \frac{4(c - c_\mathrm{m})^4}{\delta c^2} \quad (1.8)$$

où $c_\mathrm{m} = (c^0_\gamma + c^0_{\gamma'})/2$, $\delta c = c^0_{\gamma'} - c^0_\gamma$ et A est l'échelle d'énergie volumique chimique en J.m^{-3}. Les concentrations d'équilibre incohérent $c^0_\gamma = 0,15$ et $c^0_{\gamma'} = 0,231$ sont identifiées sur le diagramme de phase Ni-Al (figure 1.1 à gauche) à T $= 950°C$ [26]. La densité d'énergie libre homogène (1.8) correspondante est présentée à droite de la figure 1.1.

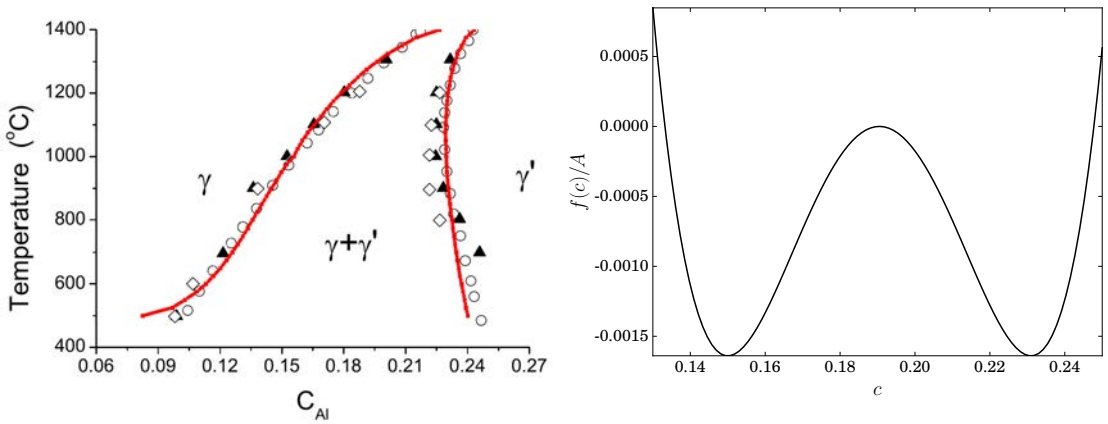


FIGURE 1.1: Gauche : diagramme de phase Ni-Al calculé dans [99] par Cluster Variation Method (CVM) avec un potentiel de paire de Lennard-Jones, et comparaison avec l'expérience [7]. Droite : densité d'énergie libre homogène (1.8) avec les concentrations d'équilibre $c^0_\gamma = 0,15$ et $c^0_{\gamma'} = 0,231$ identifiées sur le diagramme de phase à T $= 950°C$ [26].

L'échelle d'énergie volumique A et le coefficient de gradient d'énergie λ se déduisent des valeurs de l'énergie σ et de l'épaisseur $2w$ de l'interface, dont les choix sont respectivement motivés par des considérations physique et numérique.

L'énergie d'interface est généralement déterminée indirectement par la mesure expérimentale de lois de croissance, ou plus directement *via* des simulations à l'échelle atomique. Quelle que soit la méthode employée, la détermination de σ reste difficile.

L'épaisseur de l'interface $2w$ se compte généralement en nombre de pas de discrétisation d, et est choisie de sorte à assurer que le réseau discret n'influence pas le mouvement de l'interface. La discrétisation du formalisme continu génère une barrière d'énergie numérique qui s'oppose au mouvement de l'interface lorsqu'elle se propage d'un voxel à un autre [19]. La friction de réseau qui en résulte est alors définie comme la force motrice qu'il est nécessaire d'appliquer au système, en inclinant le double-puits, pour vaincre cette barrière d'énergie et propager l'interface. On note facilement que la hauteur de la barrière d'énergie décroît exponentiellement avec l'épaisseur de l'interface [30]. Lorsque le rapport entre l'épaisseur d'interface et le pas de discrétisation w/d descend en dessous d'une valeur critique, cette barrière d'énergie produit des artefacts numériques indésirables : elle est susceptible de défavoriser le mouvement des interfaces le long des directions les moins denses de la grille de discrétisation, voire de bloquer totalement ce mouvement. Par conséquent, il est nécessaire de choisir une épaisseur d'interface suffisante pour que la hauteur de la barrière d'énergie numérique soit négligeable en comparaison aux forces motrices agissant sur le système. Le pas de discrétisation d doit ainsi être petit devant l'épaisseur de l'interface, et l'absence de friction de réseau est généralement obtenue pour des interfaces d'épaisseur $2w = 6d$.

Par ailleurs, la taille des précipités ou des couloirs de matrice, doit être au moins deux fois supérieure à l'épaisseur d'interface pour qu'ils soient correctement définis. Par conséquent, la contrainte sur l'épaisseur de l'interface limite considérablement la taille accessible des microstructures.

1.1.1.2 Energie élastique

Nous définissons maintenant l'énergie élastique de la microstructure dans le cadre des petites déformations. Cette hypothèse est justifiée dans notre étude en raison de la faible déformation libre entre les phases γ et γ'.

Considérons que la microstructure biphasée décrite précédemment est cohérente, et que les déformations élastiques locales par rapport à un état de référence y sont repérées par le tenseur $\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})$. A cette déformation élastique est associé un coût énergétique, qui est décrit localement par une densité volumique d'énergie élastique $f_{el}(\varepsilon^{el}_{ij})$. Cette densité peut être développée jusqu'au deuxième ordre autour d'une énergie $\left[f_{el}(\boldsymbol{r})\right]_0$ dans l'état de référence :

$$f_{el}(\varepsilon^{el}_{ij}) = \left[f_{el}\right]_0 + \left[\frac{\delta f_{el}}{\delta \varepsilon^{el}_{ij}}\right]_0 \varepsilon^{el}_{ij} + \frac{1}{2}\left[\frac{\delta^2 f_{el}}{\delta \varepsilon^{el}_{ij}\delta \varepsilon^{el}_{kl}}\right]_0 \varepsilon^{el}_{ij}\varepsilon^{el}_{kl} + ... \tag{1.9}$$

où les notations indicielles et la convention de sommation d'Einstein sont utilisées, et où 0 est relatif à l'état de référence. Les coefficients du développement correspondent à la contrainte locale dans l'état de référence et aux modules élastiques :

$$f_{el}(\varepsilon^{el}_{ij}) = \left[f_{el}\right]_0 + \left[\sigma_{ij}\right]_0 \varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r}) + \frac{1}{2}\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r}) \tag{1.10}$$

En faisant l'hypothèse que le cristal de référence est non contraint et que sa densité d'énergie élastique est nulle, la densité $f_{el}\big(\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\big)$ est exprimée de manière usuelle comme une forme quadratique des composantes de la déformation élastique :

$$f_{el}(\varepsilon^{el}_{ij}) = \frac{1}{2}\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r}) \tag{1.11}$$

dont l'intégrale sur le volume est l'énergie élastique E_{el} de la microstructure cohérente. La déformation élastique est définie par la différence entre la déformation totale $\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$ et la déformation libre $\varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r})$ associée à la transformation de phase :

$$\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r}) = \varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r}) \tag{1.12}$$

Dans la microstructure des superalliages, la déformation libre $\varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r})$ entre les phases γ et γ' est isotrope. Leur désaccord paramétrique provient de leur différence de composition, et il est alors usuel de définir $\varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r})$ par la loi de Vegard :

$$\varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r}) = \varepsilon^0_{ij}\big[c(\boldsymbol{r}) - \bar{c}\big] = \varepsilon^0_{ij}\Delta c(\boldsymbol{r}) \tag{1.13}$$

avec $\bar{c}$ la concentration moyenne dans l'alliage. L'isotropie de la déformation libre implique que le tenseur ε^0_{ij} est diagonal $\varepsilon^0_{ij} = \varepsilon_0\delta_{ij}$. La composante diagonale est définie par le quotient $\varepsilon_0 = \delta a/a\delta c$ du désaccord paramétrique $\delta a/a$ entre les phases sur leur différence de concentration d'équilibre. La déformation totale $\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$ est décomposée en une déformation homogène $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et une déformation hétérogène $\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$, de sorte que :

$$\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r}) = \overline{\varepsilon}_{ij} + \delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})\ ;\ \text{avec}\ \begin{cases}\langle\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})\rangle\ = \overline{\varepsilon}_{ij}\\ \langle\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})\rangle = 0\end{cases} \tag{1.14}$$

où $\langle X\rangle$ est la moyenne de X sur V. La déformation hétérogène est liée aux déplacements par la relation de compatibilité usuelle :

$$\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_i}{\partial r_j} + \frac{\partial u_j}{\partial r_i}\right) \tag{1.15}$$

Par définition, les dimensions macroscopiques du volume V sont affectées par la déformation homogène $\overline{\varepsilon}_{ij}$, et indépendantes de la déformation hétérogène locale $\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$. Cela implique que la moyenne des déplacements $u_i(\boldsymbol{r})$ liés à la déformation hétérogène $\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$ est nulle dans le volume $\langle u_i(\boldsymbol{r})\rangle = 0$. Dans le cadre de l'élasticité linéaire, la loi de Hooke relie linéairement la contrainte $\sigma_{ij}(\boldsymbol{r})$ et la déformation élastique $\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r})$ par le tenseur d'élasticité $\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})$:

$$\sigma_{ij}(\boldsymbol{r}) = \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\,\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r}) \tag{1.16}$$

La microstructure γ/γ' est élastiquement inhomogène, c.-à-d. que les modules élastiques des deux phases sont différents $\lambda^{\gamma}_{ijkl} \neq \lambda^{\gamma'}_{ijkl}$. Le tenseur $\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})$ est alors défini comme la somme des modules $\overline{\lambda}_{ijkl}$ d'un milieu homogène de référence, et des modules inhomogènes λ'_{ijkl} dont les variations spatiales sont assimilées à celles de c. Un choix possible est :

$$\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r}) = \overline{\lambda}_{ijkl} + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\ ;\ \text{avec}\ \begin{cases}\overline{\lambda}_{ijkl} = (1-f_v)\lambda^{\gamma}_{ijkl} + f_v\lambda^{\gamma'}_{ijkl}\\ \lambda'_{ijkl} = (\lambda^{\gamma'}_{ijkl} - \lambda^{\gamma}_{ijkl})/\delta c\end{cases} \tag{1.17}$$

avec f_v la fraction volumique de phase γ', définie pour l'équilibre incohérent par $f_v = (\bar{c} - c^0_\gamma)/\delta c$.

Lorsqu'un chargement extérieur est appliqué à la microstructure, on distingue le cas d'une déformation ε^a_{ij} imposée de celui d'une contrainte σ^a_{ij} imposée. En déformation imposée, l'énergie élastique correspond à l'intégrale sur le volume de la densité (1.11) avec la déformation homogène $\overline{\varepsilon}_{ij} = \varepsilon^a_{ij}$. Dans le cas d'une contrainte σ^a_{ij} imposée, le terme $V\sigma^a_{ij}\overline{\varepsilon}_{ij}$ est retranché à l'intégrale de la densité pour considérer l'énergie potentielle de la source imposant la contrainte.

Ainsi, l'énergie élastique d'une microstructure biphasée cohérente, en élasticité inhomogène et en contrainte imposée est définie par :

$$E_{el} = \frac{1}{2}\int_V \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{ij} + \delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{ij}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\big[\overline{\varepsilon}_{kl} + \delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]dV - V\sigma^a_{ij}\overline{\varepsilon}_{ij} \tag{1.18}$$

1.1.2 Equilibre mécanique statique

Dans le cadre d'une transformation de phase diffusive, le temps caractéristique d'établissement de l'équilibre mécanique est petit devant le temps caractéristique de la diffusion, de telle sorte que l'équilibre mécanique statique de la microstructure est vérifié à chaque instant. L'énergie élastique d'une microstructure décrite par $c(\boldsymbol{r})$ et soumise à une contrainte σ^a_{ij} dépend :

- de la déformation homogène $\overline{\varepsilon}_{ij}$;
- des déplacements $u_i(\boldsymbol{r})$ *via* les déformations hétérogènes $\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})$.

Considérons la variation d'énergie élastique δE_{el} induite par les variations $\delta\overline{\varepsilon}_{ij}$ et $\delta u_i(\boldsymbol{r})$. Etant données les symétries majeures et mineures des modules élastiques $\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})$, et en intégrant par parties les termes en facteur de $\delta u_i(\boldsymbol{r})$, on a :

$$\delta E_{el} = \int_V \Big\{\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\Big\}\delta\overline{\varepsilon}_{ij} - \Big\{\frac{\partial}{\partial r_j}\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\Big\}\delta u_i(\boldsymbol{r})dV - V\sigma^a_{ij}\delta\overline{\varepsilon}_{ij} \tag{1.19}$$

En regroupant les termes en $\delta\overline{\varepsilon}_{ij}$ et ceux en $\delta u_i(\boldsymbol{r})$, δE_{el} devient :

$$\delta E_{el} = \left\{\int_V \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} + \delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]dV - V\sigma^a_{ij}\right\}\delta\overline{\varepsilon}_{ij} - \int_V \left\{\frac{\partial\sigma_{ij}}{\partial r_j}(\boldsymbol{r})\right\}\delta u_i(\boldsymbol{r})dV \tag{1.20}$$

On peut déduire les dérivées variationnelles de l'énergie élastique par rapport à $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et à $u_i(\boldsymbol{r})$:

$$\frac{\delta E_{el}}{\delta\overline{\varepsilon}_{ij}} = \int_V \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} + \delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]dV - V\sigma^a_{ij} \tag{1.21a}$$

$$\frac{\delta E_{el}}{\delta u_i(\boldsymbol{r})} = -\frac{\partial\sigma_{ij}}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \tag{1.21b}$$

L'équilibre mécanique est atteint lorsque ces variations sont nulles, soit :

$$\int_V \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} + \delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\mathrm{d}V - V\sigma^a_{ij} = 0 \tag{1.22a}$$

$$\frac{\partial\sigma_{ij}}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) = 0 \tag{1.22b}$$

En introduisant le tenseur des souplesses $\overline{S}_{ijkl}$ du milieu de référence, défini par $\overline{S}_{ijkl}\,\overline{\lambda}_{klmn} = \delta_{im}\,\delta_{jn}$, avec δ le symbole de Kronecker, on peut réécrire le système d'équations traduisant l'équilibre élastique de la façon suivante :

$$\overline{\varepsilon}_{ij} = \overline{S}_{ijkl}\Big[\sigma^a_{kl} + \lambda'_{klmn}\big(\varepsilon^0_{mn} < \Delta c^2(\boldsymbol{r}) > - < \delta\varepsilon_{mn}(\boldsymbol{r})\Delta c(\boldsymbol{r}) >\big)\Big] \tag{1.23a}$$

$$\left[\overline{\lambda}_{ijkl}\frac{\partial^2}{\partial r_j\partial r_l} + \lambda'_{ijkl}\frac{\partial}{\partial r_j}\left(\Delta c(\boldsymbol{r})\frac{\partial}{\partial r_l}\right)\right]u_k(\boldsymbol{r}) = (\overline{\lambda}_{ijkl}\varepsilon^0_{kl} - \lambda'_{ijkl}\overline{\varepsilon}_{kl})\frac{\partial\Delta c}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) + \lambda'_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}\frac{\partial\Delta c^2}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \tag{1.23b}$$

Résoudre l'équilibre mécanique de la microstructure revient à déterminer les composantes de $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et de $u_i(\boldsymbol{r})$ qui sont solutions du système d'équations (1.23). La résolution est simplifiée en exprimant (1.23) dans l'espace réciproque à l'aide des transformations de Fourier :

$$\mathcal{F}\{f(\boldsymbol{r})\} = f(\boldsymbol{k}) = \frac{1}{V}\int_V f(\boldsymbol{r})e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}}dV \tag{1.24a}$$

$$\mathcal{F}^{-1}\{f(\boldsymbol{k})\} = f(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{k}} f(\boldsymbol{k})e^{\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} \tag{1.24b}$$

où $\boldsymbol{k}$ est un vecteur de l'espace réciproque et où pour simplifier les notations, on différencie une transformée de Fourier de sa fonction par son argument, respectivement $\boldsymbol{k}$ et $\boldsymbol{r}$. Nous décrivons maintenant la résolution de l'équilibre mécanique analytique en élasticité homogène, numérique en élasticité inhomogène, ainsi que l'approximation du milieu élastique effectif [51].

1.1.2.1 Solution analytique en élasticité homogène

Dans l'approximation de l'élasticité homogène, les constantes élastiques de la microstructures ne dépendent pas de l'espace $\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r}) = \lambda_{ijkl}$. On a donc $\overline{\lambda}_{ijkl} = \lambda_{ijkl}$ et $\lambda'_{ijkl} = 0$, et les équations (1.23a) et (1.23b) sont découplées. Le champ de concentration est alors indépendant de la contrainte appliquée. Puisqu'un chargement extérieur ne contribue pas à l'évolution d'une microstructure élastiquement homogène, nous considérons simplement $\sigma^a_{ij} = 0$. La condition d'équilibre sur la déformation homogène (1.23a) est $\overline{\varepsilon}_{ij} = 0$ et celle (1.23b) sur les déplacements devient :

$$\lambda_{ijkl}\frac{\partial^2 u_k}{\partial r_j \partial r_l}(\boldsymbol{r}) = \sigma^0_{ij}\frac{\partial \Delta c}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \tag{1.25}$$

avec $\sigma^0_{ij} = \lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}$, la contrainte issue de la déformation libre ε^0_{ij}. Cette équation est écrite dans l'espace réciproque, soit :

$$\lambda_{ijkl}k_j k_l u_k(\boldsymbol{k}) = -\mathrm{i}\sigma^0_{ij}k_j\Delta c(\boldsymbol{k}) \tag{1.26}$$

où $u_k(\boldsymbol{k})$ et $\Delta c(\boldsymbol{k})$ sont les transformées de Fourier respectives de $u_k(\boldsymbol{r})$ et $\Delta c(\boldsymbol{r})$. Le terme en préfacteur est l'inverse du tenseur de Green :

$$G^{-1}_{ik}(\boldsymbol{k}) = \lambda_{ijkl}k_j k_l \tag{1.27}$$

qui est inversible pour $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$. Ainsi pour tout $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$, en notant que $G_{mi}(\boldsymbol{k})G^{-1}_{ij}(\boldsymbol{k}) = \delta_{mj}$ et en remarquant de plus que $\Delta c(\boldsymbol{k}) = c(\boldsymbol{k})$ pour tout $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$, les déplacement sont exprimées dans l'espace réciproque par :

$$u_i(\boldsymbol{k}) = -\mathrm{i}G_{ij}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{jk}k_k c(\boldsymbol{k}) \qquad \boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0} \tag{1.28}$$

Les déformations hétérogènes se déduisent des déplacements, soit :

$$\begin{aligned}\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{k}) = \frac{\mathrm{i}}{2}\big[k_j u_i(\boldsymbol{k}) + k_i u_j(\boldsymbol{k})\big] &= \frac{1}{2}\big[k_j G_{ik}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{kl}k_l + k_i G_{jk}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{kl}k_l\big]c(\boldsymbol{k}) \\ &= \frac{1}{2}\big[n_j\Omega_{ik}(\boldsymbol{n})\sigma^0_{kl}n_l + n_i\Omega_{jk}(\boldsymbol{n})\sigma^0_{kl}n_l\big]c(\boldsymbol{k})\end{aligned} \tag{1.29}$$

où $\Omega_{ij}(\boldsymbol{k}) = k^2 G_{ij}(\boldsymbol{n})$ est le tenseur de Green normalisé, avec $\boldsymbol{n} = \boldsymbol{k}/k$ un vecteur unitaire du réseau réciproque.

En considérant $\bar{\varepsilon}_{ij} = 0$, l'énergie élastique de la microstructure s'écrit :

$$E_{el} = \frac{1}{2}\int_V \lambda_{ijkl}\big[\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{ij}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\big[\delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]dV \tag{1.30}$$

ou encore en la reformulant en fonction des déplacements et en considérant les symétries de λ_{ijkl} :

$$E_{el} = \frac{1}{2}\lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{ij}\varepsilon^0_{kl}\int_V \Delta c^2(\boldsymbol{r})dV + \frac{1}{2}\lambda_{ijkl}\int_V \frac{\partial u_i}{\partial r_j}(\boldsymbol{r})\frac{\partial u_k}{\partial r_l}(\boldsymbol{r})dV - \lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}\int_V \frac{\partial u_i}{\partial r_j}(\boldsymbol{r})\Delta c(\boldsymbol{r})dV \tag{1.31}$$

En utilisant la relation de Parseval, on peut exprimer l'énergie élastique de la façon suivante :

$$\begin{aligned} E_{el} \;=\; & \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}} \varepsilon^0_{ij}\lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}c(\boldsymbol{k})c^*(\boldsymbol{k}) \\ & + \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}} \lambda_{ijkl}\Big(+\mathrm{i}k_j\big[-\mathrm{i}G_{im}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{mn}k_n c(\boldsymbol{k})\big]\Big)\Big(-\mathrm{i}k_l\big[+\mathrm{i}G_{ko}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{op}k_p c^*(\boldsymbol{k})\big]\Big) \\ & - V\sum_{\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}} \sigma^0_{ij}\Big(+\mathrm{i}k_j\big[-\mathrm{i}G_{ik}(\boldsymbol{k})\sigma^0_{kl}k_l c(\boldsymbol{k})\big]\Big)c^*(\boldsymbol{k}) \end{aligned} \tag{1.32}$$

avec $c^*(\boldsymbol{k})$ le complexe conjugué de $c(\boldsymbol{k})$, et $G^*_{ij}(\boldsymbol{k}) = G_{ij}(\boldsymbol{k})$. Dans le second terme, on peut faire apparaître l'inverse du tenseur de Green $G^{-1}_{ik}(\boldsymbol{k}) = \lambda_{ijkl}k_jk_l$, qui se simplifie en utilisant $G_{mi}(\boldsymbol{k})G^{-1}_{ik}(\boldsymbol{k}) = \delta_{mk}$. L'énergie élastique de la microstructure biphasée, cohérente et homogène s'écrit finalement :

$$E_{el} = \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}} B(\boldsymbol{n})|c(\boldsymbol{k})|^2 \quad \text{avec } B(\boldsymbol{n}) = \varepsilon^0_{ij}\lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{kl} - n_i\sigma^0_{ij}\Omega_{jk}(\boldsymbol{n})\sigma^0_{kl}n_l \tag{1.33}$$

où $B(\boldsymbol{n})$ est appelé le noyau élastique de la microstructure. L'intérêt de cette formulation réside dans le découplage d'une part des propriétés élastiques et cristallographiques de la transformation de phase portées par $B(\boldsymbol{n})$, et d'autre part de la taille, de la forme et de l'arrangement spatial des précipités, portés par $c(\boldsymbol{k})$ [48].

Considérons un précipité de volume V_p isolé et décrit par la fonction de forme $\theta_0(\boldsymbol{r})$. L'équation (1.33) permet de déterminer simplement la morphologie du précipité qui minimise l'énergie élastique [48]. Sachant que $B(\boldsymbol{n}) > 0$ et $|\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 > 0$, l'énergie élastique du précipité vérifie :

$$E_{el} = \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}} B(\boldsymbol{n})|\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \geqslant \frac{1}{2}B_{\min}V_p \tag{1.34}$$

avec $B_{\min}$ le minimum de $B(\boldsymbol{n})$ atteint dans la direction $\boldsymbol{n}_0$: $B(\boldsymbol{n}_0) = B_{\min}$. En élasticité homogène, la forme qui minimise l'énergie élastique correspond à un précipité en plaquette perpendiculaire à la direction $\boldsymbol{n}_0$, de longueur infinie et d'épaisseur infinitésimale.

Dans le cas particulier de la microstructure γ/γ', la déformation libre est isotrope $\varepsilon^0_{ij} = \varepsilon_0\delta_{ij}$ et l'anisotropie cubique est portée par le module d'élasticité décrit par les trois constantes indépendantes C_{11}, C_{12} et C_{44} en notation de Voigt. Dans ce cas, $\Omega^{-1}_{ij}(\boldsymbol{n})$ s'écrit :

$$\begin{cases} \Omega^{-1}_{ii}(\boldsymbol{n}) = C_{11}n_i^2 + C_{44}(n_j^2 + n_k^2) = C_{44} + (C_{11} - C_{44})n_i^2 \\ \Omega^{-1}_{ij}(\boldsymbol{n}) = (C_{12} + C_{44})n_in_j\ , \quad i \neq j \end{cases} \tag{1.35}$$

L'expression du noyau élastique $B(\boldsymbol{n})$ est alors déterminée analytiquement pour tout $\boldsymbol{n} \neq \boldsymbol{0}$, soit :

$$B(\boldsymbol{n}) = 3K\varepsilon_0^2\left[1 - \frac{K}{3}\frac{1 + 2\xi[n_x^2n_y^2 + n_y^2n_z^2 + n_x^2n_z^2] + 3\xi^2n_x^2n_y^2n_z^2}{C_{11} + (C_{11} + C_{12})\xi[n_x^2n_y^2 + n_y^2n_z^2 + n_x^2n_z^2] + \xi^2(C_{11} + 2C_{12} + C_{44})n_x^2n_y^2n_z^2}\right] \tag{1.36}$$

avec $\boldsymbol{n} = (n_x, n_y, n_z)$, $K = C_{11} + 2C_{12}$ le module de compressibilité et $\xi = \big(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}\big)/C_{44}$ un paramètre quantifiant l'anisotropie élastique.

La représentation polaire du noyau élastique $B(\boldsymbol{n})$ à la figure 1.2 permet d'illustrer l'anisotropie de l'élasticité associée à la microstructure des superalliages monocristallins. Elle permet d'identifier les directions de l'espace réciproque qui minimisent l'énergie élastique. Les précipités γ' croissent et s'alignent selon des plans normaux à ces directions pour compenser les champs anisotropes qu'ils génèrent, ce qui conduit à la formation de la microstructure en cuboïdes présentée en introduction.

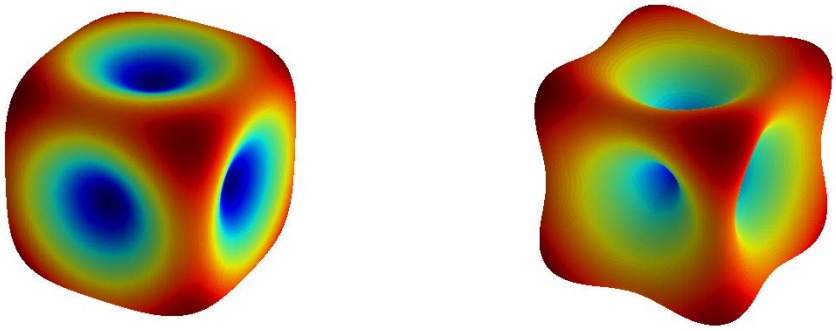


FIGURE 1.2: Représentations polaires du noyau élastique anisotrope normalisé $B(\boldsymbol{n})$ (gauche) ainsi que de sa partie anisotrope $B(\boldsymbol{n}) - B_{\min}$ (droite).

1.1.2.2 Résolution numérique en élasticité inhomogène

L'équilibre mécanique de la microstructure est résolu numériquement dans le cadre de l'élasticité inhomogène. Nous décrivons les équations de la résolution lorsqu'elle est réalisée avec un schéma utilisant les Transformées de Fourier Rapides (FFT) et une méthode de point fixe. Ce type de résolution a été proposé initialement dans [71] et est construit sur des grilles régulières. Les équations que nous présentons ont été décrites initialement dans [51] puis utilisées pour simuler l'évolution de microstructures en présence d'élasticité inhomogène dans [16, 28, 40, 45].

Les valeurs de $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et $u_i(\boldsymbol{r})$ sont approchées par itérations jusqu'à satisfaire un critère de convergence défini au préalable, où elles sont alors solutions des systèmes (1.23a) et (1.23b) dans la précision choisie. La vitesse de convergence dépend du milieu homogène de référence $\overline{\lambda}_{ijkl}$, du contraste de raideur, et de la proximité de l'initialisation de $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et $u_i(\boldsymbol{r})$ à la solution réelle dans le point fixe. Lorsque l'inhomogénéité de la microstructure est faible, il est usuel d'initialiser $\overline{\varepsilon}_{ij}$ et $u_i(\boldsymbol{r})$ aux solutions analytiques de l'élasticité homogène.

La première étape de la construction d'un schéma FFT consiste à identifier les opérateurs différentiels intervenant dans la résolution. Ces opérateurs, locaux dans l'espace réciproque, peuvent être définis à partir d'opérateurs de différences finies dans l'espace direct : ils dépendent alors du choix de la grille de discrétisation. Ainsi, nous notons $\mathcal{D}_i(\boldsymbol{k})$ l'opérateur différentiel discrétisé suivant la direction i, dans l'espace réciproque

Il est montré dans [103] que les schémas FFT classiques peuvent conduire les champs mécaniques à osciller en présence d'interfaces étroites. Ces artefacts numériques peuvent être supprimés par l'utilisation des grilles décalées [41, 80, 79, 95]. Cette méthode est employée dans [80], où deux grilles cubiques simples sont décalées d'un vecteur $d(1/2, 1/2, 1/2)$: la grille principale porte les tenseurs d'élasticité, de contraintes et de déformations, et la grille secondaire porte les déplacements. La stabilité d'un schéma est assurée pourvu qu'il n'existe pas de vecteur d'onde $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$, dans la 1ère zone de Brillouin associée à la grille, qui annule simultanément les opérateurs différentiels $\mathcal{D}_i(\boldsymbol{k})$.

D'une manière générale, quelle que soit la grille de discrétisation, l'équilibre mécanique dans l'espace réciproque s'écrit :

$$\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\sigma_{ij}(\boldsymbol{k}) = 0 \tag{1.37}$$

En détaillant l'expression de $\sigma_{ij}(\boldsymbol{r})$, (1.37) devient :

$$\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{F}\Big\{\big[\overline{\lambda}_{ijkl} + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\big[\overline{\varepsilon}_{kl} + \delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r}) - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big]\Big\} = 0 \tag{1.38}$$

Sachant de plus que :

$$\mathcal{F}\Big\{\delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{r})\Big\} = \delta\varepsilon_{ij}(\boldsymbol{k}) = -\frac{1}{2}\Big[\mathcal{D}^*_j(\boldsymbol{k})u_i(\boldsymbol{k}) + \mathcal{D}^*_i(\boldsymbol{k})u_j(\boldsymbol{k})\Big] \tag{1.39}$$

et compte tenu des symétries de $\overline{\lambda}_{ijkl}$, on en déduit la condition d'équilibre sur les déplacements :

$$\overline{\lambda}_{ijkl}\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{D}^*_l(\boldsymbol{k})u_k(\boldsymbol{k}) = \mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{F}\Big\{\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big] + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r})\Big\} \tag{1.40}$$

On reconnaît à gauche l'inverse de l'opérateur de Green associé au milieu homogène de référence et aux opérateurs différentiels :

$$\mathcal{G}^{-1}_{ik}(\boldsymbol{k}) = \overline{\lambda}_{ijkl}\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{D}^*_l(\boldsymbol{k}) \tag{1.41}$$

$\mathcal{G}^{-1}_{ik}(\boldsymbol{k})$ est inversible pour tout $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$, et conduit à :

$$u_k(\boldsymbol{k}) = \mathcal{G}_{ki}(\boldsymbol{k})\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{F}\Big\{\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big] + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r})\Big\} \tag{1.42}$$

version discrète dans l'espace réciproque de l'équilibre (1.23b) sur les déplacements.

$\delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r})$ dépendant des déplacements, on résout cette équation de manière itérative par une méthode de point fixe. Les valeurs initiales $\overline{\varepsilon}^{(0)}_{ij}$ et $u^{(0)}_k(\boldsymbol{k})$ sont choisies égales aux solutions analytiques de l'élasticité homogène. A l'itération $(n+1)$, $\overline{\varepsilon}^{(n+1)}_{ij}$ et $u^{(n+1)}_k(\boldsymbol{k})$ sont calculés à partir de $\delta\varepsilon^{(n)}_{ij}(\boldsymbol{r})$, en fonction des déplacements $u^{(n)}_i(\boldsymbol{r})$ à l'itération (n) :

$$\overline{\varepsilon}^{(n+1)}_{ij} = \overline{S}_{ijkl}\Big[\sigma^a_{kl} + \lambda'_{klmn}\big(\varepsilon^0_{mn}\langle\Delta c^2(\boldsymbol{r})\rangle - \langle\delta\varepsilon^{(n)}_{mn}(\boldsymbol{r})\Delta c(\boldsymbol{r})\rangle\big)\Big] \tag{1.43a}$$

$$u^{(n+1)}_k(\boldsymbol{k}) = \mathcal{G}_{ki}(\boldsymbol{k})\mathcal{D}_j(\boldsymbol{k})\mathcal{F}\Big\{\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}^{(n)}_{kl} - \varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\big] + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\delta\varepsilon^{(n)}_{kl}(\boldsymbol{r})\Big\} \tag{1.43b}$$

On itère jusqu'à satisfaire un critère de convergence choisi au préalable [70].

1.1.2.3 Approximation du milieu élastique effectif

La résolution de l'équilibre mécanique en élasticité inhomogène est simplifiée dans l'approximation du milieu élastique effectif [51]. Cette approximation est valable pour de faibles différences de constantes élastiques entre les phases, et consiste à moyenner l'opérateur de Green à l'équation (1.23b). L'opérateur moyen ne dépend pas de l'inhomogénéité élastique λ'_{ijkl}, et est uniquement associé au milieu effectif $\overline{\lambda}_{ijkl}$. En déformation imposée, l'équilibre mécanique peut être résolu analytiquement comme dans l'hypothèse de l'élasticité homogène. En contrainte imposée, il faut considérer une hypothèse supplémentaire pour permettre une résolution analytique. En considérant dans (1.23a) :

$$\sigma^a_{ij} \gg \lambda'_{ijkl}\big(\varepsilon^0_{kl}\langle\Delta c^2(\boldsymbol{r})\rangle - \langle\delta\varepsilon_{kl}(\boldsymbol{r})\Delta c(\boldsymbol{r})\rangle\big) \tag{1.44}$$

on peut écrire [15, 16] :

$$\overline{\varepsilon}_{ij} \simeq \overline{S}_{ijkl}\sigma^a_{kl} \tag{1.45}$$

proches, et la condition d'équilibre sur $\overline{\varepsilon}_{ij}$ ne dépend plus de la déformation hétérogène. La condition sur les déplacements est réécrite en utilisant la valeur moyenne de l'opérateur de Green :

$$\overline{\lambda}_{ijkl}\frac{\partial^2 u_k}{\partial r_j \partial r_l}(\boldsymbol{r}) = (\overline{\lambda}_{ijkl}\varepsilon^0_{kl} - \lambda'_{ijkl}\overline{\varepsilon}_{kl})\frac{\partial \Delta c}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) + \lambda'_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}\frac{\partial \Delta c^2}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \tag{1.46}$$

Grâce au changement de variable $\varphi(\boldsymbol{r}) = (c(\boldsymbol{r}) - c_\gamma)/(c_{\gamma'} - c_\gamma)$ et dans la limite d'une interface étroite pour laquelle $\varphi^2(\boldsymbol{r}) = \varphi(\boldsymbol{r})$, Boussinot [15] montre que l'équation (1.46) devient :

$$\overline{\lambda}_{ijkl}\frac{\partial^2 u_k}{\partial r_j \partial r_l}(\boldsymbol{r}) = \Big[\overline{\lambda}_{ijkl}\varepsilon^0_{kl} - \lambda'_{ijkl}\overline{\varepsilon}_{kl} + \lambda'_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}\big(c_{\gamma'} + c_\gamma - 2\bar{c}\big)\Big]\frac{\partial \Delta c}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \tag{1.47}$$

La comparaison des équations (1.25) et (1.47) montre que l'approximation du milieu effectif ramène l'équilibre d'une microstructure inhomogène à celui d'une microstructure homogène équivalente. Dans l'équation (1.47), le terme entre crochets correspond à une contrainte σ^*_{ij} issue d'une déformation libre effective ε^*_{ij} définies respectivement par :

$$\sigma^*_{ij} = \overline{\lambda}_{ijkl}\varepsilon^0_{kl} - \lambda'_{ijkl}\overline{\varepsilon}_{kl} + \lambda'_{ijkl}\varepsilon^0_{kl}\big(c_{\gamma'} + c_\gamma - 2\bar{c}\big) \tag{1.48a}$$

$$\varepsilon^*_{ij} = \overline{S}_{ijkl}\sigma^*_{kl} = \varepsilon^0_{ij} - \overline{S}_{ijkl}\lambda'_{klmn}\big[\overline{\varepsilon}_{mn} - \big(c_{\gamma'} + c_\gamma - 2\bar{c}\big)\varepsilon^0_{mn}\big] \tag{1.48b}$$

Dans le cas d'une déformation libre isotrope $\varepsilon^0_{ij} = \varepsilon_0\delta_{ij}$ et d'une contrainte appliquée selon [001] ($\sigma^a_{zz} \neq 0$), la composante non nulle de σ^a_{ij} rend la déformation libre effective ε^*_{ij} tétragonale dans la direction de chargement. L'anisotropie de la déformation libre effective dépend des composantes non nulles de σ^a_{ij}, et s'ajoute à celle des modules élastiques.

En suivant le même raisonnement qu'en élasticité homogène, les déplacements solutions de l'équilibre mécanique dans l'approximation du milieu effectif sont :

$$\overline{\lambda}_{ijkl}\frac{\partial^2 u_k}{\partial r_j \partial r_l}(\boldsymbol{r}) = \sigma^*_{ij}\frac{\partial \Delta c}{\partial r_j}(\boldsymbol{r}) \quad \Rightarrow \quad u_i(\boldsymbol{k}) = -\mathrm{i}\overline{G}_{ij}(\boldsymbol{k})\sigma^*_{jk}k_k c(\boldsymbol{k}) \tag{1.49}$$

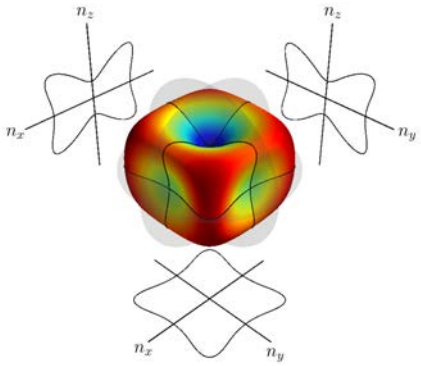
pour tout $\boldsymbol{k} \neq \boldsymbol{0}$. $\overline{G}_{ij}(\boldsymbol{k})$ est l'opérateur de Green du milieu élastique effectif, défini par $\overline{G}^{-1}_{ij}(\boldsymbol{k}) = \overline{\lambda}_{ikjl}k_k k_l$. L'énergie élastique de la microstructure homogène équivalente est :

$$E_{el} = -\frac{V}{2}\overline{\varepsilon}_{ij}\overline{\lambda}_{ijkl}\overline{\varepsilon}_{kl} + \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}} B^{\mathrm{eff}}(\boldsymbol{n})|\theta(\boldsymbol{k})|^2 \tag{1.50}$$

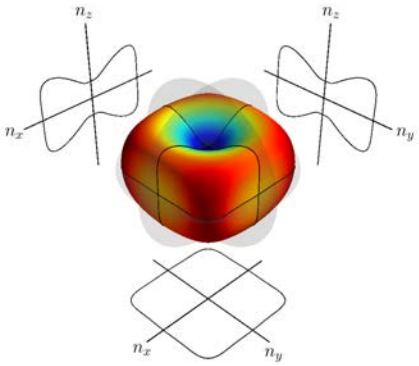
Le premier terme correspond à la contrainte appliquée $\overline{\varepsilon}_{ij} \simeq \overline{S}_{ijkl}\sigma^a_{kl}$ et ne dépend pas de la microstructure décrite par $c(\boldsymbol{k})$. Le noyau élastique effectif est défini par :

$$B^{\text{eff}}(\boldsymbol{n}) = \varepsilon^*_{ij}\overline{\lambda}_{ijkl}\varepsilon^*_{kl} - n_i\sigma^*_{ij}\overline{\Omega}_{jk}(\boldsymbol{n})\sigma^*_{kl}n_l \tag{1.51}$$

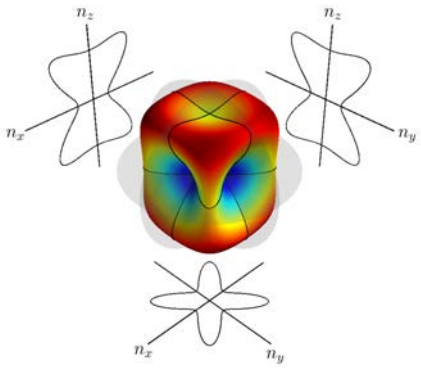
Considérons le cas de la microstructure γ/γ' élastiquement inhomogène dont la déformation libre est isotrope $\varepsilon^0_{ij} = \varepsilon_0\delta_{ij}$, avec $\varepsilon_0 = -0.0048$. Les constantes élastiques que nous considérons sont celles utilisées dans [16], et le milieu élastique effectif est défini de manière identique. Les noyaux élastiques effectifs $B^{\text{eff}}(\boldsymbol{n})$ de cette microstructure dans le cas de chargements en traction et en compression selon n_z ($\sigma^a_{zz} \neq 0$), sont représentés à la figure 1.3. Les coupes montrent que les noyaux prennent une symétrie tétragonale sous l'effet de la contrainte appliquée, et que leur axe tétragonal coïncide avec la direction de sollicitation.



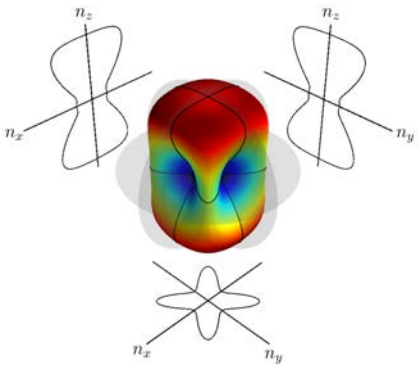
$\sigma^a_{zz} = 200\,\text{MPa}$



$\sigma^a_{zz} = 400\,\text{MPa}$



$\sigma^a_{zz} = -200\,\text{MPa}$



$\sigma^a_{zz} = -400\,\text{MPa}$

Figure 1.3: Noyaux élastiques effectifs $B^{\text{eff}}(\boldsymbol{n})$ de la microstructure γ/γ' pour des chargements en traction (haut) et en compression (bas) suivant l'axe vertical z.

1.1.3 Résolution de l'équation cinétique

De manière classique, l'équation de Cahn-Hilliard (1.2) est résolue dans l'espace réciproque et avec un schéma temporel semi-implicite. Dans l'espace réciproque, (1.2) devient :

$$\frac{\partial c}{\partial t}(\boldsymbol{k},t) = -Mk^2\left[\mathcal{F}\left\{\frac{\delta F_{ch}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right\} + \mathcal{F}\left\{\frac{\delta E_{el}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right\}\right] \tag{1.52}$$

Explicitons les forces motrices chimique $\delta F_{ch}/\delta c(\boldsymbol{r},t)$ et élastique $\delta E_{el}/\delta c(\boldsymbol{r},t)$.

Considérons la variation d'énergie libre chimique δF_{ch} induite par une variation δc de la microstructure. En utilisant le théorème de la divergence et en supposant que $\delta c = 0$ aux frontières de V, on obtient la force motrice chimique :

$$\delta F_{ch} = \int_V \Big\{f'(c) - \lambda\nabla^2 c\Big\}\delta c\, dV \quad \Rightarrow \quad \frac{\delta F_{ch}}{\delta c} = f'(c) - \lambda\nabla^2 c \tag{1.53}$$

dont l'expression dans l'espace réciproque est :

$$\mathcal{F}\left\{\frac{\delta F_{ch}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right\} = \mathcal{F}\Big\{f'\big(c(\boldsymbol{r},t)\big)\Big\} + \lambda\, k^2 c(\boldsymbol{k},t) \tag{1.54}$$

Considérons maintenant la microstructure élastiquement inhomogène et à l'équilibre mécanique. Nous nous intéressons à la variation d'énergie élastique δE_{el} induite par une variation δc de la microstructure. En remarquant que $\delta\Delta c = \delta c$, et compte tenu des symétries de $\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})$, la variation d'énergie élastique s'écrit :

$$\delta E_{el} = \int_V \left\{\frac{1}{2}\lambda'_{ijkl}\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r}) - \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{0}_{kl}\right\}\delta c\, dV \tag{1.55}$$

dont on déduit la force motrice élastique :

$$\frac{\delta E_{el}}{\delta c} = \frac{1}{2}\lambda'_{ijkl}\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{kl}(\boldsymbol{r}) - \lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{el}_{ij}(\boldsymbol{r})\varepsilon^{0}_{kl} \tag{1.56}$$

Dans l'approximation de l'élasticité homogène, la transformée de Fourier de la force motrice élastique a une expression simple en fonction de $c(\boldsymbol{k},t)$:

$$\mathcal{F}\left\{\frac{\delta E_{el}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right\} = \mathcal{F}\left\{\lambda_{ijkl}\varepsilon^0_{ij}\varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r},t) - \lambda_{ijkl}\frac{\partial u_i}{\partial r_j}(\boldsymbol{r},t)\varepsilon^0_{kl}\right\} = B(\boldsymbol{n})c(\boldsymbol{k},t) \tag{1.57}$$

En introduisant la discrétisation temporelle de pas de temps Δt, et en évaluant les termes linéaires en $c(\boldsymbol{k})$ à l'instant $t+\Delta t$, l'équation (1.52) devient :

$$\frac{c(\boldsymbol{k},t+\Delta t) - c(\boldsymbol{k},t)}{\Delta t} = -M\, k^2\left[\mathcal{F}\Big\{f'\big(c(\boldsymbol{r},t)\big)\Big\} + \lambda\, k^2 c(\boldsymbol{k},t+\Delta t) + B(\boldsymbol{n})c(\boldsymbol{k},t+\Delta t)\right] \tag{1.58}$$

et conduit à :

$$c(\boldsymbol{k},t+\Delta t) = \frac{c(\boldsymbol{k},t) - \Delta t\, M\, k^2\mathcal{F}\big\{f'\big(c(\boldsymbol{r},t)\big)\big\}}{1 + \Delta t\, M\, k^2\big(\lambda\, k^2 + B(\boldsymbol{n})\big)} \tag{1.59}$$

En élasticité inhomogène, la force motrice élastique ne s'exprime pas simplement en fonction du champ de concentration. Il est cependant possible d'améliorer la stabilité du schéma en évaluant à $t+\Delta t$ la contribution homogène du milieu de référence $\overline{\lambda}_{ijkl}$ et en gardant la contribution inhomogène à t.

En notant $B_0(\boldsymbol{n})$ le noyau anisotrope associé à $\overline{\lambda}_{ijkl}$, la force motrice élastique inhomogène est ainsi décomposée en :

$$\mathcal{F}\left\{\frac{\delta E_{el}}{\delta c(\boldsymbol{r},t)}\right\} - B_0(\boldsymbol{n})c(\boldsymbol{k},t) + B_0(\boldsymbol{n})c(\boldsymbol{k},t+\Delta t) \tag{1.60}$$

En introduisant cette force motrice dans l'équation de Cahn-Hilliard et en suivant la même démarche que pour l'élasticité homogène, il vient :

$$c(\boldsymbol{k},t+\Delta t) = \frac{c(\boldsymbol{k},t) - \Delta t\, M\, k^2\Big[\mathcal{F}\big\{f'(c(\boldsymbol{r},t))\big\} + \mathcal{F}\big\{\delta E_{el}/\delta c(\boldsymbol{r},t)\big\} - B_0(\boldsymbol{n})c(\boldsymbol{k},t)\Big]}{1+\Delta t\, M\, k^2\big(\lambda k^2 + B_0(\boldsymbol{n})\big)} \tag{1.61}$$

La résolution de l'équation cinétique est précédée de l'adimensionnement des grandeurs physiques et des équations du champ de phase [15, 26, 40]. L'échelle d'espace est fixée par le choix du pas de grille d tandis que l'échelle de temps est associée à la mobilité M qui dans notre cas est liée au coefficient de diffusion de l'aluminium dans le nickel. Il est usuel de considérer les échelles d'énergie d^3A et $d^3(C_{44}^{\gamma}\varepsilon_0^2)$ pour adimensionner les énergies libre chimique et élastique respectivement. Le choix d'adimensionner l'énergie totale par l'échelle d'énergie chimique définit le ratio χ des échelles d'énergie :

$$d^3A\widetilde{F} = d^3A\widetilde{F}_{ch} + d^3(C_{44}^{\gamma}\varepsilon_0^2)\widetilde{E}_{el} \quad\Rightarrow\quad \widetilde{F} = \widetilde{F}_{ch} + \chi\widetilde{E}_{el} \quad \text{avec} \quad \chi = \frac{C_{44}^{\gamma}\varepsilon_0^2}{A} \tag{1.62}$$

où $\widetilde{X}$ est la contrepartie sans dimension de X. Le ratio χ quantifie la contribution relative des forces motrices chimique et élastique. Ces contributions sont équilibrées dans le modèle en s'assurant que la longueur caractéristique l_c de transition de forme des précipités de sphère à cube est correctement reproduite. Un calcul approché décrit dans [48] et repris dans [15] donne des expressions simples pour l_c dans le cas de simulations à 2D et à 3D.

1.2 Méthodes d'analyse de la microstructure γ/γ'

Afin de mieux comprendre les évolutions microstructurales que le champ de phase présenté précédemment est capable de simuler, il est nécessaire de mettre au point des méthodes d'analyse quantitative de la morphologie et de l'arrangement spatial des précipités. Dans un premier temps, nous dressons un bref état de l'art sur la caractérisation de la forme des précipités. Ensuite, nous nous intéresserons à la caractérisation de l'arrangement spatial, ce qui nous amènera à discuter de méthodes originales développées à l'ONERA, permettant notamment de mettre en évidence les différents types de défauts observés dans ces arrangements simulés.

1.2.1 Morphologie des précipités

Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction de ce mémoire, la forme cuboïdale d'un précipité γ' est le résultat d'une compétition entre l'énergie d'interface isotrope, qui dépend de la surface du précipité, et de l'énergie élastique anisotrope qui dépend de son volume. L'énergie d'interface prédomine cette compétition pour les précipités de petites tailles, tandis que l'énergie élastique l'emporte lorsque les tailles sont plus grandes. Cette compétition est responsable de la transition de forme des précipités de sphéroïdes à cuboïdes pendant leur croissance. Cette transition de forme a été l'objet études théoriques, notamment dans [48, 50], où Khachaturyan *et al* comparent les énergies élastiques de précipités isolés de formes idéales parfaitement sphérique, cubique et parallélépipédique. Pour un même volume, ces calculs révèlent une diminution de l'énergie élastique du précipité entre sphère et cube, et une diminution moindre entre cube et parallélépipède.

Dans ces travaux, la méthode de calcul semi-analytique impose de considérer des formes simples des précipités, moins complexes que les morphologies observées expérimentalement [22, 65, 66, 105] ou numériquement [26, 28, 61, 108]. Dans ces derniers cas, des paramètres morphologiques doivent être choisis pour caractériser précisément la forme des précipités γ'. Nous discutons certains des paramètres de forme décrits dans la littérature.

L'évolution de la forme d'équilibre d'un précipité cohérent en fonction du ratio entre énergie élastique et énergie d'interface a été étudiée par Thompson *et al* dans [91], dans l'approximation de l'élasticité homogène. Pour caractériser la forme du précipité isolé, Thompson *et al* définissent un paramètre noté a_2^R, qui correspond au second coefficient du développement en séries de Fourier de la courbure de l'interface en fonction du contour du précipité. Par conséquent, a_2^R est nul pour une sphère ou un carré, par symétrie, mais il diffère de zéro dès que la symétrie d'ordre 4 est brisée, en particulier lorsque le carré ou la sphère s'allonge dans une direction préférentielle. La représentation de ce paramètre en fonction du ratio de l'énergie élastique sur l'énergie d'interface met en évidence la bifurcation de formes d'équilibre sphériques et cuboïdales ($a_2^R = 0$) vers des formes d'équilibre en plaquettes ($a_2^R \neq 0$) pour des tailles de précipités de plus en plus grandes (figure 1.4). Notons que des diagrammes de bifurcations similaires sont obtenus dans [83, 107] avec un paramètre défini en fonction du rapport d'aspect des précipités. Thornton *et al* dans [92] ont cependant remarqué que a_2^R est sensible aux faibles variations de symétrie d'ordre 2 d'une forme, et moins sensibles aux plus fortes élongations. Cette sensibilité du a_2^R en fait un paramètre précis pour l'étude des formes d'équilibre, mais le rend moins adapté lorsque les morphologies s'éloignent de la forme d'équilibre. Cela est notamment le cas de microstructures possédant un fort taux de phase γ', dans lesquelles les interactions élastiques entre précipités affectent leur forme. Dans ces conditions, d'autres paramètres sont plus adaptés à l'analyse de la forme des inclusions.

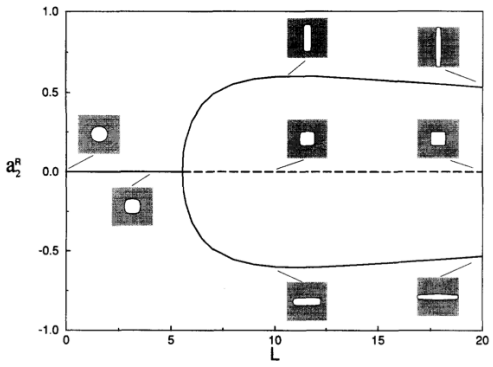


FIGURE 1.4: Diagramme de bifurcation de la forme d'équilibre d'un précipité, caractérisée par a_2^R, en fonction du ratio L entre énergie élastique et énergie d'interface (Thompson *et al* [91]).

Dans ses travaux de thèse, M. Cottura [26] a analysé de manière globale la forme des précipités grâce à la moyenne des rapports d'aspect $\langle l_{min}/l_{max} \rangle$ dans des microstructures simulées par champ de phase. Ces travaux ont révélé la forte influence de l'inhomogénéité de la constante élastique C' sur la forme des précipités. Le rapport d'aspect moyen se stabilise autour de $0,78$ pour une forte inhomogénéité sur C', alors qu'il décroît vers $0,67$ dans le cas de l'élasticité homogène [28]. M. Cottura *et al* ont ainsi montré que l'inhomogénéité en C' favorise les morphologies de précipités en cuboïdes plutôt qu'en plaquettes. Cette méthode sera reprise dans le chapitre 3 de ce mémoire pour analyser des résultats de simulations champ de phase. Mentionnons également la méthode des invariants de moments, utilisée pour l'étude expérimentale de la forme des précipités γ' à 3D dans [68]. Les invariants de moments ont l'avantage de quantifier la forme de précipités, même

lorsque celle-ci n'est pas convexe. Les invariants de moments sont également utilisés dans [72] pour identifier le début de la mise en radeaux d'une microstructure γ/γ' soumise à un chargement en fluage, dans une simulation de champ de phase.

1.2.2 Corrélations spatiales des barycentres

La méthode la plus répandue pour l'analyse d'une distribution de précipités repose sur le calcul de la fonction de distribution radiale. Cette fonction mesure l'espacement entre les barycentres des précipités, et donne une information globale de la distance entre inclusions. Elle est utilisée dans [1] pour étudier l'influence des corrélations spatiales entre particules sur leur coalescence en l'absence d'élasticité. Dans [86], elle sert l'analyse de l'influence d'un ajout de tungstène sur l'arrangement spatial des précipités dans un superalliage modèle. La fonction de distribution radiale ne tient compte que de la distance entre inclusions, et du fait de son caractère unidimensionnel ne peut pas rendre compte d'une anisotropie de l'arrangement des précipités. Elle ne semble donc pas adaptée à l'étude de la microstructure γ/γ'. Dans cette microstructure, la dépendance angulaire de la fonction de corrélation bidimensionnelle a été étudiée par Akaiwa *et al* dans [2] et par Thornton *et al* dans [92, 93]. Les auteurs ont réalisé des profils de la fonction d'autocorrélation des barycentres selon les directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$, plutôt que d'effectuer la moyenne sur tous les angles, comme fait classiquement pour obtenir la fonction de distribution radiale standard. Nous nous en sommes inspirés pour des analyses d'arrangements de précipités au chapitre 3. Une analyse plus directe des corrélations angulaires de la microstructure γ/γ' est possible par le calcul de la fonction de distribution angulaire $g_{\Delta\theta}(\theta)$ du barycentre des précipités. Considérons une microstructure constituée de N précipités repérés par leur barycentres $\boldsymbol{R}^i$, discrétisée sur une grille de $l \times l$ pixels. Nous définissons la distribution angulaire de cette microstructure par :

$$g_{\Delta\theta}(\theta) = \alpha_\theta \sum_{i,j} \widetilde{\delta}(0 < \theta - \theta_{ij} < \Delta\theta) \text{ avec } |\boldsymbol{R}^i - \boldsymbol{R}^j| < \frac{l}{2} \tag{1.63}$$

où $\alpha_\theta = l^2/\left(N^2 \Delta\theta (l/2)^2\right)$ est un coefficient de normalisation choisi pour que $g_{\Delta\theta}(\theta) = 1$ dans le cas de précipités dont les positions sont décorrélées. Le symbole $\widetilde{\delta}$ est un opérateur valant 1 si la condition associée est satisfaite, et 0 sinon. Nous considérons $\Delta\theta = 1°$, et θ_{ij} est l'angle entre le segment reliant les barycentres $\boldsymbol{R}^i$ et $\boldsymbol{R}^j$ des particules i et j et l'axe horizontal. Nous analysons les corrélations angulaires dans des microstructures simulées par champ de phase [26] en élasticité homogène et inhomogène en C'. Les résultats sont lissés pour faciliter la visualisation, et les microstructures analysées et les distributions angulaires correspondantes sont présentées à la figure 1.5.

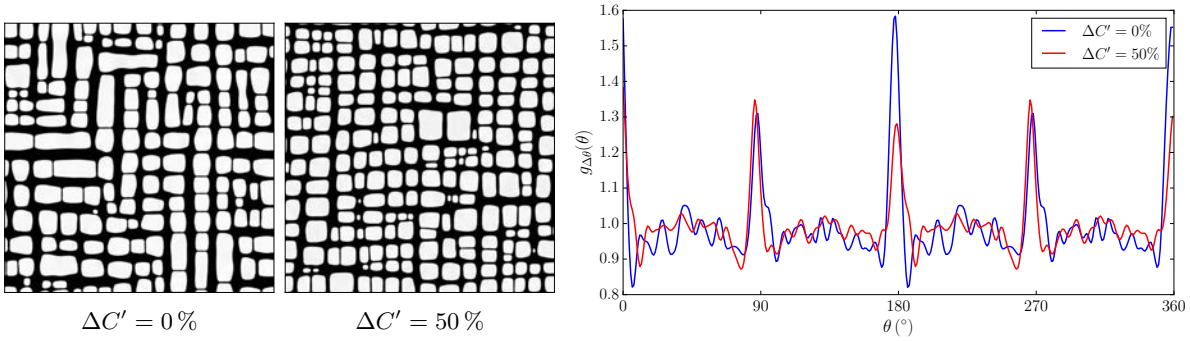


Figure 1.5: Microstructures γ/γ' homogène et inhomogène en C' simulées par champ de phase [28]. Les fonctions de distribution angulaire des barycentres des précipités sont comparées à droite.

Pour les deux microstructures, les distributions angulaires mettent en évidence la forte corrélation de positions des précipités dans les directions élastiquement molles, sans différence significative. Au contraire, les pics de corrélation se superposent presque parfaitement.

Une description plus riche est permise par la fonction d'autocorrélation $g_d(\boldsymbol{R})$ du barycentre des précipités qui conserve à la fois l'information des distances et celle des angles dans l'analyse de l'arrangement. Sa représentation graphique est cependant plus complexe, ce qui est limitant lorsqu'on s'intéresse à effectuer des comparaisons quantitatives. De même que précédemment, dans une microstructure de N précipités, de barycentres $\boldsymbol{R}^i$, discrétisée en $l \times l$ pixels, la fonction d'autocorrélation $g_d(\boldsymbol{R})$ est définie par :

$$g_d(\boldsymbol{R}) = \alpha_d \sum_{i,j} \widetilde{\delta}\left(|R_x - (R_x^i - R_x^j)| < \frac{d}{2}\right) \widetilde{\delta}\left(|R_y - (R_y^i - R_y^j)| < \frac{d}{2}\right) \text{ avec } |\boldsymbol{R}^i - \boldsymbol{R}^j| < \frac{l}{2} \tag{1.64}$$

où $\alpha_d = l^2/\left(N^2 d^2\right)$ est un coefficient de normalisation choisi pour que $g_d(\boldsymbol{R}) = 1$ dans le cas de précipités dont les positions sont décorrélées. L'opérateur $\widetilde{\delta}$ vaut 1 si la condition associée est satisfaite, et 0 sinon, et d est le pas de grille. Nous calculons les fonctions d'autocorrélation des barycentres des microstructures présentées à la figure 1.5. Les autocorrélations obtenues sont présentées à la figure 1.6. Les profils des autocorrélations selon [100] sont tracés à droite.

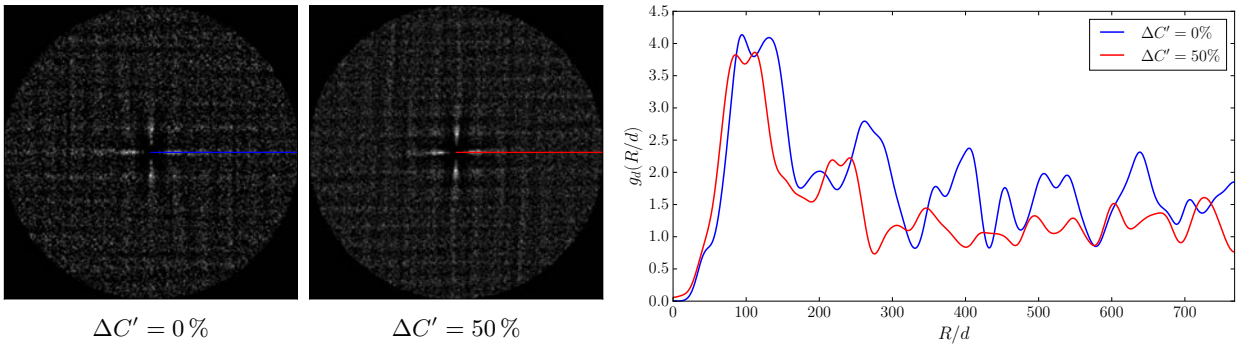


FIGURE 1.6: Autocorrélations des barycentres des précipités de microstructures homogène et inhomogène en C' simulées par champ de phase [28] et présentées à la figure 1.5. Les profils selon [100] des autocorrélations sont superposés à droite.

Les autocorrélations et les profils de la figure 1.6 sont lissés par filtrages gaussiens pour visualiser les évolutions sans que la lecture ne soit perturbée par le bruit lié au nombre de précipités, modeste pour la réalisation de telles études statistiques. Selon [100], l'espacement entre les pics de corrélation pour $\Delta C' = 50\,\%$ est inférieur à celui pour $\Delta C' = 0\,\%$. Cette observation traduit une distance entre barycentres plus importante en élasticité homogène, qui peut être interprété comme provenant de la taille et de la morphologie des précipités, respectivement plus grande et plus allongée qu'en inhomogène.

La distribution angulaire et la fonction d'autocorrélation du barycentre des précipités permettent une analyse globale de leur arrangement spatial. La morphologie des précipités est prise en compte de manière indirecte par l'espacement et le désalignement des barycentres. Le caractère global de ces fonctions de corrélations ne permet cependant pas de caractériser les défauts de périodicité de la microstructure γ/γ' identifiés dans l'introduction et associés à la phénoménologie des structures hors-équilibre.

1.2.3 Phénoménologie des structures hors-équilibre

1.2.3.1 Structures modulées et diffusion de la phase

La phénoménologie des structures hors-équilibre, ou *pattern formation*, porte sur l'étude de systèmes thermodynamiques généralement étendus, et maintenus hors-équilibre par une contrainte extérieure [29]. L'évolution de tels systèmes est régie par des équations aux dérivées partielles non-linéaires sur un ou plusieurs champs. Lorsque la contrainte extérieure est inférieure à un seuil, les équations de certains systèmes ont une solution pour laquelle ils sont homogènes dans l'espace. Une bifurcation survient au-delà de ce seuil et conduit à une structuration spatiale périodique du système, illustrée à la figure 1.7. La formation de structures spatialement modulées a été l'objet de nombreuses études, notamment en hydrodynamique (convections de Rayleigh-Bénard [11, 18] et de Bénard-Marangoni [54]) et en solidification [3, 4, 76, 101].

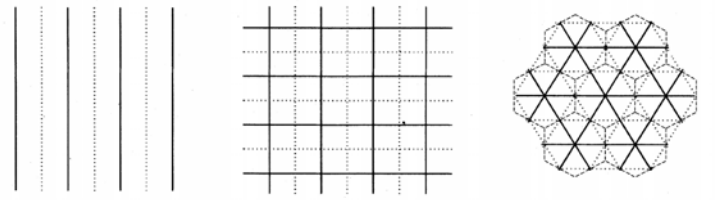


Figure 1.7: Structures modulées lamellaire, carrée et hexagonale [29]. Les traits continus et pointillés correspondent respectivement aux maxima et aux minima du champ décrivant les structures.

Dans le cas d'un motif lamellaire, périodique selon x avec une longueur d'onde $2\pi/k$, la structure est décrite par une amplitude $\mathcal{A}e^{ikx}$ où $\mathcal{A} = Ae^{i\psi}$ varie lentement dans l'espace et dans le temps. Dans le cas de perturbations à grandes longueurs d'onde, la dynamique du système est approchée par celle de sa phase ψ. Au plus bas ordre, l'équation cinétique régissant les évolutions de cette phase s'écrit comme une équation de diffusion [77] :

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = D_{xx}\frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + D_{yy}\frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} \tag{1.65}$$

où D_{xx} et D_{yy} sont des coefficients phénoménologiques fonctions des paramètres du système, et sont appelés coefficients de diffusion de la phase. Le signe de D_{xx} et D_{yy} détermine la stabilité ou l'instabilité de la structure lamellaire vis-à-vis de perturbations de phase selon x et y. Le système est instable vis-à-vis de perturbations longitudinales de phase lorsque $D_{xx} < 0$, et on parle alors d'instabilité d'Eckhaus. Les variations de longueurs d'onde s'amplifient jusqu'à détruire la périodicité initiale du motif lamellaire, qui se restabilise généralement à plus grande longueur d'onde. Lorsque $D_{yy} < 0$, le système est instable vis-à-vis de perturbations de phase transverses à sa modulation. Le développement de l'instabilité entraîne une ondulation des lamelles selon y et on parle d'instabilité zigzag. L'instabilité d'Eckhaus et l'instabilité zigzag d'une structure lamellaire sont illustrées à la figure 1.8.

La description d'un système lamellaire instable vis-à-vis de perturbations de la phase nécessite d'enrichir l'équation de phase (1.65) en tenant compte de termes d'ordres supérieurs [29]. En général, assimiler la dynamique d'un système à celle de sa phase n'est possible que si la structure est suffisamment proche d'une structure périodique parfaite. La présence de nombreux défauts topologiques dans une structure modulée appelle à une description de la dynamique des défauts plus que de la dynamique de phase.

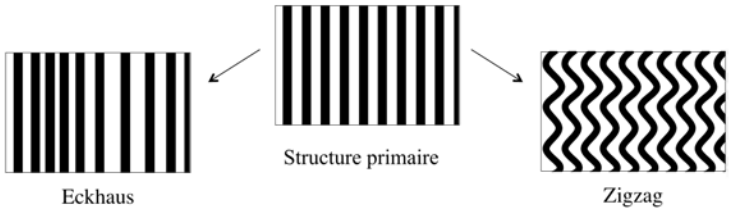


FIGURE 1.8: Instabilité d'Eckhaus et instabilité zigzag d'une structure lamellaire [12, 76].

Nous analysons la microstructure γ/γ' d'après la phénoménologie des structures hors-équilibre. Par analogie avec la structure lamellaire décrite précédemment, le champ de concentration en aluminium dans une microstructure γ/γ' à 3D peut être assimilé à une amplitude, ou une superposition d'amplitudes, de la forme $\mathcal{A}e^{\mathrm{i}\boldsymbol{kr}}$ telle que $\mathcal{A} = Ae^{\mathrm{i}(\psi_x+\psi_y+\psi_z)}$. Etant donné que les concentrations d'équilibre des phases γ et γ' sont fixées par le diagramme de phase cohérent à une température donnée, l'amplitude A n'a pas de raison de varier. Les seules variables lentes de l'amplitude $\mathcal{A}$ sont celles portées par les phases de l'arrangement ψ_x, ψ_y et ψ_z. Les défauts de périodicité de la microstructure γ/γ' identifiés en introduction ne remettent pas en cause l'intérêt d'une analyse par les phases, dans la mesure où les défauts topologiques sont des singularités des phases. La caractérisation des phases permettrait d'isoler ces défauts de périodicité.

1.2.3.2 Phases et modulations de la microstructure γ/γ'

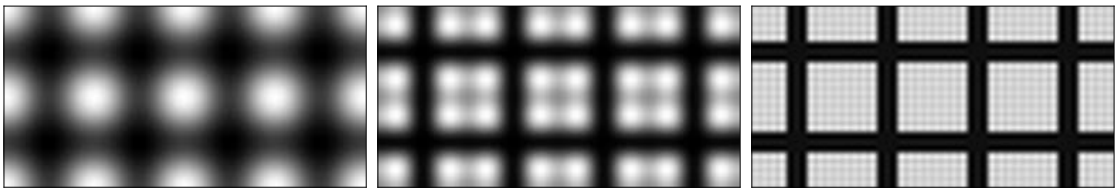
Considérons à 2D une microstructure γ/γ' avec une fraction volumique f_v de précipités et décrite par une fonction de forme $s(\boldsymbol{r})$ qui vaut 1 dans les précipités et 0 dans la matrice. La fonction $s(\boldsymbol{r})$ peut être approchée par une fonction $s^N(\boldsymbol{r})$ qui correspond à un produit de développements en séries de Fourier de signaux carrés selon r_x et r_y jusqu'à l'harmonique d'ordre N, et modulés en phases, soit :

$$s(\boldsymbol{r}) \approx s^N(\boldsymbol{r}) = f_x^N(\boldsymbol{r}) \times f_y^N(\boldsymbol{r}) \quad \text{avec,} \quad f_i^N(\boldsymbol{r}) = a_0 + \sum_{n=1}^{N} a_n \cos\big[nkr_i + n\psi_i(\boldsymbol{r})\big] \tag{1.66}$$

où $2\pi/k$ est la longueur de référence de l'arrangement, et où $a_n \cos\big[nkr_i + n\psi_i(\boldsymbol{r})\big]$ est l'harmonique d'ordre n du signal $f_i^N(\boldsymbol{r})$. L'harmonique d'ordre 0 a_0 est une composante continue qui est fonction de la fraction volumique et l'harmonique d'ordre 1 est le fondamental. En faisant l'hypothèse que le signal est pair, les coefficients des harmoniques d'ordre 0 et d'ordre n sont définis par :

$$a_0 = \sqrt{f_v} \;\; ; \;\; a_n = \frac{2}{n\pi} \sin\Big(n\pi\sqrt{f_v}\Big) \tag{1.67}$$

La fonction $s^N(\boldsymbol{r})$ est illustrée à la figure 1.9 lorsque les phases $\psi_x(\boldsymbol{r})$ et $\psi_y(\boldsymbol{r})$ sont nulles. Les structures obtenues constituent le réseau de référence auquel est associée la microstructure γ/γ'. Les écarts de la microstructure γ/γ' expérimentale ou simulée à la structure de référence de la figure 1.9 sont répercutés sur les phases ψ_x et ψ_y. Des phases constantes correspondent à une microstructure régulière proche du réseau de référence, tandis que les variations de phases ψ_x et ψ_y repèrent respectivement les déviations de la microstructure au réseau selon r_x et r_y, qui sont causées par la forme ou l'arrangement des précipités. Nous cherchons à déterminer les phases de la microstructure des superalliages par analyse d'image. L'analyse que nous présentons dans la suite de cette section est appliquée à une microstructure calculée par champ de phase, mais peut également être réalisé sur une micrographie expérimentale.



$N = 1$ $N = 2$ $N = 10$

Figure 1.9: Fonction $s^N(\boldsymbol{r})$ définie à l'équation (1.66) jusqu'aux harmoniques d'ordre $N = 1$ (fondamental), $N = 2$ et $N = 10$. Les phases sont telles que $\psi_x(\boldsymbol{r}) = \psi_y(\boldsymbol{r}) = 0$ et la fraction volumique $f_v = 0.6$.

Par souci de simplicité du calcul de ψ_x et ψ_y, nous choisissons d'approcher la microstructure γ/γ' par la fonction décrite précédemment au fondamental :

$$s^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) = \Big\{a_0 + a_1 \cos\big[kr_x + \psi_x(\boldsymbol{r})\big]\Big\} \times \Big\{a_0 + a_1 \cos\big[kr_y + \psi_y(\boldsymbol{r})\big]\Big\} \tag{1.68}$$

Un filtre passe-bas est appliqué à la microstructure afin de lisser les variations abruptes du champ. Ce filtrage élimine les hautes fréquences, et rapproche la microstructure du mode fondamental en conservant une information centrée sur le barycentre des précipités. Nous calculons les dérivées spatiales du champ filtré, et la dérivée première de la fonction (1.68) selon r_x donne :

$$\begin{aligned}\frac{\partial s^{\mathrm{I}}}{\partial r_x} &= -a_0 a_1 \Bigg\{\left(k + \frac{\partial \psi_x}{\partial r_x}\right)\sin\big[kr_x + \psi_x(\boldsymbol{r})\big] + \frac{\partial \psi_y}{\partial r_x}\sin\big[kr_y + \psi_y(\boldsymbol{r})\big]\Bigg\} \\ -a_1^2 \Bigg\{&\left(k + \frac{\partial \psi_x}{\partial r_x}\right)\sin\big[kr_x + \psi_x(\boldsymbol{r})\big]\cos\big[kr_y + \psi_y(\boldsymbol{r})\big] + \frac{\partial \psi_y}{\partial r_x}\cos\big[kr_x + \psi_x(\boldsymbol{r})\big]\sin\big[kr_y + \psi_y(\boldsymbol{r})\big]\Bigg\}\end{aligned} \tag{1.69}$$

En négligeant les termes en facteur de a_1^2 et en supposant que les variations spatiales des phases sont faibles devant le nombre d'onde, les dérivées premières et secondes de $s^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ par rapport à r_i sont approchées par :

$$\frac{\partial s^{\mathrm{I}}}{\partial r_i} \approx -a_0 a_1 k \sin\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big] \tag{1.70a}$$

$$\frac{\partial^2 s^{\mathrm{I}}}{\partial r_i^2} \approx -a_0 a_1 k^2 \cos\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big] \tag{1.70b}$$

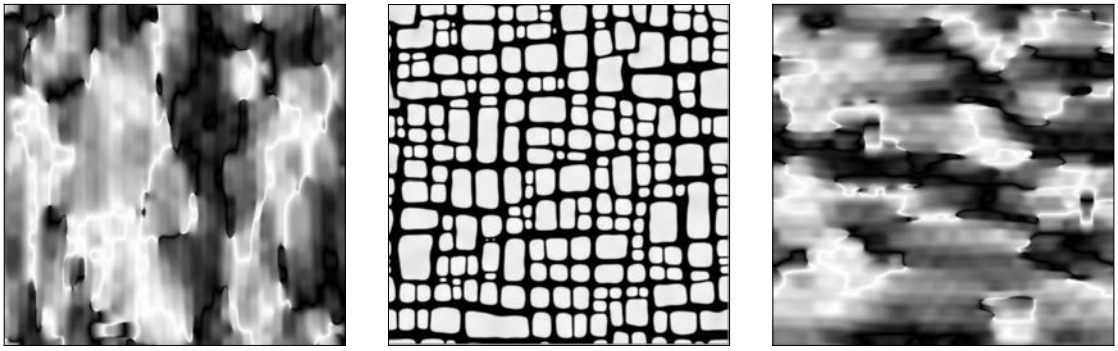
Le quotient de ces dérivées conduit à :

$$\frac{\partial s^{\mathrm{I}}/\partial r_i}{\partial^2 s^{\mathrm{I}}/\partial r_i^2} \approx \frac{-k\sin\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big]}{-k^2\cos\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big]} = \frac{1}{k}\tan\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big] \tag{1.71}$$

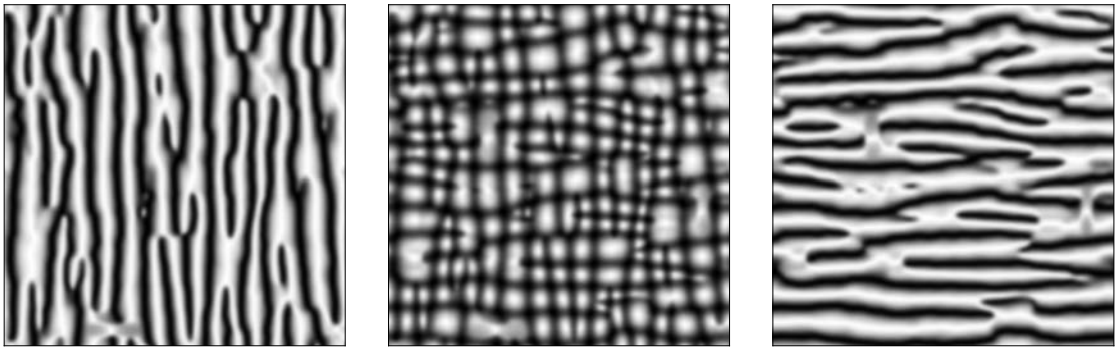
et nous obtenons finalement une expression approchée de la phase $\psi_i(\boldsymbol{r})$ à partir des dérivées spatiales de la microstructure filtrée :

$$\psi_i(\boldsymbol{r}) \approx \arctan\left(k\frac{\partial s^{\mathrm{I}}/\partial r_i}{\partial^2 s^{\mathrm{I}}/\partial r_i^2}\right) - kr_i \tag{1.72}$$

Nous calculons les phases d'une microstructure simulée par de champ de phase dans [26] en approchant les dérivées du champ filtré par des différences finies centrées, puis en lissant le résultat. La longueur d'onde $2\pi/k$ de référence est évaluée en ramenant la surface du système au nombre de précipités. Les phases ψ_x et ψ_y sont présentées à la figure 1.10 avec une représentation en niveaux de gris 2π-périodiques pour faciliter la visualisation.



$\psi_x(\boldsymbol{r})$ $c(\boldsymbol{r})$ [26] $\psi_y(\boldsymbol{r})$



$f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ $s^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) = f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) \times f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ $f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$

FIGURE 1.10: Calcul des phases ψ_x et ψ_y d'une microstructure γ/γ' issue d'une simulation de champ de phase. Les phases permettent de décomposer les modulations f_x^{I} et f_y^{I} du fondamental de la microstructure, et de la reconstruire à ce mode.

ψ_x (resp. ψ_y) est constante pour une régularité selon r_x (resp. r_y) de la microstructure, et varie lorsque cette régularité est perdue à proximité des défauts topologiques. Ainsi les déviations de l'arrangement des précipités à la structure de référence sont repérées par des variations de phases. La connaissance des phases permet de reconstruire les modulations $f_i^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) = a_0 + a_1 \cos\big[kr_i + \psi_i(\boldsymbol{r})\big]$ et la microstructure $s^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ au mode fondamental (figure 1.10). La qualité du calcul est évaluée en comparant la microstructure initiale et la microstructure reconstruite, qui correspondent à 93 %. La majorité des précipités est reproduite avec une précision satisfaisante, malgré certaines irrégularités de forme qui sont amplifiées. La perte des petits précipités dans le calcul provient du fait qu'ils sont décrits par de hautes fréquences, filtrées en amont. La qualité de la reconstruction dépend nécessairement de la forme postulée à l'équation (1.68) et des approximations réalisées pour obtenir l'expression (1.72). Ces deux points constituent des perspectives d'amélioration du calcul des phases.

Par des opérations algébriques sur les images initiale et filtrée, nous avons étendu cette analyse jusqu'à l'harmonique d'ordre 2. Cet harmonique, de vecteur d'onde $2k$, ajoute une amplitude qui donne une meilleure précision des formes et des interfaces sur la microstructure reconstruite (figure 1.9 au milieu). Toutefois, dans l'analyse des défauts topologiques, la restriction de l'analyse au seul mode fondamental donne une description pertinente. Ainsi, les analyses de phases que nous présentons dans la suite de ces travaux de thèse sont restreintes au fondamental.

Puisque les variations de phases localisent les écarts de la microstructure réelle à la périodicité de référence, les dérivées spatiales de ψ_x et ψ_y permettent une analyse plus directe de l'arrangement des précipités. Loin des défauts topologiques, les phases ont une variation dans l'espace de l'ordre de la longueur d'onde $2\pi/k$ du réseau de référence, et qui est ainsi lente devant celle du champ c. En tenant compte de ces variations lentes, et en relevant la phase selon la direction de dérivation, le calcul des dérivées de ψ_x et ψ_y permet de définir les paramètres topologiques suivants pour la description 2D de la microstructure :

$$\lambda_x(\boldsymbol{r}) = \frac{2\pi}{k + \partial\psi_x/\partial r_x} \;\; ; \;\; \theta_x(\boldsymbol{r}) = \arctan\left(\frac{1}{k}\frac{\partial\psi_y}{\partial r_x}\right) \tag{1.73a}$$

$$\lambda_y(\boldsymbol{r}) = \frac{2\pi}{k + \partial\psi_y/\partial r_y} \;\; ; \;\; \theta_y(\boldsymbol{r}) = \arctan\left(\frac{1}{k}\frac{\partial\psi_x}{\partial r_y}\right) \tag{1.73b}$$

D'après leur définition et dans la mesure où les phases sont calculées au fondamental de l'arrangement, λ_i et θ_i sont respectivement l'espacement local et le désalignement local des barycentres selon r_i (figure 1.11).

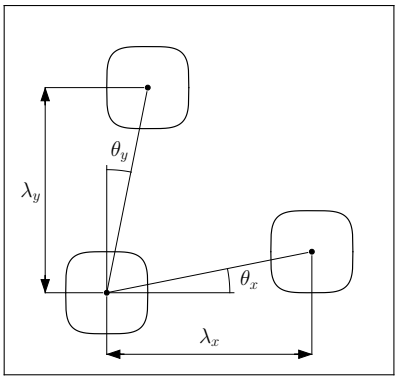


Figure 1.11: Illustration des paramètres topologiques issus des dérivées spatiales des phases ψ_x et ψ_y.

Ces paramètres facilitent la compréhension des phases et de leurs variations. Dans le cas des désalignements, $\partial_{r_i}\psi_j = 0$ implique $\theta_i = 0$ et correspond à un alignement parfait de la microstructure sur le réseau de référence selon r_i. A l'inverse, $\partial_{r_i}\psi_j \neq 0$ traduit un désalignement local des barycentres au réseau de référence. De même pour les espacements, une dérivée nulle de la phase révèle que la microstructure correspond localement à la périodicité décrite par $2\pi/k$. $\partial_{r_i}\psi_i < 0$ et $\partial_{r_i}\psi_i > 0$ entraînent une augmentation et une diminution locales de λ_i et correspondent respectivement à un éloignement et à une rapprochement du barycentre des précipités par rapport au réseau de référence. Sur les cartes de ψ_x et ψ_y de la figure 1.10, les défauts topologiques sont localisés par les fortes variations de phases sur une longueur inférieure ou égale à $2\pi/k$ (du blanc au noir et réciproquement). A ces singularités des phases sont associées de fortes variations des λ_i et θ_i, qui repèrent également les défauts de périodicité de la microstructure. De même que pour l'illustration des fonctions de corrélations sur les barycentres des précipités, une analyse de phases a été réalisée sur les microstructures élastiquement homogène et inhomogène en C' de la figure 1.5, pour comparer leurs distributions de λ_i et θ_i. Cette analyse, absente de ce mémoire de thèse, a permis de quantifier les espacements et les désalignements locaux, et de mettre en évidence de nouvelles différences de corrélations spatiales entre ces deux microstructures. Bien que cette analyse soit sensible au nombre de précipités, des différences significatives ont été observées dans les covariances des espacements λ_x et λ_y et des désalignements θ_x et θ_y entre $\Delta C' = 0\%$ et $\Delta C' = 50\%$.

1.2.3.3 Squelettes des modulations et défauts de périodicité

La méthode d'analyse en phases de la microstructure γ/γ' a été décrite précédemment, ainsi que la définition des paramètres d'espacements et de désalignements qui permettent une étude plus directe de l'arrangement des précipités. Le principal avantage du calcul de ψ_x et ψ_y reste cependant la décomposition des modulations f_x^{I} et f_y^{I} du fondamental de la microstructure. Cette décomposition permet d'isoler les défauts de périodicité en calculant les axes médians ou squelettes des modulations. Sur les squelettes, le nombre de voisins de chaque pixel donne automatiquement la position du défaut ainsi que son type (3 voisins pour les branches et 1 voisin pour les macro-dislocations). Un programme d'analyse automatique des défauts topologiques des microstructures a été écrit en langage Python. Un exemple de résultat est présenté dans la figure 1.12 et cet outil sera utilisé dans l'analyse de la dynamique des défauts présentée dans la section 2.4.

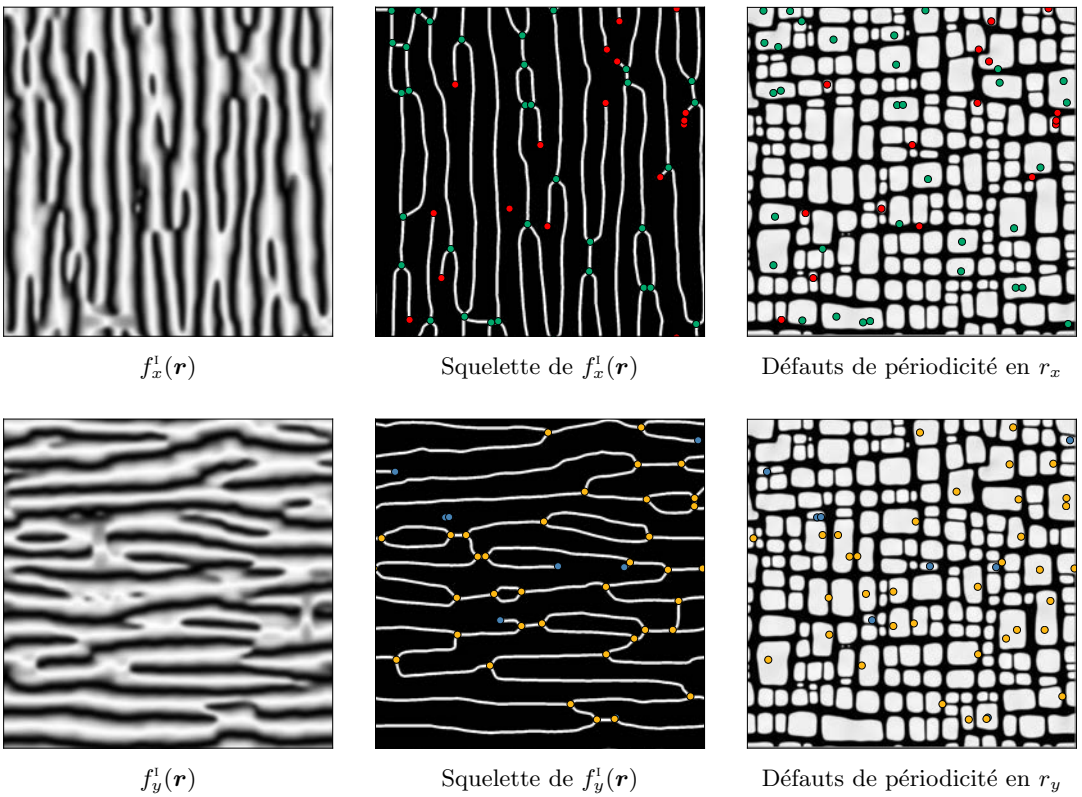


FIGURE 1.12: Squelettes des modulations et défauts de périodicité : branches et macro-dislocations.

1.3 Conclusions

L'objectif de ce chapitre est d'introduire la théorie et les méthodes numériques que nous utilisons aux chapitres 2 et 3 de ce mémoire de thèse, pour l'étude numérique de la dynamique des défauts d'alignement des précipités γ' dans la microstructure des superalliages monocristallins.

Nous présentons dans un premier temps des généralités sur la méthode de champ de phase, et un modèle pour simuler l'évolution d'une microstructure au cours d'une transformation de phase diffusive et en présence d'élasticité. La résolution de l'équilibre mécanique statique de la microstructure a été décrit dans l'hypothèse de l'élasticité homogène, en élasticité inhomogène et dans l'approximation du milieu élastique effectif. Dans le cas d'un système décrit uniquement par un champ de concentration, la résolution de l'équation de Cahn-Hilliard a également été présentée.

La seconde partie de ce chapitre présente différentes méthodes d'analyse de la microstructure γ/γ'. Après un bref état de l'art de différents paramètres caractérisant la morphologie des précipités γ', nous nous intéressons davantage à la caractérisation de leur arrangement spatial. Nous présentons les méthodes usuelles d'analyse de l'arrangement spatial des précipités par le calcul des fonctions de distribution angulaire et d'autocorrélation du barycentre des précipités. A titre d'exemple, nous utilisons ces fonctions pour comparer des microstructures élastiquement homogène et inhomogène en C', issues de simulations de champ de phase réalisées dans des travaux antérieurs.

Nous présentons finalement une méthode originale d'analyse de la microstructure γ/γ', issue de la phénoménologie des structures hors-équilibre et fondée sur le calcul des phases de l'arrangement spatial des précipités. Cette méthode a l'avantage de permettre une décomposition des modulations du fondamental de la microstructure. Le calcul des squelettes des modulations permet alors la détection automatique de la position et du type des défauts de périodicité : branche ou macro-dislocation. A titre d'exemple, cette méthode est utilisée pour l'analyse d'une microstructure calculée par champ de phase. Elle peut cependant être appliquée à l'étude de microstructures expérimentales. La précision de la méthode d'analyse en phases pourrait être améliorée par le choix d'une fonction différente du produit de développements en séries de Fourier de signaux carrés au mode fondamental, ou par la prise en compte d'harmoniques d'ordres supérieurs. La précision de la méthode au mode fondamental est cependant suffisante pour l'analyse des défauts d'alignement des précipités γ', et est utilisée dans la suite de ce mémoire de thèse pour caractériser leur dynamique dans des simulations de champ de phase.

2 Formation et dynamique des défauts d'alignement

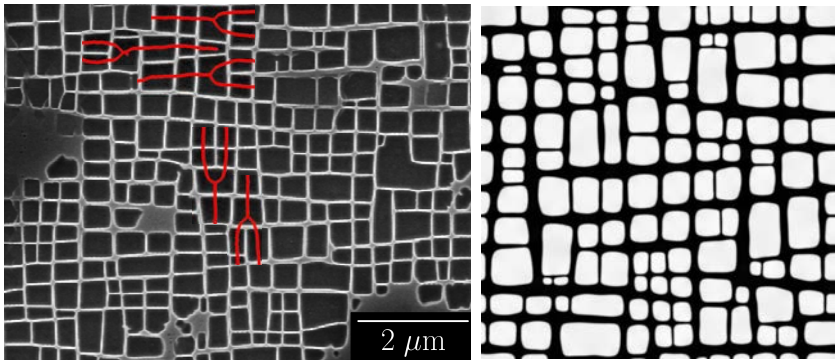
Le travail présenté dans ce chapitre a pour objectif la compréhension de l'origine des défauts de périodicité observés expérimentalement et numériquement dans l'arrangement des précipités de la microstructure γ/γ'. L'analyse perturbative de la distribution périodique d'inclusions cohérentes et de morphologies cubiques révèle son instabilité vis-à-vis de certains modes spécifiques. Le champ de phase permet de relier l'évolution des modes instables aux défauts de périodicité, dont la formation est alors expliquée par le développement spontané de ces instabilités. Nous étudions les influences du taux de phase γ' et de l'inhomogénéité du module élastique C', et nous montrons le rôle qu'ils jouent dans la stabilisation de l'arrangement périodique. La dynamique des défauts d'alignement dans la microstructure est ensuite étudiée au cours d'un recuit isotherme et après la mise en radeaux de la microstructure, à partir de simulations champ de phase réalisées dans des travaux antérieurs.

Sommaire

2.1 Observations expérimentales et numériques . . . 32
2.2 Analyse de stabilité de la distribution périodique . . . 34
2.2.1 Perturbation statique du macroréseau cubique simple . . . 34
2.2.1.1 Instabilités d'arrangement induites par les formes . . . 38
2.2.1.2 Rôle de l'anisotropie élastique . . . 40
2.2.2 Développement des instabilités et formation de défauts . . . 41
2.2.2.1 Mode longitudinal instable selon [ζ, 0, 0] . . . 43
2.2.2.2 Mode transverse instable selon [ζ, ζ, 0] . . . 44
2.3 Contributions stabilisantes de l'arrangement périodique . . . 44
2.3.1 Fraction volumique de phase γ' . . . 45
2.3.1.1 Paysages de stabilité des branches L et T_2 . . . 45
2.3.1.2 Ecrantage des interactions élastiques . . . 46
2.3.2 Inhomogénéité du module C' . . . 50
2.3.2.1 Courbures de l'énergie élastique de configuration . . . 50
2.3.2.2 Stabilisation, croissance et couplage de longueurs d'onde . . . 52
2.4 Dynamique des défauts d'alignement . . . 56
2.4.1 Montée et glissement des défauts pendant un recuit isotherme . . . 56
2.4.2 Evolution des défauts d'arrangement lors d'une mise en radeaux . . . 61
2.5 Conclusions et perspectives . . . 63

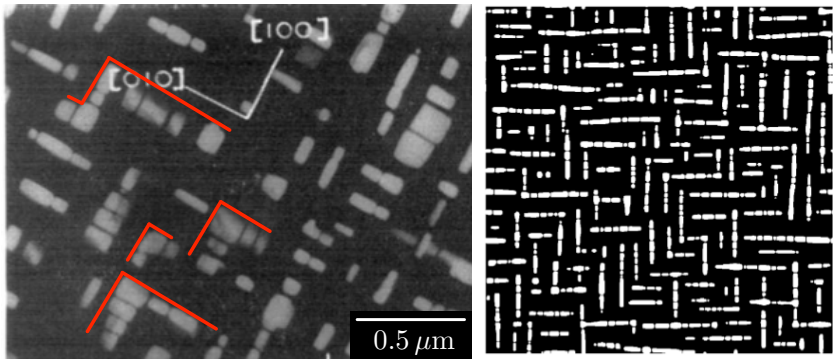
2.1 Observations expérimentales et numériques

La distribution quasi-périodique des précipités cuboïdaux de la microstructure γ/γ' est issue d'une reconfiguration induite par l'élasticité, au cours de laquelle les précipités s'alignent par rapport à leurs voisins selon les directions cubiques de la matrice. Comme il a été discuté dans l'introduction de ce manuscrit, ces alignements possèdent des défauts systématiques, qui sont observés expérimentalement et numériquement. A forte fraction volumique, des branches et des terminaisons dans les modulations (figure 2.1) brisent systématiquement la périodicité de l'arrangement. A de plus faibles fractions, des rangées de précipités respectivement alignées suivant [100] et [010] tendent à être adjacentes, formant ainsi des motifs "coudés" (figure 2.2) que nous appelons des chevrons.



F. Diologent et P. Caron [33] M. Cottura *et al* [26]

Figure 2.1: Défauts de périodicité dans des microstructures γ/γ' expérimentale et modélisée par champ de phase, à fortes fractions volumique de phase γ' : branches et terminaisons.



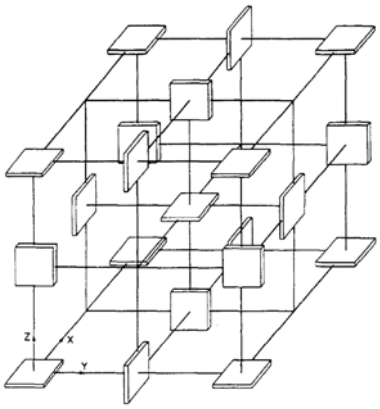
A. J. Ardell et R. B. Nicholson [8] V.Vaithyanathan, L.Q.Chen [94]

Figure 2.2: Défauts de périodicité dans des microstructures γ/γ' expérimentale et modélisée par champ de phase, à plus faibles fractions volumique de phase γ' : structures coudées ou motifs en chevrons.

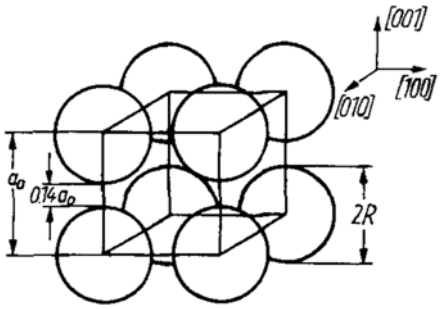
La présence de ces défauts dans des microstructures expérimentales et simulées soulève la question de la stabilité de l'arrangement périodique de précipités en interactions élastiques. La stabilité d'une distribution de précipités cohérents a été l'objet de nombreuses études, notamment vis-à-vis de la croissance et de la coalescence des précipités [46, 47, 75]. Nous nous intéressons plus spécifiquement aux analyses de stabilité d'arrangements de précipités cohérents vis-à-vis de perturbations de la position des inclusions.

Dans le cas d'un milieu élastique homogène isotrope, et de précipités possédant une déformation libre tétragonale avec la matrice, Perovic *et al* [75] étudient la stabilité d'un macroréseau de plaquettes vis-à-vis de la croissance et de la coalescence. Dans les mêmes hypothèses et en considérant un arrangement idéal de plaquettes parallélépipédiques, appelé macroréseau $\langle 1230 \rangle$ dans la notation de Eurin *et al* [35] (figure 2.3 à gauche), Perovic *et al* [74] montrent qu'une perturbation selon y de la position de la plaquette centrale du macroréseau induit une diminution de l'énergie élastique dans l'approximation d'inclusions de tailles infinitésimales. Ils montrent également que cette même perturbation conduit à une augmentation de l'énergie élastique, lorsque les plaquettes sont de tailles finies, et ils concluent à la stabilité de ce macroréseau.

Dans un milieu élastique homogène possèdant une anisotropie cubique, et constitué d'inclusions sphériques en dilatation isotrope par rapport à la matrice, Khachaturyan et Airapetyan [49] montrent que le macroréseau cubique simple est énergétiquement favorable vis-à-vis de l'élasticité, contrairement aux macroréseaux cubique centré et cubique à faces centrées. La fraction volumique $f_v = 37\,\%$ est également identifiée comme celle pour laquelle l'énergie élastique d'interaction d'un arrangement cubique simple de sphères est minimale. A cette même fraction volumique, Khachaturyan et Airapetyan réalisent une analyse de stabilité et montrent qu'une perturbation des positions dans une distribution cubique simple de sphères (figure 2.3 à droite) entraîne systématiquement une augmentation de l'énergie élastique. Ils démontrent ainsi qu'un arrangement cubique simple d'inclusions sphériques à $f_v = 37\,\%$ est stable vis-à-vis de perturbations de la position des précipités.



Macroréseau $\langle 1230 \rangle$ de plaquettes (Perovic *et al* [74]).



Macroréseau cubique simple de sphères (Khachaturyan et Airapetyan [49]).

FIGURE 2.3: Macroréseaux considérés par Perovic *et al* [74] et par Khachaturyan et Airapetyan [49] dans l'analyse de stabilité d'un macroréseau de précipités cohérents, soumis à une perturbation de la position des inclusions.

Afin de comprendre l'origine des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ', nous réalisons une analyse de stabilité d'une distribution de précipités cohérents arrangés périodiquement selon un macroréseau cubique simple, vis-à-vis de perturbations de leur position. L'analyse de stabilité statique que nous présentons dans ce chapitre est fondée sur la théorie de l'élasticité de Khachaturyan [48], ainsi que sur le travail de Khachaturyan et Airapetyan [49]. Cette analyse de stabilité est enrichie de simulations réalisées avec la méthode de champ de phase présentée au chapitre 1, ainsi que de calculs d'énergie élastique d'interaction. La méthode d'analyse par phases géométriques ψ_i proposée au paragraphe 1.2.3.2 du chapitre 1 est utilisée pour suivre l'évolution des défauts de périodicité dans des microstructures simulées par champ de phase dans des travaux antérieurs [26].

2.2 Analyse de stabilité de la distribution périodique

2.2.1 Perturbation statique du macroréseau cubique simple

Considérons une microstructure biphasée constituée de N inclusions cohérentes de mêmes tailles et de mêmes formes, arrangées périodiquement sur un macroréseau cubique simple d'espacement a. La fonction de forme $\theta(\boldsymbol{r})$ décrivant cette microstructure s'écrit comme une somme sur les positions $\boldsymbol{R}$ des précipités de la fonction de forme $\theta_0(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R})$ d'un précipité centré en $\boldsymbol{R}$:

$$\theta(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{R}} \theta_0(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{R}) \tag{2.1}$$

En utilisant l'expression de la transformation de Fourier introduite au chapitre précédent, ainsi que la propriété selon laquelle la translation par un vecteur dans l'espace direct devient un produit par un terme de phase dans l'espace réciproque, la transformée de Fourier de $\theta(\boldsymbol{r})$ s'écrit :

$$\theta(\boldsymbol{k}) = \theta_0(\boldsymbol{k}) \sum_{\boldsymbol{R}} e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{R}} \tag{2.2}$$

En supposant l'homogénéité des modules élastiques et l'absence de chargement sur le volume périodique V, l'énergie élastique de cette microstructure dans l'espace réciproque est :

$$E_{el} = \frac{V}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \sum_{\boldsymbol{R},\boldsymbol{R'}} e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}-\boldsymbol{R'})} \tag{2.3}$$

avec $\boldsymbol{n} = \boldsymbol{k}/k$. La considération de l'énergie élastique d'une microstructure élastiquement homogène dans l'espace réciproque permet de distinguer les propriétés élastiques et cristallographiques de la transformation de phase, portées par le noyau élastique anisotrope $B(\boldsymbol{n})$, des formes et de l'arrangement des précipités, contenus dans la fonction de forme $\theta(\boldsymbol{k})$. L'hypothèse de précipités identiques permet d'étendre cette distinction en dissociant dans $\theta(\boldsymbol{k})$ l'information de leur taille et de leur forme, portée par $\theta_0(\boldsymbol{k})$, de celle de leur arrangement contenue dans les sommes des termes de phases.

Il est usuel de séparer l'énergie élastique en deux contributions : l'énergie E_{el}^{self}, qui est l'énergie élastique d'un précipité isolé dans la matrice, et l'énergie élastique d'interaction ou de configuration E_{el}^{conf}, qui porte la dépendance de l'énergie élastique totale à l'arrangement spatial des précipités. Cette distinction est réalisée en dissociant $\boldsymbol{R}=\boldsymbol{R'}$ de $\boldsymbol{R}\neq\boldsymbol{R'}$ dans les sommes des termes de phases, et conduit à l'expression :

$$E_{el} = \mathrm{N}E_{el}^{self} + E_{el}^{conf} \tag{2.4}$$

dans laquelle,

$$E_{el}^{self} = \frac{V}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \tag{2.5}$$

et,

$$E_{el}^{conf} = \frac{\mathrm{V}}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \sum_{\substack{\boldsymbol{R},\boldsymbol{R'} \\ \boldsymbol{R}\neq\boldsymbol{R'}}} e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}-\boldsymbol{R'})} \tag{2.6}$$

Chaque précipité est écarté de sa position $\boldsymbol{R}_0$ sur le macroréseau périodique par l'application d'un déplacement $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0)$ de son barycentre $\boldsymbol{R} = \boldsymbol{R}_0 + \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0)$. Cette perturbation statique de la distribution cubique simple est illustrée à la figure 2.4.

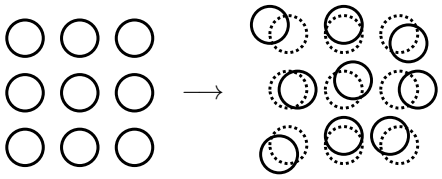


FIGURE 2.4: Illustration de la perturbation statique d'une distribution carrée d'inclusions sphériques.

La contribution de l'énergie *self* E_{el}^{self} à l'énergie élastique totale E_{el} reste inchangée, puisque la forme des précipités est conservée au cours de la perturbation. La perturbation statique de l'arrangement induit une variation de l'énergie élastique de configuration. L'énergie élastique de configuration de la microstructure perturbée s'écrit :

$$E_{el}^{conf} = \frac{\mathrm{V}}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \sum_{\substack{\boldsymbol{R}_0, \boldsymbol{R}'_0 \\ \boldsymbol{R}_0 \neq \boldsymbol{R}'_0}} e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}_0 - \boldsymbol{R}'_0 + \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))} \tag{2.7}$$

En supposant l'amplitude des déplacements infinitésimale, l'énergie de configuration est développée au second ordre autour de celle du macroréseau non-perturbé, et par rapport aux déplacements. Le développement limité au second ordre de l'exponentielle complexe d'argument la différence des déplacements est :

$$e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))} = 1 - \mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0)) + \frac{1}{2}\big[\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))\big]\big[\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))\big] + O(\boldsymbol{u}^3) \tag{2.8}$$

et conduit à une expression approchée de l'énergie de configuration de l'arrangement perturbé :

$$\begin{aligned} E_{el}^{conf} \simeq \frac{\mathrm{V}}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 & \sum_{\substack{\boldsymbol{R}_0, \boldsymbol{R}'_0 \\ \boldsymbol{R}_0 \neq \boldsymbol{R}'_0}} e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}_0 - \boldsymbol{R}'_0)} \\ & - \sum_{\substack{\boldsymbol{R}_0, \boldsymbol{R}'_0 \\ \boldsymbol{R}_0 \neq \boldsymbol{R}'_0}} \mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0)) e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}_0 - \boldsymbol{R}'_0)} \\ & + \sum_{\substack{\boldsymbol{R}_0, \boldsymbol{R}'_0 \\ \boldsymbol{R}_0 \neq \boldsymbol{R}'_0}} \frac{1}{2}\big[\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))\big]\big[\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0) - \boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}'_0))\big] e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}_0 - \boldsymbol{R}'_0)} \end{aligned} \tag{2.9}$$

Le terme à l'ordre 0 du développement de Taylor est l'énergie de configuration $\left(E_{el}^{conf}\right)_0$ de la microstructure non perturbée. Le terme au premier ordre s'annule par des considérations de symétrie, et le terme au second ordre du développement correspond à la variation d'énergie de configuration ΔE_{el}^{conf} induite par la perturbation. L'énergie de configuration de la microstructure perturbée est finalement approchée par l'expression :

$$E_{el}^{conf} \simeq \left(E_{el}^{conf}\right)_0 + \Delta E_{el}^{conf} \tag{2.10}$$

dans laquelle, en introduisant les notations indicielles et la convention usuelle de sommation sur les indices répétés, la variation d'énergie d'interaction s'écrit :

$$\Delta E_{el}^{conf} = \frac{\mathrm{V}}{2} \sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n}) |\theta_0(\boldsymbol{k})|^2 \sum_{\substack{\boldsymbol{R}_0, \boldsymbol{R}'_0 \\ \boldsymbol{R}_0 \neq \boldsymbol{R}'_0}} \left(-\frac{1}{2}\right) k_i k_j (u_i(\boldsymbol{R}_0) - u_i(\boldsymbol{R}'_0))(u_j(\boldsymbol{R}_0) - u_j(\boldsymbol{R}'_0)) e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}(\boldsymbol{R}_0 - \boldsymbol{R}'_0)} \tag{2.11}$$

L'hypothèse d'arrangement des précipités sur un macroréseau cubique simple permet de décomposer le vecteur d'onde $\boldsymbol{k} = \boldsymbol{H} + \boldsymbol{\tau}$, où $\boldsymbol{H}$ est un site du réseau réciproque de composantes $H_i = 2\pi\alpha_i/\mathrm{a}$ avec $\alpha_i \in \mathbb{Z}$, et $\boldsymbol{\tau} \in [-\pi/\mathrm{a}, \pi/\mathrm{a}]^3$ est un vecteur d'onde contenu dans la 1ère zone de Brillouin. La décomposition du vecteur d'onde a pour conséquence la propriété suivante :

$$\sum_{\boldsymbol{R}_0} e^{\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{R}_0} = \sum_{\boldsymbol{R}_0} e^{\mathrm{i}\boldsymbol{\tau}\boldsymbol{R}_0} = \mathrm{N}\delta_{\boldsymbol{\tau}=\boldsymbol{0}} \tag{2.12}$$

avec $\delta_{\boldsymbol{\tau}=\boldsymbol{0}}$ le symbole de Kronecker égal à 1 si $\boldsymbol{\tau} = \boldsymbol{0}$, ou 0 si $\boldsymbol{\tau} \neq \boldsymbol{0}$. Etant donné que les déplacements $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{R}_0)$ sont définis sur les positions discrètes $\boldsymbol{R}_0$ du macroréseau de référence, les transformations de Fourier directe et inverse des composantes des déplacements sont définies par :

$$u_i(\boldsymbol{\tau}) = \frac{1}{N} \sum_{\boldsymbol{R}_0} u_i(\boldsymbol{R}_0) e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{\tau}\boldsymbol{R}_0} \tag{2.13a}$$

$$u_i(\boldsymbol{R}_0) = \sum_{\boldsymbol{\tau}} u_i(\boldsymbol{\tau}) e^{\mathrm{i}\boldsymbol{\tau}\boldsymbol{R}_0} \tag{2.13b}$$

En développant le produit des différences de composantes de déplacements à l'équation (2.11), en simplifiant les expressions grâce à la propriété (2.12) et en substituant aux composantes réelles des déplacements l'expression de leur transformée de Fourier inverse (2.13b), la variation d'énergie de configuration devient :

$$\Delta E_{el}^{conf} = \frac{1}{2} \sum_{\boldsymbol{\tau}} \kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau}) u_i(\boldsymbol{\tau}) u_j^*(\boldsymbol{\tau}) \tag{2.14}$$

où $u_j^*(\boldsymbol{\tau}) = u_j(-\boldsymbol{\tau})$ est le complexe conjugué de $u_j(\boldsymbol{\tau})$, et où $\kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau})$ est un tenseur d'ordre 2 homogène à une courbure de l'énergie élastique de configuration par rapport aux déplacements, défini par $\kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{0}) = 0$ et, pour $\boldsymbol{\tau} \neq \boldsymbol{0}$:

$$\kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau}) = V\mathrm{N}^2 \sum_{\boldsymbol{H}} B\left(\frac{\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}}{\|\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}\|}\right)(\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau})_i(\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau})_j|\theta_0(\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau})|^2 - B\left(\frac{\boldsymbol{H}}{\|\boldsymbol{H}\|}\right)(\boldsymbol{H})_i(\boldsymbol{H})_j|\theta_0(\boldsymbol{H})|^2 \tag{2.15}$$

La variation d'énergie élastique de configuration (2.14), induite par une perturbation statique de la distribution périodique d'inclusions cohérentes, est une forme quadratique des composantes de Fourier des déplacements [49]. Nous cherchons à évaluer le signe de ΔE_{el}^{conf}, afin de déterminer si l'introduction de la perturbation conduit à une augmentation ou une diminution de l'énergie élastique de configuration de la microstructure perturbée, par rapport à la microstructure périodique.

L'arrangement cubique simple de précipités de mêmes taille et forme est stable vis-à-vis de la perturbation statique infinitésimale si la variation d'énergie associée est positive ($\Delta E_{el}^{conf} > 0$), et instable si elle est négative ($\Delta E_{el}^{conf} < 0$). L'expression (2.14) est diagonalisée en utilisant pour chaque vecteur $\boldsymbol{\tau}$ la base des vecteurs propres $\boldsymbol{\Xi}_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbure :

$$\Delta E_{el}^{conf} = \frac{1}{2} \sum_{\boldsymbol{\tau}} \sum_{\alpha=1}^{3} \kappa_\alpha^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau}) \big(\boldsymbol{u}(\boldsymbol{\tau}) \cdot \boldsymbol{\Xi}_\alpha(\boldsymbol{\tau})\big)^2 \tag{2.16}$$

Ainsi, à chaque vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ correspondent trois modes de perturbation statique de l'arrangement cubique simple, induisant des variations d'énergie de signes ceux des valeurs propres. Quel que soit le vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ considéré, le tenseur de courbure défini à l'équation (2.15) est calculé numériquement, puis diagonalisé.

Le calcul numérique du tenseur de courbure à l'équation (2.15) implique de tronquer la somme infinie sur les sites $\boldsymbol{H}$ du réseau réciproque, de sorte que $H_i = 2\pi\alpha_i/\mathrm{a}$ où $\alpha_i \in [\![-n_{RR}, n_{RR}]\!]$. Ainsi, la 1ère zone de Brillouin est répliquée $2n_{RR}$ fois dans chaque direction cubique de l'espace réciproque, de part et d'autre de son origine. Le choix de n_{RR} fixe le plus grand vecteur d'onde considéré dans l'espace réciproque, et par conséquent la plus petite échelle de longueur dans l'espace direct. En fait, la troncature de la somme infinie sur les sites du réseau réciproque entraîne une discrétisation implicite de l'espace direct avec un pas $d = \mathrm{a}/(2n_{RR}+1)$. Le choix du nombre de répliques n_{RR} de la zone de Brillouin dépend du choix de la forme des précipités, afin d'assurer une discrétisation suffisante de leur géométrie et la convergence du calcul. Le calcul de $\kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau})$ requiert aussi d'évaluer le noyau élastique anisotrope $B(\boldsymbol{n})$ dans la direction des vecteurs d'onde $\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}$ et $\boldsymbol{H}$, pour toutes les répliques de la 1ère zone de Brillouin. Par souci d'éfficacité, on utilise l'expression analytique du noyau élastique présentée à l'équation (1.36) du chapitre précédent, et qui correspond à une déformation libre de transformation isotrope et à une anisotropie cubique de l'élasticité.

Il est généralement attendu que les extrema d'une fonction soient localisés aux points de haute symétrie dans la 1ère zone de Brillouin. Ainsi, les valeurs propres du tenseur de courbure sont calculées pour tous les vecteurs d'onde $\boldsymbol{\tau}$ appartenant aux directions de haute symétrie. Ces directions décrivent un chemin spécifique dans la 1ère zone de Brillouin, et sont définies pour le macroréseau cubique simple par les points de haute symétrie :

$$\Gamma(0,\,0,\,0)\;;\quad X(\pi/\mathrm{a},\,0,\,0)\;;\quad M(\pi/\mathrm{a},\,\pi/\mathrm{a},\,0)\;;\quad R(\pi/\mathrm{a},\,\pi/\mathrm{a},\,\pi/\mathrm{a}) \tag{2.17}$$

Afin d'affranchir le résultat du nombre total N de précipités, nous faisons le choix de considérer $\kappa_{ij}(\boldsymbol{\tau}) = \kappa_{ij}^{\mathrm{N}}(\boldsymbol{\tau})/\mathrm{N}$, le tenseur de courbure associé à la maille élémentaire du macroréseau cubique simple, de volume a^3. Chaque segment du chemin parcouru dans la 1ère zone de Brillouin selon les directions de haute symétrie est également discrétisé en 100 vecteurs d'onde $\boldsymbol{\tau}$, afin d'explorer en détail chaque segment.

Dans un premier calcul, nous faisons le choix de considérer une situation analogue à celle de Khachaturyan et Airapetyan [49]. Une fraction volumique de 37 % de phase γ' est choisie dans un premier temps, et correspond au taux de phase pour lequel l'énergie de configuration E_{el}^{conf} d'un arrangement cubique simple de sphères est minimale [49]. Les paramètres considérés dans le calcul de stabilité sont présentés dans le tableau 2.1.

Dénomination	Symbole	Valeur	Unité
frac. volumique en γ'	f_v	$0,37$	-
modules élastiques	C_{11}	250	$10^9\,\mathrm{J.m^{-3}}$
	C_{12}	160	$10^9\,\mathrm{J.m^{-3}}$
	C_{44}	$118,5$	$10^9\,\mathrm{J.m^{-3}}$
param. anisotropie	ξ	$-1,24$	-
eigenstrain	$\varepsilon_0 = \delta a/a$	$0,0048$	-
param. macroréseau	a	350	nm

Tableau 2.1: Mise en données des calculs de stabilité

2.2.1.1 Instabilités d'arrangement induites par les formes

Afin de comparer nos résultats avec ceux publiés par Khachaturyan et Airapetyan, nous considérons dans un premier temps une distribution d'inclusions sphériques. La fonction de forme dans l'espace réciproque d'une inclusion sphérique de rayon R, contenue dans le volume périodique V, est :

$$\theta_0(\boldsymbol{k}) = \frac{4}{3}\frac{\pi \mathrm{R}^3}{V}\left[3\,\frac{k\mathrm{R}\cos(k\mathrm{R}) - \sin(k\mathrm{R})}{(k\mathrm{R})^3}\right] \tag{2.18}$$

avec k la norme de $\boldsymbol{k}$. Nous choisissons $n_{RR} = 500$ afin d'assurer une discrétisation suffisamment fine de la forme sphérique et la convergence du calcul. Le spectre des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbure de l'énergie élastique de configuration est tracé à la figure 2.5 en fonction du vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ suivant les directions de haute symétrie de la 1ère zone de Brillouin du macroréseau cubique simple. Le spectre est constitué de trois branches qui, entre les segments [Γ, X], [M, Γ] et [Γ, R], peuvent être distinguées en une branche longitudinale L ($\boldsymbol{\Xi}_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ parallèle à $\boldsymbol{\tau}$), et deux branches transverses T_1 et T_2 ($\boldsymbol{\Xi}_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ normal à $\boldsymbol{\tau}$).

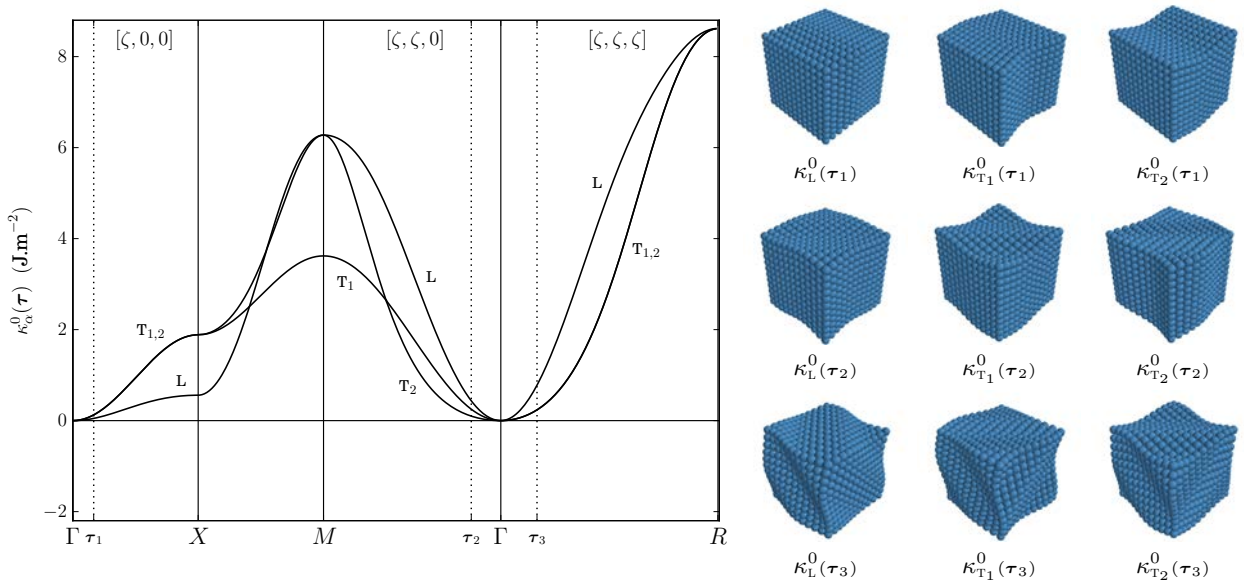


Figure 2.5: Spectre des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbures de l'énergie élastique de configuration par rapport aux composantes de déplacements de précipités sphériques à $f_v = 37\%$, tracé en fonction du vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ selon les directions de haute symétrie de la 1ère zone de Brillouin du macroréseau cubique simple. Les modes de perturbation associés aux vecteurs d'onde $\boldsymbol{\tau}_1$, $\boldsymbol{\tau}_2$ et $\boldsymbol{\tau}_3$, dont les courbures sont données par leurs intersections avec les branches du spectre, sont représentés à sa droite.

Les vecteurs d'onde $\boldsymbol{\tau}_1$, $\boldsymbol{\tau}_2$ et $\boldsymbol{\tau}_3$ indiqués à la figure 2.5 possèdent respectivement une, deux et trois composantes non nulles $\zeta = 2\pi/(n\mathrm{a})$ avec $n = 12$. Ils correspondent ainsi à des arrangements de précipités dont la périodicité dans les directions cubiques est de 1 ou 12 précipités. Ces arrangements sont représentés dans la partie droite de la figure 2.5. Sur le spectre, les valeurs propres du tenseur de courbure sont positives quel que soit le vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$. Par conséquent, tous les modes de perturbation considérés induisent une augmentation de l'énergie élastique de configuration par rapport à la microstructure non-perturbée. Dans les conditions spécifiées au tableau 2.1 et conformément au résultat de Khachaturyan et Airapetyan, l'arrangement cubique simple de précipités sphériques est stable.

En conservant des conditions identiques à celles spécifiées au tableau 2.1, nous considérons maintenant une distribution périodique de précipités cubiques. La fonction de forme dans l'espace réciproque d'une inclusion cubique de côté c, contenue dans le volume périodique V, est :

$$\theta_0(\boldsymbol{k}) = \frac{\mathrm{c}^3}{V} \frac{\sin\big(k_x \mathrm{c}/2\big)}{k_x \mathrm{c}/2} \frac{\sin\big(k_y \mathrm{c}/2\big)}{k_y \mathrm{c}/2} \frac{\sin\big(k_z \mathrm{c}/2\big)}{k_z \mathrm{c}/2} \tag{2.19}$$

avec k_i la $i^{\text{ème}}$ composante de $\boldsymbol{k}$. La discrétisation d'un cube sur un réseau cubique simple de l'espace direct ne requiert pas nécessairement un maillage fin, pourvu que les bords du cube coïncident avec la discrétisation. Nous choisissons $n_{RR} = 50$ et le côté c du cube est calculé de sorte à être un multiple de $d = \mathrm{a}/(2n_{RR}+1)$ assurant une fraction volumique proche de la valeur $f_v = 37\,\%$ recherchée. Le spectre des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbure de l'énergie élastique de configuration d'une distribution périodique d'inclusions cubiques est tracé à la figure 2.6 en fonction du vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ suivant les directions de haute symétrie.

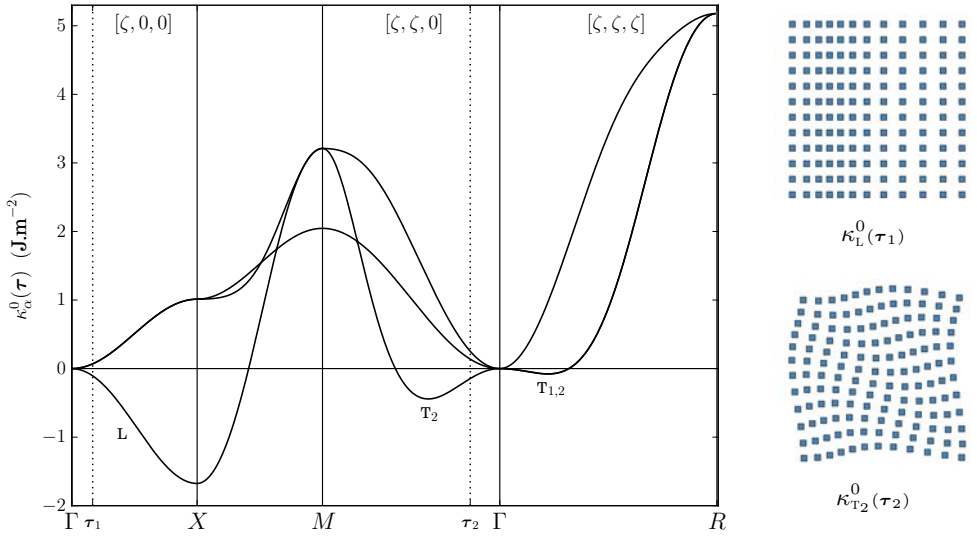


FIGURE 2.6: Spectre des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbures de l'énergie élastique de configuration par rapport aux composantes de déplacements de précipités cubiques à $f_v = 37\%$, tracé en fonction du vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$. Les modes de perturbation représentés à droite sont associés aux vecteurs d'onde $\boldsymbol{\tau}_1$ et $\boldsymbol{\tau}_2$ et possèdent une courbure d'énergie de configuration négative.

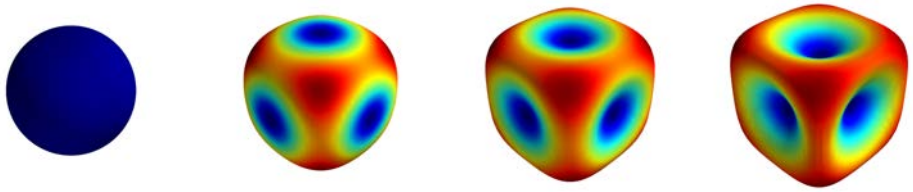
Selon la direction de symétrie [ζ, 0, 0], la branche longitudinale du spectre est négative quel que soit $\boldsymbol{\tau}$. Les branches transverses associées aux vecteurs propres [010] et [001] sont positives. La seconde branche transverse selon [ζ, ζ, 0], associée au vecteur propre dans la direction [1$\bar{1}$0], est négative pour des longueurs d'onde supérieures ou égales à 4 précipités. Les deux branches transverses superposées selon [ζ, ζ, ζ], sont légèrement négatives aux grandes longueurs d'onde. La branche L selon $\boldsymbol{\tau}$ = [ζ, 0, 0] et la branche T$_2$ selon $\boldsymbol{\tau}$ = [ζ, ζ, 0] sont les plus instables, étant donné que leurs courbures plus grandes en valeur absolue diminueront plus rapidement l'énergie élastique de configuration avec le carré de l'amplitude des déplacements. Ces modes de perturbation instables de l'arrangement périodique de précipités cubiques sont illustrés à une longueur d'onde de 12 précipités.

Si l'élasticité anisotrope de la microstructure γ/γ' conduit à l'alignement des précipités cuboïdaux suivant les directions cubiques de la matrice, l'existence de branches négatives sur le spectre de la figure 2.6 révèle que l'arrangement périodique de précipités cubiques est instable.

Les valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ ont été calculées pour tous les vecteurs $\boldsymbol{\tau}$ de la 1ère zone de Brillouin, et celles en $\kappa^0_\mathrm{L}(\boldsymbol{\tau} = X)$ sont les courbures minimales de l'énergie de configuration.

2.2.1.2 Rôle de l'anisotropie élastique

Nous nous intéressons à l'influence de l'anisotropie des constantes élastiques sur la stabilité de la distribution périodique d'inclusions cubiques. Les conditions du calcul de stabilité sont conservées telles qu'au tableau 2.1, à l'exception du module C_{44} qui est pris comme une fonction du paramètre d'anisotropie : $C_{44}(\xi) = (C_{11} - C_{12})/(2 + \xi)$. Le noyau d'interaction $B(\boldsymbol{n})$ est représenté à la figure 2.7 pour différentes valeurs du paramètre d'anisotropie $\xi \in \{0, -0,5, -1, -1,5\}$. Sa forme est parfaitement isotrope pour $\xi = 0$, puis est de plus en plus anisotrope à mesure que ξ décroît. Les valeurs propres des tenseurs de courbure associés aux différents noyaux élastiques de la figure 2.7 sont calculées, et leurs spectres sont superposés à la figure 2.8.



$\xi = 0$ $\xi = -0,5$ $\xi = -1$ $\xi = -1,5$

Figure 2.7: Noyaux élastiques normalisés $B(\boldsymbol{n})$ pour différentes valeurs d'anisotropie ξ.

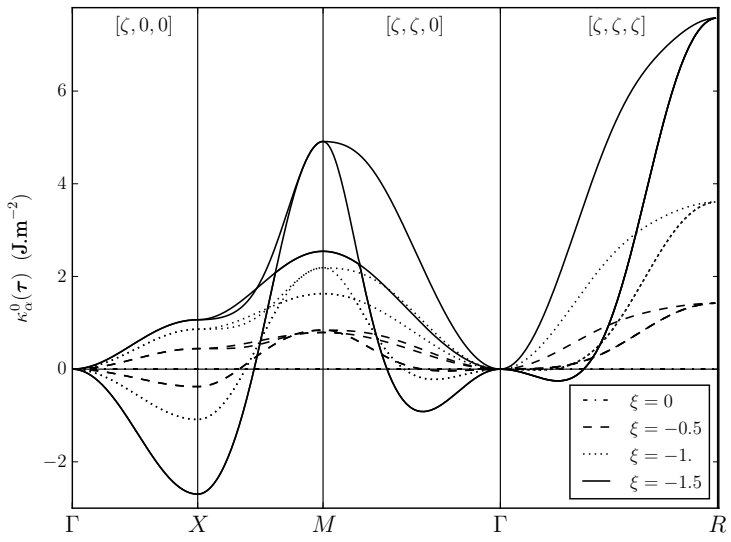


Figure 2.8: Spectre des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$ du tenseur de courbures de l'énergie élastique de configuration pour des précipités cubiques à $f_v = 37\%$, tracé en fonction de $\boldsymbol{\tau}$ pour différentes valeurs d'anisotropie ξ.

En élasticité isotrope $\xi = 0$, les branches du spectre sont confondues avec l'axe $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau}) = 0\,\mathrm{J.m}^{-2}$, ce qui est cohérent avec le théorème de Bitter-Crum. L'énergie élastique totale est indépendante de la forme et de l'arrangement des précipités, et ne dépend que de leur fraction volumique. Une perturbation de l'arrangement cubique simple de précipités cohérents à taux de phase constant n'induit alors aucune variation de l'énergie élastique.

A mesure que le tenseur élastique devient de plus en plus anisotrope (ξ décroît), les branches du spectre évoluent jusqu'à un paysage de stabilité analogue à celui de la figure 2.6. Selon la direction de symétrie $[\zeta, 0, 0]$, les branches transverses et longitudinales sont respectivement stables et instables à toutes les longueurs d'onde. La croissance des branches transverses se ralentit progressivement lors de la décroissance de l'anisotropie entre 0 et $-1,5$, alors que la décroissance des branches longitudinales est amplifiée. Dans la direction $[\zeta, \zeta, 0]$, la croissance de la branche T_1 semble linéaire avec la décroissance de ξ, tandis que celle de la branche L est amplifiée. L'amplitude des variations de la branche T_2 augmente avec la diminution de ξ, mais le sens de ses variations est à considérer par rapport à la branche L : $\kappa^0_{T_2}(\boldsymbol{\tau})$ et $\kappa^0_{L}(\boldsymbol{\tau})$ divergent aux grandes longueurs d'onde proches de Γ, mais convergent aux petites longueurs d'onde et sont confondues en M. Les branches L et T_2 divergent plus vite au grandes longueurs d'onde qu'elles ne convergent aux petites à mesure que ξ décroît. En conséquence, l'intervalle de longueurs d'onde instables du mode porté par la branche T_2 augmente quand ξ diminue. Dans la direction de symétrie $[\zeta, \zeta, \zeta]$, on observe une croissance progressive du domaine d'instabilité des branches transverses, à mesure que l'anisotropie augmente (ξ décroît).

L'anisotropie de l'élasticité de la microstructure γ/γ' est à la fois responsable de la formation des alignements de précipités, par l'intermédiaire des modes stables portés par les branches positives, mais aussi de leur destruction par les modes instables portés par les branches négatives. La branche L selon $[\zeta, 0, 0]$ est instable dès la plus faible anisotropie considérée ($\xi = -0.5$). Plus l'anisotropie est forte, plus les courbures de modes formant et détruisant les alignements sont grandes en valeur absolue. Les conséquences de la compétition entre les modes stables et instables sur la formation et la destruction des alignements ainsi que sur l'évolution de la microstructure ne peuvent cependant pas être prédites uniquement sur la base de l'analyse de stabilité.

2.2.2 Développement des instabilités et formation de défauts

L'analyse de stabilité de l'arrangement cubique simple d'inclusions cohérentes a révélé son instabilité vis-à-vis de certains modes de perturbation, lorsque la microstructure est constituée de précipités cubiques en interaction élastique anisotrope. Cependant, cette analyse est limitée à des petits déplacements et des formes de précipités qui n'évoluent pas. En effet, elle repose seulement sur l'énergie élastique d'une microstructure et non sur une équation cinétique. Par conséquence, cette analyse ne donne pas d'information sur la cinétique d'évolution d'une microstructure perturbée selon un mode stable ou instable. Afin d'enrichir l'analyse, nous modélisons l'évolution de microstructures perturbées selon les deux principales instabilités identifiées précédemment, dans un régime de coalescence au cours d'un traitement isotherme à $T = 950\,°\mathrm{C}$. La modélisation champ de phase permet de lever l'hypothèse des petits déplacements, et autorise le changement de forme des précipités en introduisant l'énergie d'interface. Cette dernière est supposée isotrope en accord avec la forme sphérique des petits précipités, observés dans les superalliages.

Nous considérons une microstructure décrite par un unique champ $c(\boldsymbol{r})$ conservé, qui porte simultanément les densités d'énergie chimique et élastique. L'énergie élastique est liée à la concentration par l'intermédiaire de $\Delta c(\boldsymbol{r}) = c(\boldsymbol{r}) - \bar{c}$. Les interfaces entre précipités et matrice sont diffuses et les relations d'antiphase entre précipités γ' ne sont pas décrites dans ce modèle, ce qui restreint la validité des calculs à l'instant précédant la rencontre entre deux précipités.

Dans les microstructures cohérentes, nous avons vu que l'élasticité modifie la forme et l'arrangement des précipités. Elle a également une influence sur les concentrations des phases en coexistence. Pour contrôler les concentrations de l'équilibre cohérent, nous utilisons l'approche proposée par [15]. Cette approche consiste à exprimer le potentiel comme un double-puits classique $f\big(c(\boldsymbol{r})\big)$, de minima c^0_γ et $c^0_{\gamma'}$ les concentrations d'équilibre incohérent et de courbures identiques, auquel est retranchée la contribution élastique en $B_{\min}$ de la configuration en plaquettes :

$$f_{\text{dec}}\big(c(\boldsymbol{r})\big) = f\big(c(\boldsymbol{r})\big) - \frac{1}{2}B_{\min}\big(c(\boldsymbol{r}) - \bar{c}\big)^2 \tag{2.20}$$

avec, $f\big(c(\boldsymbol{r})\big)$ la fonction décrite au chapitre précédent :

$$\frac{f\big(c(\boldsymbol{r})\big)}{A} = -2\big(c(\boldsymbol{r}) - c_{\text{m}}\big)^2 + \frac{4\big(c(\boldsymbol{r}) - c_{\text{m}}\big)^4}{\big(c^0_{\gamma'} - c^0_\gamma\big)^2} \tag{2.21}$$

où $\bar{c}$ la concentration moyenne dans l'alliage et $c_{\text{m}} = (c^0_\gamma + c^0_{\gamma'})/2$. Le décalage en $B_{\min}$ appliqué au terme de Landau a deux effets : à une valeur de $\bar{c}$ donnée, il entraîne une inclinaison du double-puits qui stabilise la phase minoritaire, et il décale les minima du potentiel aux concentrations de l'équilibre cohérent de la microstructure en plaquettes.

Les paramètres physiques introduits dans les simulations sont répertoriés dans le tableau 2.2. Plusieurs différences sont à remarquer entre les systèmes considérés aux tableaux 2.1 et 2.2. Les constantes élastiques sont différentes, et l'anisotropie considérée en champ de phase est plus forte que dans l'analyse de stabilité. La déformation libre introduite dans le modèle est définie selon la loi de Vegard, et correspond à la valeur d'eigenstrain du tableau 2.1 sur la différence des concentrations d'équilibre incohérent. Enfin, le coefficient de diffusion introduit dans les simulations $D = D_0 \exp(-\Delta U/k_b T)$ est tel que $D_0 = 1,45\,10^{-4}\,\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ et $\Delta U = 2,8\,\text{eV}$ [39].

Dénomination	Symbole	Valeur	Unité
conc. eq. incohérent en γ	c^0_γ	$0,15$	-
conc. eq. incohérent en γ'	$c^0_{\gamma'}$	$0,231$	-
frac. volumique en γ'	f_v	$0,37$	-
énergie d'interface	σ_{int}	10	mJ.m^{-2}
modules élastiques	C_{11}	197	$10^9\,\text{J.m}^{-3}$
	C_{12}	144	$10^9\,\text{J.m}^{-3}$
	C_{44}	90	$10^9\,\text{J.m}^{-3}$
param. anisotropie	ξ	$-1,41$	-
eigenstrain (Vegard)	$\varepsilon_0 = \delta a/(a\delta c)$	$0,059$	-
ratio échelles d'énergie	χ	$0,79$	-
pas de grille	d	$3,6$	nm
param. macroréseau	a	461	nm

Tableau 2.2: Mise en données des calculs de champ de phase.

2.2.2.1 Mode longitudinal instable selon [ζ, 0, 0]

Considérons une microstructure cubique simple de $8 \times 1 \times 1$ précipités cubiques, contenue dans un volume périodique de $3,7 \times 0,5 \times 0,5\,\mu m^3$ discrétisé sur un réseau cubique simple de $1024 \times 128 \times 128$ voxels. Le mode de perturbation longitudinal instable selon [ζ, 0, 0] est introduit à l'instant initial avec une longueur d'onde de 8 précipités et une amplitude de $28,8\,nm$, de manière à ce que les déplacements initiaux des précipités soient des multiples du pas de grille. L'évolution de la microstructure perturbée au cours d'un recuit isotherme est présentée à la figure 2.9, à trois instants de la simulation.

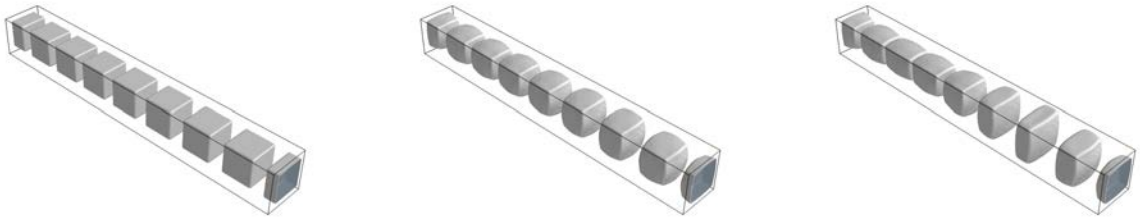
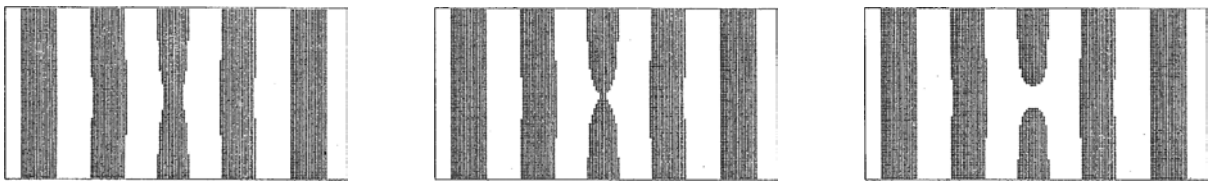


FIGURE 2.9: Modélisation de l'évolution d'une microstructure périodique perturbée selon l'instabilité longitudinale selon [ζ, 0, 0] avec une longeur d'onde de 8 précipités, aux instants $t = 0$, 0.15, 0.30 h.

A $t = 0\,h$, le mode longitudinal entraîne une légère modulation de l'espacement entre précipités et par conséquent de la taille des couloirs de matrice. L'instabilité se développe au cours de la simulation, et son expression est essentiellement marquée par la dynamique des morphologies. Les barycentres des précipités restent figés à leur position initiale, mais leur forme évolue fortement et amplifie les variations initiales de tailles de couloirs. Le sens de l'allongement des précipités dépend du ventre du mode dans lequel ils se trouvent. Il en résulte que les précipités initialement proche s'allongent dans la direction longitudinale et ainsi se rapprochent encore pour former un barreau composite. A l'opposé, les précipités initialement éloignés s'allongent dans les deux directions transverses. Avec les conditions aux limites périodiques, la structure se rapproche localement de plaquettes.

Cette instabilité longitudinale de l'arrangement des précipités γ' ressemble à une instabilité de type Eckhaus en *pattern formation* ou phénoménologie des structures hors-équilibre. L'instabilité d'Eckhaus est une instabilité de phase, généralement à grande longueur d'onde, et le plus souvent observée dans des structures périodiques lamellaires. Dans les rouleaux de convection de Rayleigh-Bénard et en solidification directionnelle eutectique, l'instabilité d'Eckhaus est à l'origine de la formation de défauts de périodicité (figure 2.10), et entraîne la restabilisation de la structure lamellaire à plus grande longueur d'onde par la migration [29] et l'annihilation [69] des défauts.



Instabilité d'Eckhaus locale | Pincement | Création d'une paire de défauts

FIGURE 2.10: Modélisation de la création d'une paire de défauts dans un système lamellaire 2D par un mécanisme de croissance d'une instabilité d'Eckhaus locale [82].

Par analogie avec d'autres systèmes dans lesquels les mêmes défauts de périodicité sont observés, le développement de l'instabilité longitudinale selon $[\zeta, 0, 0]$ est le mécanisme susceptible d'entraîner la formation spontanée des branches et des terminaisons identifiées à la figure 2.1 dans l'arrangement des précipités γ'.

2.2.2.2 Mode transverse instable selon $[\zeta, \zeta, 0]$

Considérons une microstructure cubique simple de $4 \times 4 \times 1$ précipités cubiques, contenue dans un volume périodique de $1.8 \times 1.8 \times 0.5\,\mu\text{m}^3$ discrétisé sur un réseau cubique simple de $512 \times 512 \times 128$ voxels. Le mode de perturbation transverse instable selon $[\zeta, \zeta, 0]$ est introduit dans l'arrangement à l'instant initial avec $\zeta = 2\pi/4\text{a}$ et une amplitude initiale de 36 nm. L'évolution de la microstructure perturbée au cours d'un recuit isotherme est présenté à la figure 2.11, à trois instants de la simulation.

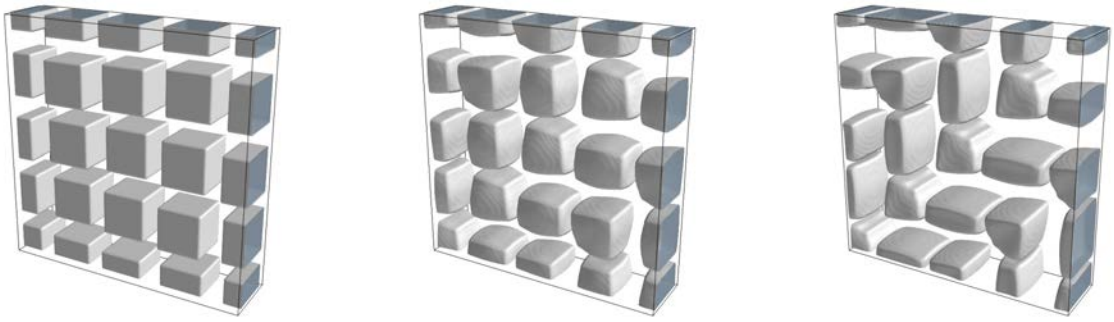


Figure 2.11: Modélisation de l'évolution d'une microstructure périodique perturbée selon l'instabilité transverse selon $[\zeta, \zeta, 0]$, aux instants $t = 0$, 0.16, 0.32 h.

A l'instant initial, les modulations de l'espacement et de la taille de couloirs sont dans le plan (001) de la simulation. De même que pour le mode longitudinal selon $[\zeta, 0, 0]$, l'expression de cette instabilité est marquée par l'évolution de la forme des précipités, dont les barycentres restent également statiques. Le changement de forme des précipités entraîne la formation progressive de structures coudées, dont les bras comptent chacun 3 précipités. Le développement de cette instabilité transverse selon $[\zeta, \zeta, 0]$ conduit à la formation de motifs en chevrons similaires à ceux identifiés à la figure 2.2 dans la microstructure γ/γ'.

2.3 Contributions stabilisantes de l'arrangement périodique

Dans la section précédente, l'analyse de stabilité statique de l'arrangement cubique simple de précipités cubiques a révélé son instabilité vis-à-vis de modes de perturbations longitudinaux selon $[\zeta, 0, 0]$ et transverses selon $[\zeta, \zeta, 0]$. Dans des microstructures perturbées, la modélisation champ de phase a permis de lier le développement des instabilités à la formation des défauts de périodicité identifiés expérimentalement et numériquement en introduction de ce chapitre. Dans cette section, nous nous intéressons aux influences de la fraction volumique et de l'inhomogénéité du module C' sur la stabilité de la distribution périodique de précipités cubiques.

2.3.1 Fraction volumique de phase γ'

2.3.1.1 Paysages de stabilité des branches L et T_2

Nous réalisons une analyse de stabilité par le calcul et la diagonalisation du tenseur de courbure de l'énergie élastique de configuration, dans des conditions identiques à celles répertoriées au tableau 2.1, et dans le cas de précipités cubiques. Les spectres des valeurs propres $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau}, f_v)$ sont calculés pour des fractions volumiques f_v allant de 0 % à 95 % par incréments de 5 %. Les paysages de stabilité sont déduits de ces spectres en interpolant les branches entre chaque fraction volumique considérée. Nous examinons uniquement les branches longitudinales L et transverses T_2 des spectres, étant donné que ce sont celles qui, selon [ζ, 0, 0] et [ζ, ζ, 0] respectivement, portent les deux principales instabilités de l'arrangement cubique simple. Les paysages de stabilité des branches L et T_2 en fonction du vecteur d'onde $\boldsymbol{\tau}$ et de la fraction volumique f_v sont respectivement présentés dans les parties supérieure et inférieure de la figure 2.12.

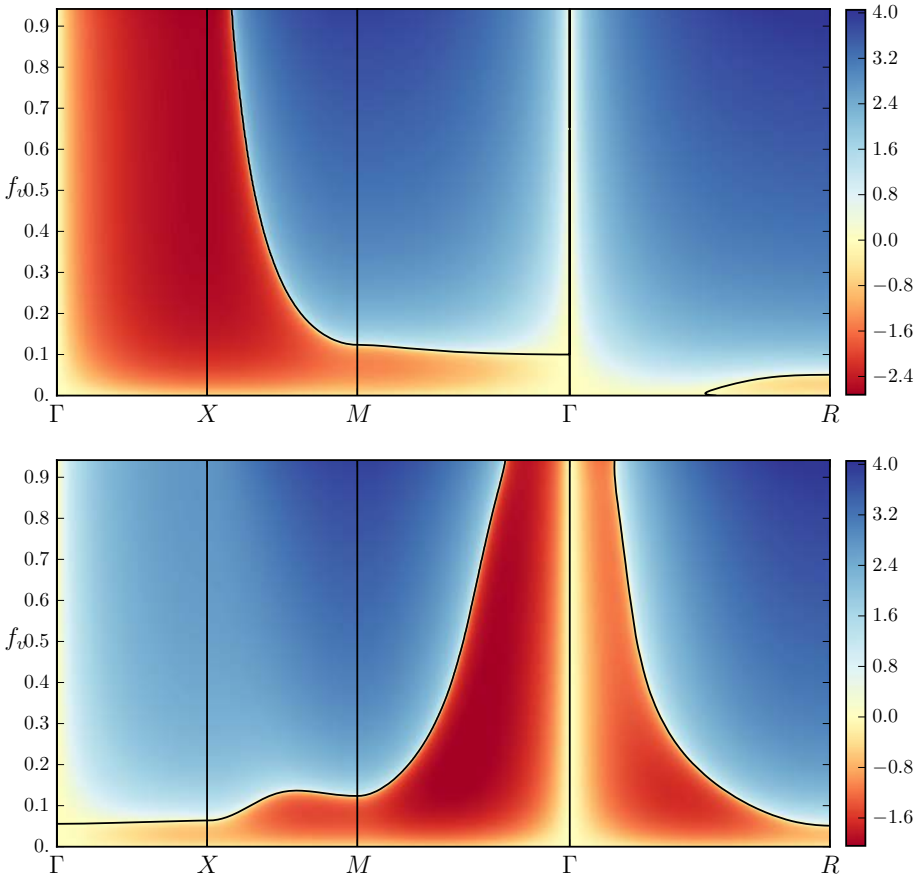


FIGURE 2.12: Paysages de stabilité $\operatorname{sgn}\big(\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau}, f_v)\big) \log_{10}\big(1 + |\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau}, f_v)/c|\big)$ des branches L (haut) et T_2 (bas) d'une distribution cubique simple de précipités cubiques, en fonction de f_v et de $\boldsymbol{\tau}$, pour une anisotropie $\xi = -1,24$. Les courbures sont représentées avec une échelle logarithmique bisymétrique [102], dans laquelle la linéarisation autour de 0 est décrite par $c = 1/250$. La ligne continue correspond à une courbure $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau}, f_v) = 0\,\mathrm{J.m^{-2}}$ et repère la limite entre les domaines de stabilité et d'instabilité.

Selon la direction [ζ, 0, 0] du paysage de stabilité des branches L, les courbures de l'énergie élastique de configuration sont négatives à toutes les longueurs d'onde et quelle que soit la fraction volumique.

Toutes les longueurs d'onde du mode L selon [ζ, ζ, 0], instables à faible taux de phase, sont stabilisées entre $f_v = 10\%$ et $f_v = 13\%$. Selon [ζ, ζ, ζ], les petites longueurs d'onde légèrement instables sont stabilisées à $f_v = 5\%$. Toutes les longueurs d'onde des branches T_2 sont instables à faible fraction volumique dans toutes les directions de symétrie, et celles selon [ζ, 0, 0] sont stabilisées à $f_v = 5\%$. Selon la direction [ζ, ζ, 0], le mode T_2 instable à une longueur d'onde telle que $\zeta = \pi/a$ au point de symétrie M est stabilisé à une fraction $f_v = 12\%$. A mesure que f_v augmente, le domaine de stabilité dans cette direction de symétrie s'étend et inclut des longueurs d'onde de plus en plus grandes, jusqu'à contenir le mode de longueur d'onde telle que $\zeta = 2\pi/6a$ à $f_v = 95\%$ et à ne laisser instables que les longueurs d'onde supérieures. Les branches T_2 selon [ζ, ζ, ζ] évoluent avec la fraction volumique de manière analogue à celles selon la direction de symétrie [ζ, ζ, 0] : le mode instable au point de symétrie R est stabilisé à $f_v = 5\%$, puis des longueurs d'onde de plus en plus grandes se stabilisent à mesure que f_v croît.

En considérant le lien entre l'évolution des modes instables et la formation des défauts d'arrangement mis en évidence par la modélisation champ de phase, l'instabilité du mode longitudinal selon [ζ, 0, 0] à toutes les longueurs d'onde et fractions volumiques suggère que les défauts de périodicité issus de son développement sont susceptibles d'être formés spontanément quel que soit le taux de phase. La stabilisation des petites longueurs d'onde du mode transverse instable selon [ζ, ζ, 0] avec f_v suggère que les structures coudées dans l'arrangement des précipités sont davantage susceptibles d'être formées spontanément à faible fraction volumique de phase γ'. Cette stabilisation des petites longueurs d'onde avec le taux de phase est probablement l'une des raisons pour lesquelles les motifs en chevrons ne sont pas observés expérimentalement et numériquement dans des microstructure γ/γ' à forte fraction volumique.

Afin de mieux comprendre les raisons pour lesquelles une augmentation de f_v diminue l'intervalle de longueurs d'onde instables du mode transverse selon [ζ, ζ, 0] mais n'affecte pas celui de l'instabilité longitudinale selon [ζ, 0, 0], nous nous intéressons maintenant aux variations spatiales de l'énergie élastique d'interaction ou de configuration et de leur évolution avec le taux de phase.

2.3.1.2 Ecrantage des interactions élastiques

Considérons une microstructure constituée de deux inclusions cohérentes p et q, respectivement décrites par $\theta_p(\boldsymbol{r})$ et $\theta_q(\boldsymbol{r})$. La fonction de forme de cette microstructure est définie par :

$$\theta(\boldsymbol{r}) = \theta_p(\boldsymbol{r}) + \theta_q(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R}) \tag{2.22}$$

dans laquelle l'inclusion q est translaté d'un vecteur $\boldsymbol{R}$ par rapport à l'inclusion p. Nous réalisons sur cette microstructure un calcul statique d'énergie élastique d'interaction entre $\theta_p(\boldsymbol{r})$ et $\theta_q(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R})$. A la différence des analyses statiques conduites précédemment dans ce chapitre, nous considérons un espace direct discret. De manière identique à Rodney *et al* dans [78], la discrétisation des fonctions de forme $\theta_p(\boldsymbol{r})$ et $\theta_q(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{R})$ sur un réseau cubique simple de l'espace direct conduit à leur définition suivante :

$$\theta_i(\boldsymbol{r}) = \sum_{\boldsymbol{n}} \theta_i^d(\boldsymbol{n}) S\big(\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}(\boldsymbol{n})\big) \;\Rightarrow\; \theta_i(\boldsymbol{k}) = \theta_i^d(\boldsymbol{k}) S(\boldsymbol{k}) \tag{2.23}$$

où la somme sur $\boldsymbol{n}$ parcourt les positions entières des voxels, et où $S(\boldsymbol{r})$ et $S(\boldsymbol{k})$ sont les fonctions de formes des voxels de la discrétisation cubique simple, respectivement exprimées dans les espaces direct et réciproque.

La fonction de forme de la microstructure décrite à l'équation (2.22) exprimée dans l'espace réciproque est simplement :

$$\theta(\boldsymbol{k}) = \theta_p^d(\boldsymbol{k})S(\boldsymbol{k}) + \theta_q^d(\boldsymbol{k})S(\boldsymbol{k})e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{R}} \tag{2.24}$$

Le produit $\theta(\boldsymbol{k})\theta^*(\boldsymbol{k})$ dans le calcul de l'énergie élastique totale conduit à des termes croisés $\theta_p^d(\boldsymbol{k})\theta_q^{d*}(\boldsymbol{k})$ qui correspondent à l'énergie d'interaction entre p et q. En ne considérant que ces termes croisés, l'énergie élastique de configuration $E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R})$ du précipité q localisé en $\boldsymbol{R}$ en interaction avec p est ainsi défini par l'expression :

$$E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R}) = \frac{V}{2}\sum_{\boldsymbol{k}} B(\boldsymbol{n})S(\boldsymbol{k})S^*(\boldsymbol{k})\left[e^{+\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{R}} + e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{R}}\right]\theta_p^d(\boldsymbol{k})\theta_q^{d*}(\boldsymbol{k}) \tag{2.25}$$

De manière analogue à l'analyse de stabilité de la distribution périodique, le vecteur d'onde est décomposé en la somme $\boldsymbol{k} = \boldsymbol{H} + \boldsymbol{\tau}$, avec $\boldsymbol{H}$ un site du réseau réciproque tel que ses composantes $H_i = 2\pi\alpha_i/d$ et $\alpha_i \in \mathbb{Z}$, et où $\boldsymbol{\tau} \in \,]-\pi/d\,;\,\pi/d]^3$ un vecteur d'onde de la 1ère zone de Brillouin de la discrétisation cubique simple. Les transformées de Fourier des fonctions de forme discrètes sont périodiques sur les répliques de la 1ère zone de Brillouin, et l'énergie d'interaction définie à l'équation (2.25) devient :

$$E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R}) = V\sum_{\boldsymbol{\tau}} B^{\mathrm{dec}}(\boldsymbol{\tau})\cos(\boldsymbol{\tau}\boldsymbol{R})\theta_p^d(\boldsymbol{\tau})\theta_q^{d*}(\boldsymbol{\tau}) \tag{2.26}$$

avec,

$$B^{\mathrm{dec}}(\boldsymbol{\tau}) = \sum_{\boldsymbol{H}} B\left(\frac{\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}}{\|\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}\|}\right)S(\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau})S^*(\boldsymbol{H}+\boldsymbol{\tau}) \tag{2.27}$$

le noyau élastique d'interaction entre p et q, décoré par les fonctions de forme des voxels de la discrétisation cubique simple [78]. Le calcul du noyau élastique décoré $B^{\mathrm{dec}}(\boldsymbol{\tau})$ nécessite de tronquer la somme infinie sur les sites du réseau réciproque à l'équation (2.27), et le nombre n_{RR} de répliques de la 1ère zone de Brillouin considéré est un compromis entre le temps et la convergence du calcul. La forme q est translatée et son énergie d'interaction avec p est évaluée en chaque voxel $\boldsymbol{R}$ du système discrétisé, à l'exception des sites pour lesquels il y a recouvrement des deux formes. La zone de superposition est ainsi exclue du calcul en y imposant $E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R}) = 0$.

Dans les calculs 2D suivants, les inclusions translatés p et q sont choisis identiques, et le système est analogue à celui décrit au tableau 2.1. Les cartes d'énergie d'interaction d'inclusions sphérique et cubique sont présentées à la figure 2.13. Pour les deux formes considérées, les interactions élastiques favorisent l'alignement selon la direction [100] et la direction d'alignement la plus défavorable est la direction [110]. Malgré les différences d'amplitude de leurs variations, les cartes d'énergie d'interaction des deux formes discrètes sont comparables, soulevant ainsi la question du mode longitudinal selon $[\zeta, 0, 0]$, qui à $f_v = 37\%$ est stable pour les sphères et instables pour les cubes.

Afin de mieux comprendre la différence de stabilité entre un réseau de sphères et de cubes, nous décrivons l'arrangement non pas comme un ensemble de précipités en interactions, mais nous regroupons les précipités en rangées infinies et nous analysons l'interaction de ces rangées de précipités. Les équations (2.26) et (2.27) obtenues dans un cadre général restent valables si $\theta_p(\boldsymbol{r})$ et $\theta_q(\boldsymbol{r})$ décrivent des rangées de précipités. L'énergie d'interaction entre deux rangées infinies d'inclusions cubiques est représentée à la figure 2.14, pour différentes tailles de précipités. A mesure que le taux de phase augmente avec le côté c des précipités, l'amplitude des variations de l'énergie d'interaction est de plus en plus faible.

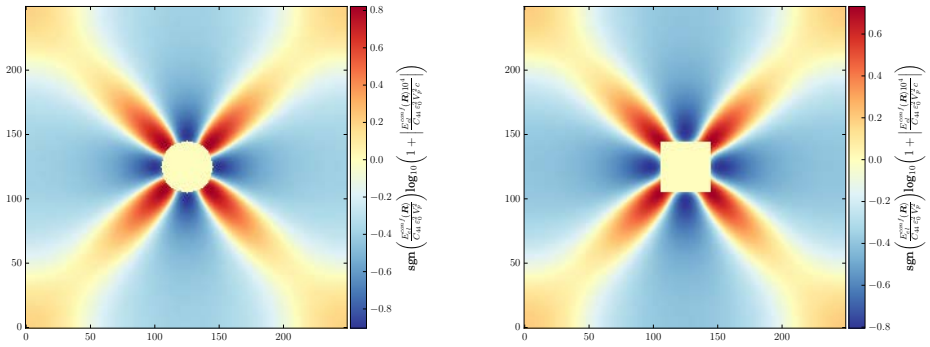


Figure 2.13: Cartes des variations spatiales de l'énergie élastique de configuration d'inclusions sphérique de rayon $10d$ et cubique de côté $20d$ à 2D. L'énergie d'interaction est représentée avec une échelle logarithmique bisymétrique, dont la linéarisation autour de 0 est décrite par $c = 1$.

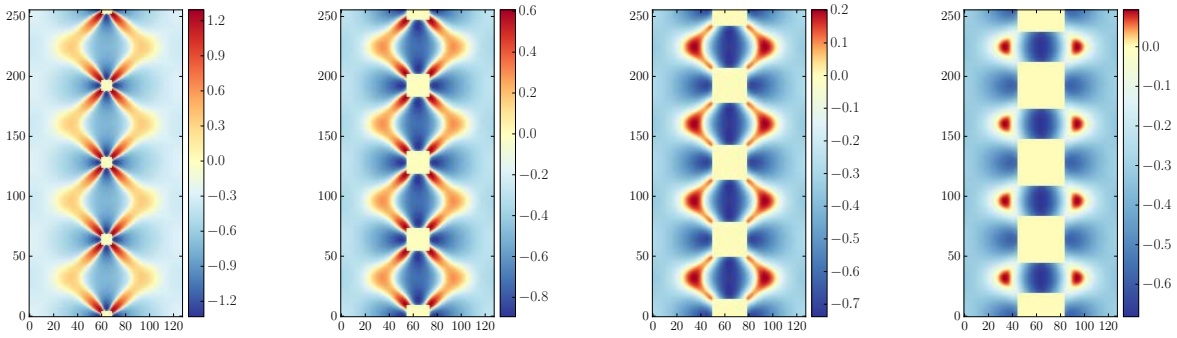


Figure 2.14: Cartes de $\mathrm{sgn}\big(E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R})\big)\log_{10}\big(1 + |E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R})|\big)$ avec $E_{el}^{conf}(\boldsymbol{R})$ l'énergie élastique de configuration en unité $10^{-4}C_{44}\varepsilon_0^2V_p^2$ d'arrangements 1D-périodiques de précipités cubiques. De gauche à droite, les précipités sont de côtés $c = 5d$, $c = 10d$, $c = 15d$ et $c = 20d$.

Les cartes d'énergie de configuration des rangées d'inclusions sont très différentes de celle obtenue pour l'inclusion cubique isolée à la figure 2.13. Elles mettent en évidence l'écrantage progressif des interactions élastiques par un effet de voisinage à mesure que le taux de phase augmente : les champs anisotropes que génère une inclusion et ceux que génèrent les inclusions voisines se compensent partiellement.

Considérons à présent l'énergie de configuration de rangées périodiques de précipités sphériques et cubiques discrétisées sur un réseau cubique simple de 800×162 pixels à la figure 2.15. Nous mesurons l'évolution de l'énergie de configuration des rangées de précipités avec le taux de phase le long des profils indiqués sur la figure 2.15. Pour une même taille d'inclusion, la diminution de la taille de boîte l_y rapproche les précipités et augmente la fraction de la rangée périodique. Les profils d'énergie tracés à la figure 2.16 correspondent à des rangées de sphères et de cubes dont les espacement inter-précipités sont respectivement associés à $l_y = 162d$, $l_y = 62d$ et $l_y = 42d$. Le point rouge repère sur chaque profil la distance de séparation correspondant à un réseau carré 2D de précipités.

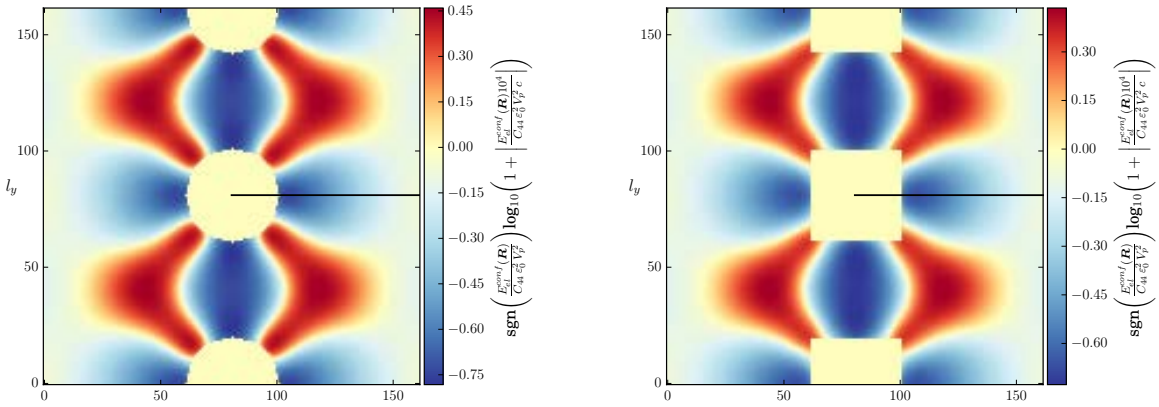


FIGURE 2.15: Cartes des variations spatiales de l'énergie élastique de configuration de rangées périodiques d'inclusions sphériques de rayon $10d$ et cubiques de côté $20d$ à 2D.

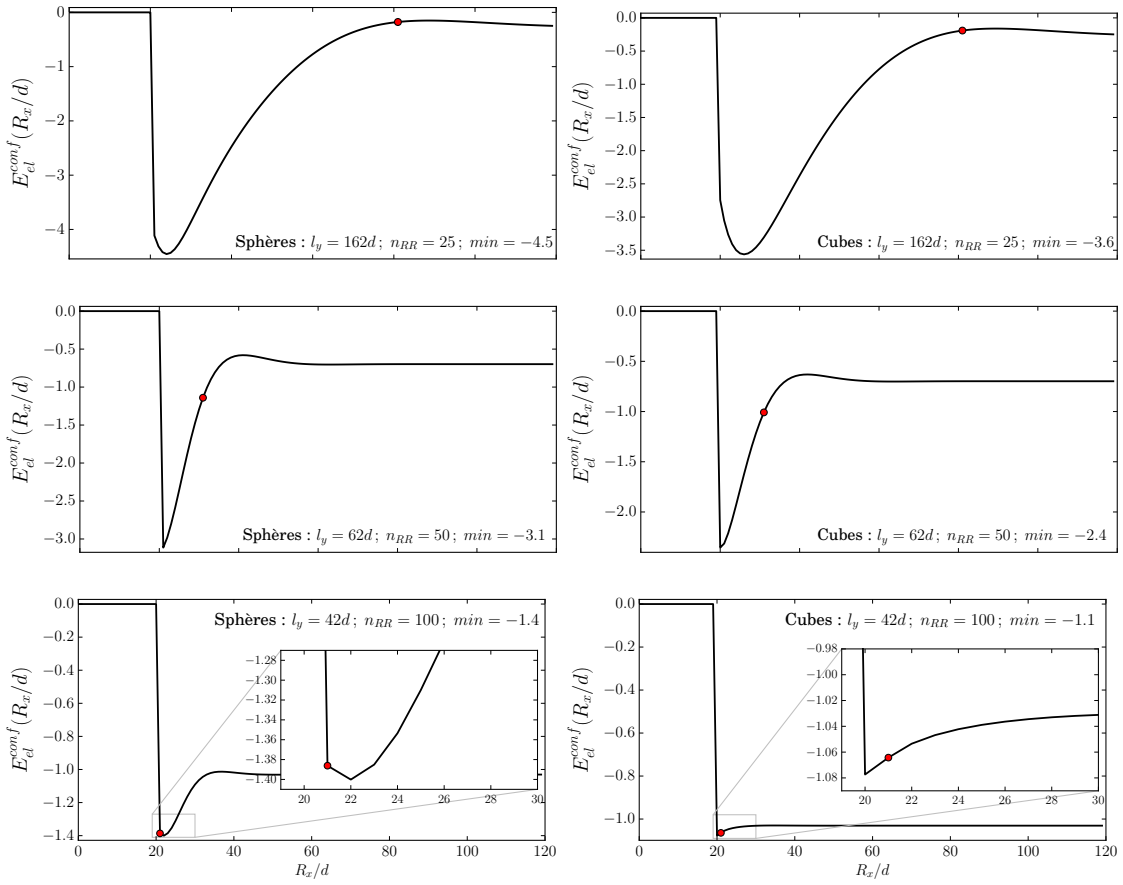


FIGURE 2.16: Profils selon [100] d'énergie d'interaction en unité $10^{-4}C_{44}\varepsilon_0^2V_p^2$ de rangées périodiques de précipités sphériques et cubiques, pour $l_y = 162d$ (haut), $l_y = 62d$ (milieu) et $l_y = 42d$ (bas).

Quelle que soit la forme considérée, l'amplitude du profil d'énergie d'interaction décroît à mesure que l_y diminue, ce qui témoigne de l'écrantage progressif des interactions élastiques avec le rapprochement des précipités. Pour $l_y = 162d$ et $l_y = 62d$, les précipités voisins sont centrés dans des régions concaves du profil d'énergie d'interaction. Une perturbation de la position des voisins conduit alors nécessairement à une diminution de l'énergie de configuration (entre rangées 1$^{\text{ères}}$ voisines), qui traduit l'instabilité de l'arrangement cubique simple vis-à-vis du mode longitudinal selon $[\zeta, 0, 0]$, indépendamment de la forme.

Pour $l_y = 42d$, la position voisine de la rangée de précipités dans le macroréseau cubique (point rouge sur la figure 2.16) est située dans une région convexe du profil d'interaction pour les inclusions sphériques, et dans une région concave pour les inclusions cubiques. Une perturbation de la position du voisin conduit à une augmentation de l'énergie d'interaction avec la rangée de sphères, signe de stabilité du macroréseau vis-à-vis du mode L selon $[\zeta, 0, 0]$, et à une diminution de l'énergie de configuration avec la rangée de cube, signe d'instabilité vis-à-vis du même mode. A fort taux de phase, l'étude des profils d'énergie d'interaction donne une explication simple de la stabilité de l'arrangement périodique de sphère, et de l'instabilité de l'arrangement périodique de cubes, vis-à-vis du mode longitudinal selon $[\zeta, 0, 0]$.

2.3.2 Inhomogénéité du module C'

Etant donné que l'inhomogénéité du module de cisaillement C' influence fortement la microstructure γ/γ' [26, 45, 81, 110], nous étudions ses effets sur la stabilité de l'arrangement périodique de précipités cohérents. Cette inhomogénéité est décrite par le paramètre $\Delta C' = (C'_{\gamma'} - C'_{\gamma})/C'_{\gamma}$, et nous considérons $\Delta C' = 50\,\%$ dans les conditions spécifiées au tableau 2.3.

Phase	C_{11}	C_{12}	C_{44}
γ	197	144	90
γ'	193	113	132

Tableau 2.3: Modules élastiques des phases en $10^9\,\text{J.m}^{-3}$ pour lesquels $\Delta C' = 50\,\%$

2.3.2.1 Courbures de l'énergie élastique de configuration

Nous conduisons une analyse de stabilité en élasticité inhomogène sur les modes propres de l'élasticité homogène. L'expression du tenseur de courbure à l'équation (2.15) repose sur l'hypothèse d'une élasticité homogène, et les courbures d'énergie pour $\Delta C' = 50\,\%$ sont par conséquent déterminées numériquement. Considérons pour chaque mode trois configurations de la distribution périodique de précipités cubiques : la première est la microstructure non-perturbée ; et les suivantes correspondent à la même microstructure, perturbée suivant le mode considéré avec deux amplitudes différentes du déplacement des barycentres. L'énergie élastique de ces trois configurations est obtenue après résolution numérique de l'équilibre mécanique en élasticité inhomogène. Etant donné que ces trois microstructures partagent la même énergie *self*, les variations d'énergie d'interaction ΔE_{el}^{conf} des configurations perturbées sont obtenues en retranchant à leur énergie élastique celle de la microstructure non-perturbée. La courbure associée de la variation d'énergie de configuration en fonction de l'amplitude des déplacements est simplement déduite par l'ajustement d'une parabole.

Un point important est d'utiliser dans la configuration initiale des ampitudes particulières, de manière à ce que la discrétisation soit la même pour chacun des précipités. Le déplacement des barycentres des microstructures discrétisées dans l'espace direct est imposé au moyen d'une fonction cosinus. Cette définition réelle des déplacements traduit en réalité l'introduction de deux modes de perturbations, de vecteurs d'onde respectifs $\boldsymbol{\tau}$ et $-\boldsymbol{\tau}$, dont les parties imaginaires s'annulent. La courbure d'énergie calculée numériquement correspond alors par symétrie à deux fois la courbure $\kappa^0_\alpha(\boldsymbol{\tau})$. Nous calculons numériquement les courbures d'énergie de configuration, en élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$, des modes de perturbations longitudinaux et transverses de longueurs d'onde telles que $\zeta = 2\pi/n\mathrm{a}$; avec, $n \in \{2, 3, 4, 6, 8, 12, 16\}$ selon $[\zeta, 0, 0]$ et $n \in \{2, 3, 4, 6\}$ selon $[\zeta, \zeta, 0]$, à 37 %, 50 % et 60 % de taux de phase γ'. Les configurations sont discrétisées en accord avec le choix du nombre de répliques de la 1ère zone de Brillouin $n_{RR} = 50$. Les spectres à 37 % et 60 % de fraction volumique sont présentés à la figure 2.17, et sur lesquels les branches continues sont issues de la diagonalisation du tenseur de courbure.

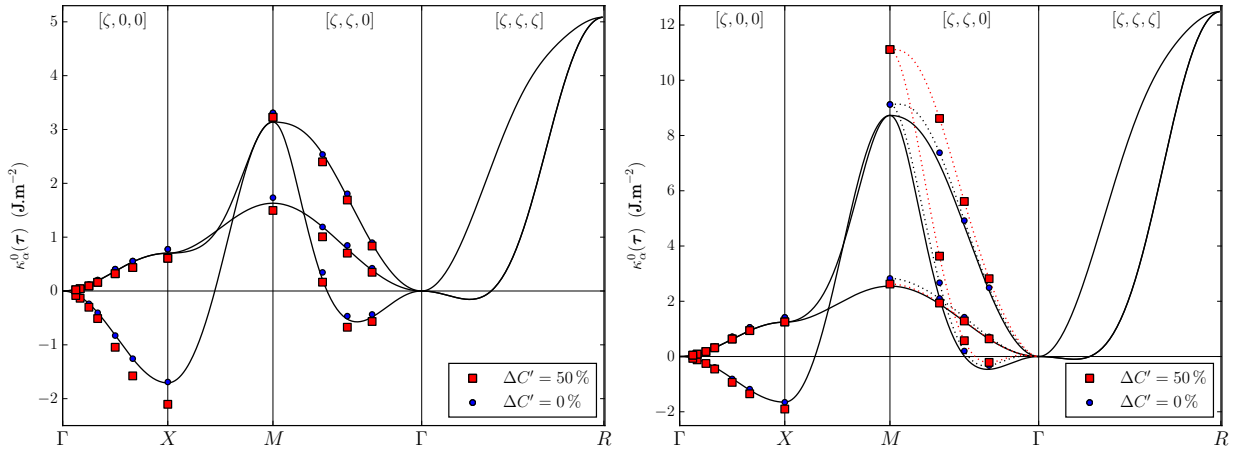


FIGURE 2.17: Spectres des courbures de l'énergie élastique de configuration de l'arrangement périodique de précipités cubiques en élasticité homogène et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$, à 37 % et 60 % de taux de phase γ'.

La comparaison des courbures calculées numériquement en élasticité homogène avec les branches continues du spectre révèle un très bon accord sur l'ensemble du spectre. De petits écarts sont toutefois visibles, en particulier en bords de la zone de Brillouin (points X et M). Ces écarts sont dus aux interfaces diffuses entre précipités et matrice qui ont été considérées dans le calcul numérique des courbures d'énergie de configuration. En effet, l'algorithme itératif que nous avons utilisé pour résoudre l'équilibre mécanique n'est pas stable pour des variations abruptes des champs. Les courbures déterminées numériquement en élasticité homogène sont ainsi une référence de comparaison à celles évaluées avec $\Delta C' = 50\,\%$.

Nous comparons maintenant les spectres discrets obtenus avec les mêmes interfaces diffuses en élasticité homogène (points bleus dans la figure 2.17) et en élasticité inhomogène (carrés rouges dans la figure 2.17). A $f_v = 37\,\%$, toutes les branches du spectre avec $\Delta C' = 50\,\%$ sont légèrement décalées des branches correspondantes en élasticité homogène vers des courbures inférieures. Le décalage des branches instables conduit à des courbures négatives de plus grandes amplitudes en inhomogène, et celui de la branche longitudinal selon $[\zeta, 0, 0]$ augmente avec la diminution de la longueur d'onde en bord de zone de Brillouin.

Le même décalage léger entre branches en élasticité homogène et inhomogène est observé pour $f_v = 60\,\%$, sur les branches L et $T_{1/2}$ selon [ζ, 0, 0], et T_1 selon [ζ, ζ, 0]. Une différence notable est cependant observée pour les branches L et T_2 selon [ζ, ζ, 0], dont le décalage vers des courbures supérieures croît à mesure que la longueur d'onde diminue.

L'influence de l'inhomogénéité du module C' sur la stabilité de l'arrangement est à considérer par rapport à la fraction volumique. A faible taux de phase, le $\Delta C'$ déstabilise davantage les branches négatives du spectre, et accroît ainsi légèrement l'instabilité de la microstructure périodique. A plus forte fraction volumique, l'effet de stabilisation des petites longueurs d'onde du mode T_2 selon [ζ, ζ, 0] par f_v est amplifié par l'inhomogénéité de C'. L'arrangement cubique simple de précipités cubiques est alors davantage stabilisé vis-à-vis du mode responsable de la formation des motifs en chevrons. L'accroissement de l'effet stabilisant de la fraction volumique par l'inhomogénéité en C' est susceptible d'être une seconde raison pour laquelle des structures coudées dans l'arrangement des précipités ne sont pas observées expérimentalement à fort taux de phase.

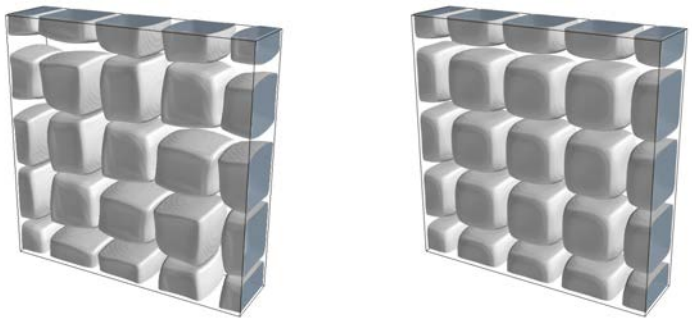
2.3.2.2 Stabilisation, croissance et couplage de longueurs d'onde

Lors d'un recuit isotherme, nous conduisons une modélisation champ de phase de l'évolution de microstructures périodiques perturbées selon les modes T_2 selon [ζ, ζ, 0] et L selon [ζ, 0, 0], qui ont été mis en cause dans la formation des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ'. Pour un même mode de perturbation, nous recherchons les différences d'évolution de microstructure qui pourraient survenir entre élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$. Le calcul des courbures d'énergie de configuration en inhomogène a révélé la dépendance des effets du $\Delta C'$ à la fraction volumique f_v de phase γ'. Nous considérons pour cette raison des microstructures avec un taux de phase élevé ($f_v = 60\,\%$) pour lequel les effets de l'inhomogénéité sont importants. Les conditions des simulations sont identiques à celles répertoriées au tableau 2.2, et les constantes élastiques dans le cas inhomogène sont celles spécifiées au tableau 2.3.

Pour chaque type d'élasticité, nous considérons une microstructure cubique simple de $4 \times 4 \times 1$ précipités cubiques contenus dans un volume périodique de $1.8 \times 1.8 \times 0.5\,\mu m^3$, discrétisé selon un réseau cubique simple de $512 \times 512 \times 128$ voxels. Le mode transverse T_2 selon [ζ, ζ, 0] est introduit dès l'instant initial avec une longueur d'onde telle que $\zeta = 2\pi/4a$ et une amplitude de 36 nm. Il convient de noter que les courbures d'énergie de configuration associées à l'introduction statique de ce mode de perturbation en élasticité homogène et inhomogène sont toutes les deux positives mais très faibles sur le spectre de la figure 2.17 à la fraction volumique correspondante. Les instants finaux des simulations sont présentés à la figure 2.18.

En élasticité homogène, le mode T_2 selon $[\zeta, \zeta, 0]$ induit une évolution progressive des formes jusqu'à provoquer la formation des structures coudées caractéristiques des motifs en chevrons dans l'arrangement des précipités (figure 2.18 à gauche). Ce résultat illustre les limites de l'analyse de stabilité réalisée avec des formes de précipités figées, puisque celle-ci prédit la stabilité de l'arrangement.

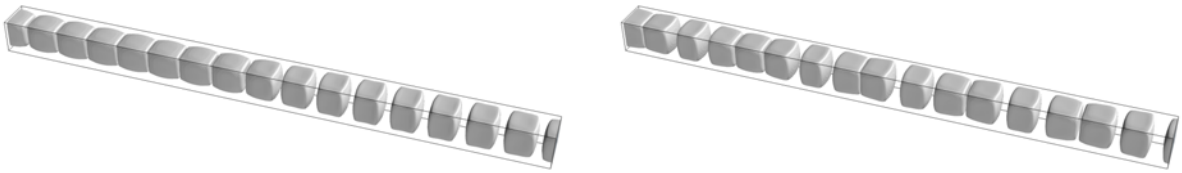
En élasticité inhomogène avec $\Delta C' = 50\,\%$, l'amplitude du mode initial décroît progressivement à mesure que les précipités se réalignent en migrant dans la matrice, jusqu'à ce qu'ils retrouvent leur position régulière sur le réseau périodique. Ce résultat confirme l'effet de l'inhomogénéité en C' dans l'accroissement de la stabilisation des petites longueurs d'onde du mode transverse T_2 selon [ζ, ζ, 0].



$\Delta C' = 0\,\%$; $t_f = 0.3\,\mathrm{h}$ $\Delta C' = 50\,\%$; $t_f = 1.1\,\mathrm{h}$

FIGURE 2.18: Instants finaux des modélisations champ de phase de l'évolution de microstructures périodiques perturbées selon le mode transverse T_2 selon $[\zeta, \zeta, 0]$ en élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$.

Nous nous intéressons maintenant à l'effet de l'inhomogénéité $\Delta C'$ sur l'évolution microstructurale resultant de l'instabilité longitudinale le long de $[\zeta, 0, 0]$. Considérons une microstructure cubique simple de $16 \times 1 \times 1$ précipités cubiques contenus dans un volume périodique de $7.4 \times 0.5 \times 0.5\,\mu\mathrm{m}^3$, discrétisé selon un réseau cubique simple de $2048 \times 128 \times 128$ voxels. Le mode L selon $[\zeta, 0, 0]$ est introduit à l'instant initial avec une longueur d'onde de 16 précipités et une amplitude de 36 nm. Les instants finaux des évolutions en élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$ sont présentés à la figure 2.19.



$\Delta C' = 0\,\%$; $t_f = 0.2\,\mathrm{h}$ $\Delta C' = 50\,\%$; $t_f = 4.6\,\mathrm{h}$

FIGURE 2.19: Instants finaux des modélisations champ de phase de l'évolution de microstructures périodiques perturbées selon le mode longitudinal L selon $[\zeta, 0, 0]$ en élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$.

L'évolution de la phase ψ_x des microstructures perturbées est présentée à la figure 2.20 par la superposition des profils de phase à différents instants, et permet de décrire précisément le mode initial et l'arrangement spatial des précipités au cours du temps.

En élasticité homogène, le mode initial de longueur d'onde 16 précipités se développe de manière analogue à celui modélisé à une longueur d'onde de 8 précipités à la figure 2.9. Le mode de perturbation initial à grande longueur d'onde est figé puisque la position des précipités n'évolue pas. Ce figement est attesté par l'amplitude constante de la modulation de phase ψ_x associée à la figure 2.20. On observe que l'évolution microstructurale opère principalement par un changement de forme des précipités qui dépend de leur position dans le mode. Comme pour l'évolution présentée à la figure 2.9, on retrouve ici le fait que le changement de forme des précipités tend à rapprocher les précipités les plus proches.

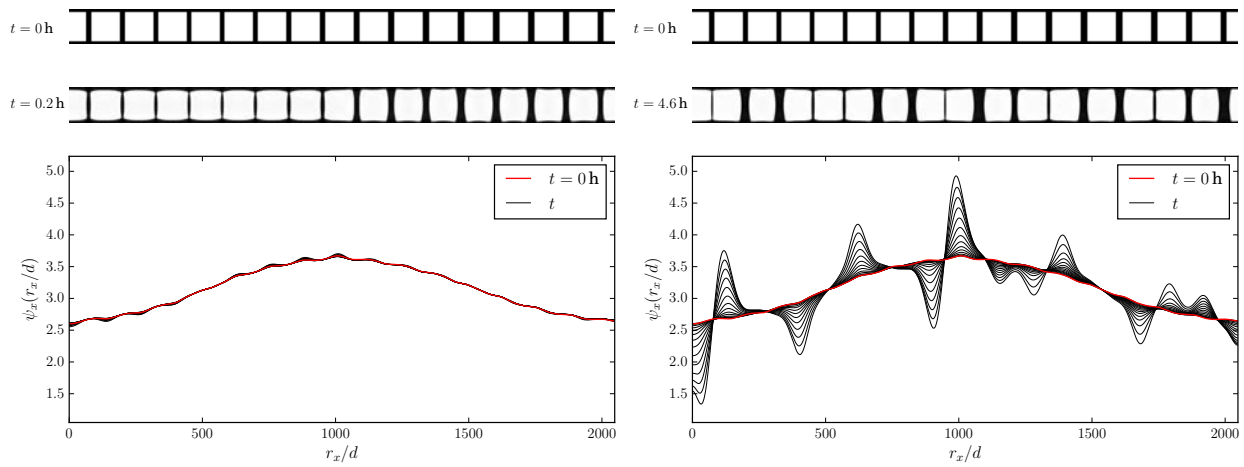


Figure 2.20: Analyse de la phase ψ_x associée à l'évolution de microstructures périodiques perturbées selon le mode longitudinal selon [ζ, 0, 0] en élasticité homogène $\Delta C' = 0\,\%$ et inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$, et coupes de la microstructure aux premiers et derniers instants de chaque simulation. Les profils de phase sont calculés à différents instants et superposés.

A l'instant où le mode longitudinal instable selon [ζ, 0, 0] s'est pleinement développé en élasticité homogène ($t = 0,2\,\mathrm{h}$), la microstructure perturbée selon le même mode en élasticité inhomogène est restée statique : la modulation de phase se maintient dans l'arrangement et la forme cuboïdale des précipités a relaxé mais n'a pas évolué comme dans le cas homogène. Ce figement de la perturbation initial persiste pour $\Delta C' = 50\,\%$ et les changements de forme et de position des précipités cuboïdaux commencent à devenir visible à partir de environ $t = 1.6\,\mathrm{h}$. Un regroupement des précipités en amas de 2 et 3 inclusions apparaît et correspond sur les profils de phase à la croissance de modes à plus petites longueurs d'onde, et dont les amplitudes de modulation croissantes s'ajoutent à celle de la perturbation initiale constante au cours de la simulation.

La première différence notable entre les modélisations pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ est la cinétique de développement des modes instables, plus lente d'un ordre de grandeur en élasticité inhomogène. La seconde est l'expression de l'instabilité qui se traduit dans le cas homogène par un allongement des précipités en direction des voisins les plus proches sans déplacement de leur barycentre, alors que dans le cas inhomogène la forme des précipités reste plus compacte et on observe le déplacement progressif de certains précipités. Les déplacements sont associés à des modes longitudinaux instables à petites longueurs d'onde selon [ζ, 0, 0] dont les modulations croissantes s'ajoutent à l'amplitude du mode initial à grande longueur d'onde. La croissance de ces modes conduit au regroupement des précipités par paires et triplets d'inclusions, et soulève la question de l'influence de l'inhomogénéité du module de cisaillement C' sur la densité de défauts de périodicité formés dans la microstructure γ/γ', à fort taux de phase. Afin d'étudier systématiquement le développement des modes instables, une perspective de ce travail est d'effectuer une analyse de stabilité dynamique en partant de l'équation cinétique.

L'analyse de stabilité que nous avons réalisé au moyen de simulations champ de phase a systématiquement porté sur l'évolution de microstructures perturbées selon des modes instables.

Nous nous intéressons maintenant à l'évolution d'une microstructure périodique perturbée à grande longueur d'onde selon le mode transverse T_1 stable selon $[\zeta, 0, 0]$, en élasticité inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$, et lors d'un recuit isotherme. Nous considérons à 2D une microstructure cubique constituée de 16×1 précipités cubiques contenus dans un système périodique de $9.6 \times 0.6\,\mu m^2$, discrétisé selon un réseau cubique simple de 2048×128 pixels. Le mode transverse selon $[\zeta, 0, 0]$ est introduit à l'instant initial avec une longueur d'onde telle que $\zeta = 2\pi/16a$ et une amplitude de 141 nm. L'analyse de stabilité (figure 2.17) associe à ce mode une courbure positive de l'énergie élastique de configuration. L'évolution de la microstructure perturbée est présentée à la figure 2.21 à trois instants de la simulation. Afin d'analyser l'évolution microstructurale, les phases ψ_y et ψ_x la microstructure perturbée sont calculées au cours de la simulation, et la superposition de leurs profils à différents instants sont présentés à la figure 2.22. A l'instant initial, le mode transverse

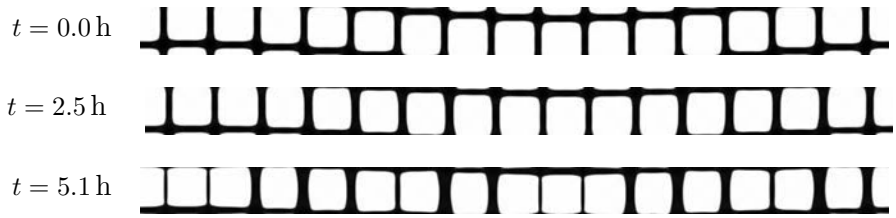


FIGURE 2.21: Modélisation de l'évolution d'une microstructure périodique perturbée selon le mode transverse stable selon $[\zeta, 0, 0]$ en élasticité inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$.

selon $[\zeta, 0, 0]$ induit une ondulation de l'alignement des précipités, connue en *pattern formation* comme une perturbation de type zigzag, repérée par la sinusoïde du profil de ψ_y à la figure 2.22. A $t = 2.5\,h$, l'amplitude de la modulation transverse ψ_y a diminué avec le réalignement des précipités. Le réalignement selon r_y se poursuit jusqu'à l'instant final, auquel les précipités sont groupés par amas de 2 et 3 inclusions selon la direction longitudinale.

Le réalignement selon r_y des précipités au cours du temps traduit la décroissance de l'amplitude du mode de perturbation transverse selon $[\zeta, 0, 0]$, vis-à-vis duquel l'arrangement périodique de précipités γ' est stable. Les profils superposés de ψ_y traduisent une cinétique de décroissance du mode transverse, et donc de réalignement des inclusions, dont la vitesse décroît au cours du temps. La perturbation zigzag a une relaxation exponentielle que nous discutons dans [31], et qui traduit une diffusion positive de la phase ψ_y [29, 77]. Le profil de la phase ψ_x, dont l'amplitude de modulation nulle à l'instant initial décrit la régularité longitudinale de l'arrangement, permet de repérer la croissance des modes longitudinaux. L'activité de modes longitudinaux est identifiée à deux longueurs d'onde, provoquant respectivement le regroupement des précipités en triplets pour ceux localisés dans les ventres du mode transverse, et en paires pour ceux localisés à ses noeuds. La cinétique de croissance du mode regroupant les précipités par paires est plus rapide que celle les regroupants en triplets. A l'instant final du profil de ψ_x, les modulations de la phase sont périodiques avec une longueur d'onde deux fois inférieure à celle du mode transverse initial. Ce rapport entre la longueur du mode transverse stable et celle de périodicité des modes longitudinaux instables traduit l'existence d'un couplage entre les modes stables et instables.

Ces résultats confirment *a posteriori* que les phases ψ_x et ψ_y sont des grandeurs pertinentes et des descripteurs topologiques de la microstructure γ/γ' physiquement justifiés. L'analyse par phases est utilisée dans la section suivante pour détecter les défauts d'alignement des précipités et caractériser leur dynamique.

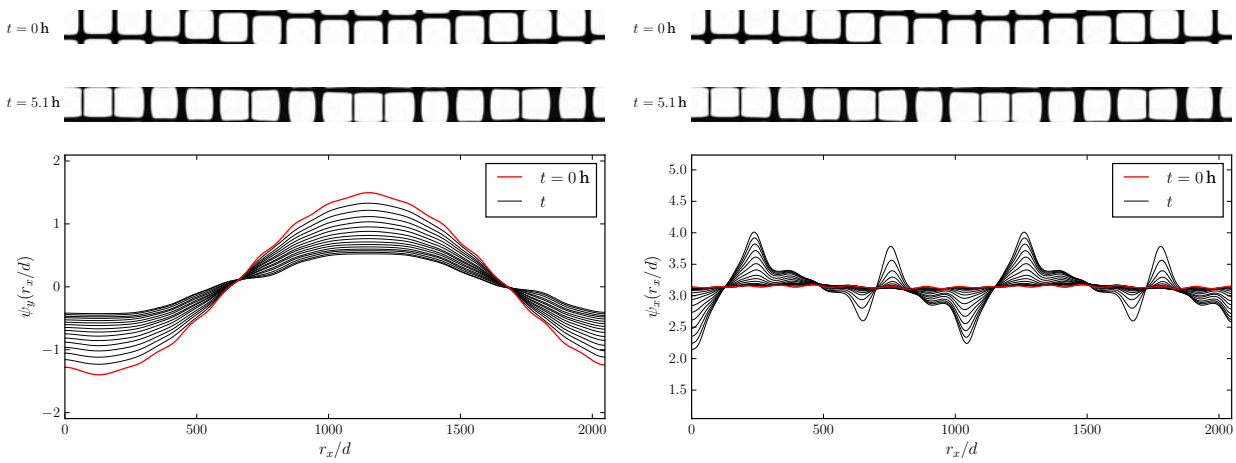


Figure 2.22: Analyse des phases ψ_y et ψ_x associées à l'évolution de la microstructure périodique perturbée selon le mode transverse selon $[\zeta, 0, 0]$ en élasticité inhomogène $\Delta C' = 50\,\%$, et coupes de la microstructure aux premier et dernier instants de la simulation. Les profils des phases sont calculés à différents instants et superposés.

2.4 Dynamique des défauts d'alignement

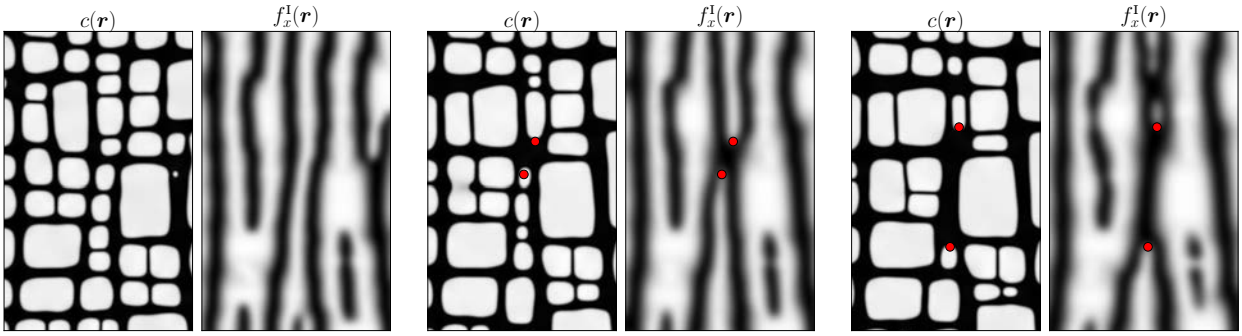
Les analyses de stabilité et les simulations de champ de phase des sections précédentes ont mis en évidence l'instabilité de la microstructure composée d'un réseau parfait de précipités et ont montré les liens entre les modes d'instabilité et les défauts de périodicité dans la microstructure γ/γ'. Dans cette section, nous nous intéressons à leur dynamique dans la microstructure, à partir de simulations champ de phase réalisées par M. Cottura [26]. La migration des défauts est étudiée dans un premier temps au cours d'un recuit isotherme. Dans un second temps, nous comparons la position des défauts d'alignement avant et après mise en radeaux d'une microstructure soumise à un chargement en fluage.

2.4.1 Montée et glissement des défauts pendant un recuit isotherme

Au cours d'un recuit isotherme, l'évolution de la microstructure γ/γ' a été simulée par M. Cottura [26] avec un modèle de champ de phase différent de celui que nous avons présenté au chapitre 1. Dans ce modèle, la microstructure est décrite par un champ de concentration et 3 champs non-conservés, dont des combinaisons identifient les 4 variants de translation de la phase γ'. Cette description plus riche tient compte de l'ordre chimique des précipités et la coagulation des précipités est autorisée lorsqu'ils sont de même variant, et bloquée s'ils sont de variants différent. La microstructure que nous analysons a été simulée avec une inhomogénéité élastique $\Delta C' = 50\,\%$ entre les phases [28].

La méthode d'analyse par phases géométriques développée au chapitre 1 nous permet de décomposer les modulations du champ c et de suivre la position des défauts au cours du recuit. Plus spécifiquement, nous nous intéressons aux évènements de création et d'annihilation des défauts, et nous observons les mécanismes de migration qui précèdent ou suivent ces évènements. Plusieurs situations sont considérées dans cette sous-section, dans lesquelles les défauts sont mis en évidence sur les modulations f_x^{I} et/ou f_y^{I}, ainsi que sur la microstructure c. Pour distinguer le type de défaut, les macro-dislocations et les branches dans f_x^{I} (resp. f_y^{I}) sont repérées par des points rouges et verts (resp. bleus et jaunes).

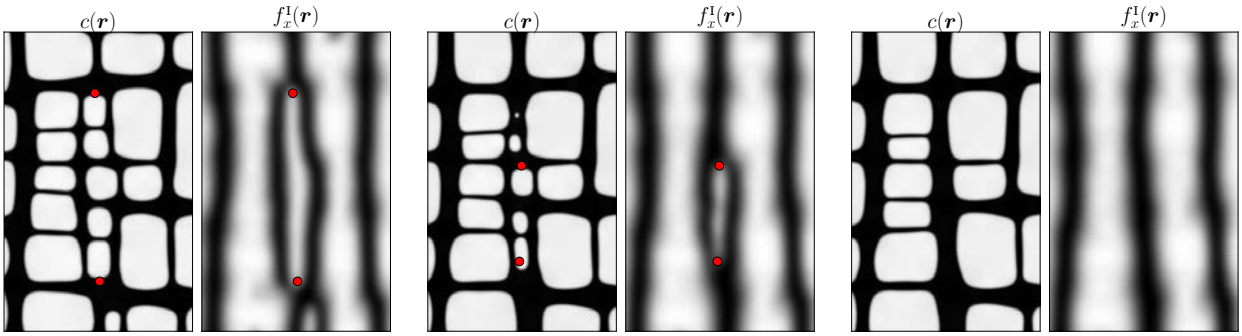
Considérons dans un premier temps l'évènement mis en évidence à la figure 2.23. Une région de la microstructure est considérée à trois instants différents t^*, et la modulation f_x^{I} correspondante est également présentée.



$t^* = 100$ u.a. $t^* = 170$ u.a. $t^* = 230$ u.a.

FIGURE 2.23: Création et montée d'une paire de macro-dislocations.

A $t^* = 100$ u.a., la modulation de f_x^{I} au centre de la région zoomée de la microstructure est continue, ce qui est également le cas de l'alignement vertical des précipités correspondants. A $t^* = 170$ u.a., cette même modulation est brisée suite à la dissolution d'un précipité dans l'alignement. Cet évènement conduit à la création d'une paire de macro-dislocations dans f_x^{I} similaire à celle présentée à la figure 2.10, et traduit l'activité de l'instabilité longitudinale selon $[\zeta, 0, 0]$. Les précipités sur lesquels sont localisés ces défauts se dissolvent ensuite progressivement jusqu'au dernier instant considéré $t^* = 230$ u.a.. La dissolution progressive de la rangée de précipités entraîne la migration des macro-dislocations selon un mécanisme de montée.



$t^* = 180$ u.a. $t^* = 270$ u.a. $t^* = 310$ u.a.

FIGURE 2.24: Montée et annihilation d'une paire de macro-dislocations.

Considérons maintenant l'évènement mis en évidence dans f_x^{I} à la figure 2.24. A $t^* = 180$ u.a., l'alignement de précipités au centre de la région zoomée possède une macro-dislocation à chacune de ses extrémités. De même que pour le mécanisme mis en évidence à la figure 2.23, les précipités dans la rangée se dissolvent progressivement, ce qui conduit à la montée puis à l'annihilation des défauts lorsqu'ils se rencontrent. Notons toutefois que la plaquette de précipités qui caractérise les deux macro-dislocations de type coin s'amincit à mesure que les dislocations se rapprochent par montée. Cet amincissement correspond dans une description en dislocations à une diminution de la norme du vecteur de Burgers.

Ce mécanisme s'oppose au comportement usuel des dislocations dans lequel l'épaisseur de la plaquette est liée à la taille des atomes. Notons enfin, à $t^* = 270$ u.a., qu'il y a un écart entre la position du défaut au dessus de l'alignement sur f_x^{I} et sa position réelle sur c. Cet écart de position provient de la méthode d'analyse par phases : les petits précipités correspondent à des harmoniques d'ordres supérieurs de la microstructure, et sont par conséquent perdus dans l'analyse limitée au mode fondamental (voir section 1.2.3.2). Les mécanismes de migration des macro-dislocations mis en évidence dans les figures 2.23 et 2.24 rejoignent les observations de Vaithyanathan et Chen [94]. Dans des simulations champ de phase de la microstructure γ/γ', les auteurs observent que les alignements de précipités disparaissent selon un mécanisme analogue à la montée des dislocations. Nos observations confirment ainsi que la dynamique des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ' ressemble dans une certaine mesure à la dynamique des dislocations dans un cristal, à la différence près que le vecteur de Burgers évolue au cours du temps dans le cas des défauts d'alignement. En *pattern formation*, la montée de macro-dislocations dans un motif lamellaire est discutée dans [29] et étudiée dans [87]. Notons enfin qu'un mécanisme en macro-dislocations a également été observé lors de la croissance de microstructures en damier dans le système Co-Pt [13]. Ainsi, les concepts d'analyse des microstructures développés dans cette thèse pourraient également s'appliquer à ces microstructures, observées à la fois dans des systèmes métalliques et céramiques [14, 73, 104].

Nous nous intéressons maintenant à la dynamique de branches dans f_x^{I}, en considérant la figure 2.25. Deux paires de branches notées 1 et 2 sont mises en évidence dans f_x^{I} et sur c à $t^* = 150$ u.a.. Considérons dans un premier temps la paire de défauts 1, et suivons la taille des précipités sur lesquels sont localisés les branches. Entre $t^* = 150$ u.a. et $t^* = 250$ u.a., le côté horizontal du précipité portant la branche inférieure de la paire 1 a rétrécit. La dissolution partielle de ce précipité a favorisé la croissance de son voisin de droite, plus petit. Ce mûrissement inverse [84] induit par l'élasticité aligne progressivement ces deux précipités avec leurs voisins supérieurs, et provoque le rapprochement horizontal des branches de la paire 1. Ce rapprochement se poursuit jusqu'à provoquer la rencontre et l'annihilation de ces deux branches à $t^* = 350$ u.a.. Le mouvement décrit par la paire de défauts 1 s'effectue dans une direction qui correspond à un glissement pour les branches. Considérons maintenant la paire de branches 2. Le rapprochement horizontal et vertical de ces deux défauts est provoqué par la dissolution progressive du précipité entre les branches. Sa dissolution totale entraîne la rencontre des deux défauts qui s'annihilent à $t^* = 350$. L'annihilation des paires 1 et 2 de branches conduit à la formation de couloirs de matrice ininterrompus dans la modulation f_x^{I} au dernier instant considéré, et favorise ainsi la régularité horizontale de l'arrangement. La figure 2.25 met en évidence l'annihilation de paires de branches dans les modulations par un mécanisme de glissement des défauts entre rangées voisines. Cette annihilation des défauts par glissement ressemble à celle simulé par Millán-Rodríguez *et al.* [69] dans des rouleaux de convection.

Nous cherchons maintenant à identifier des mécanismes couplés dans la dynamique des défauts de modulations f_x^{I} et f_y^{I} de la microstructure. De même que pour les cas discutés précédemment, nous nous focalisons sur une région de la microstructure, présentée à différents instants à la figure 2.26 avec les modulations f_x^{I} et f_y^{I} correspondantes. Plus spécifiquement, nous considérons les branches dans f_x^{I} notées de 1 à 3 et nous observons les conséquences de leur migration sur la modulation f_y^{I} et sur les défauts qu'elle porte. Considérons dans un premier temps la branche 1 dans f_x^{I}. Cette branche monte entre $t^* = 180$ u.a. et $t^* = 280$ u.a., ce dont témoigne l'allongement vertical du précipité qui la portait à $t^* = 280$ u.a.. Elle disparaît ensuite par la dissolution de l'un des deux précipités qui étaient sur sa trajectoire.

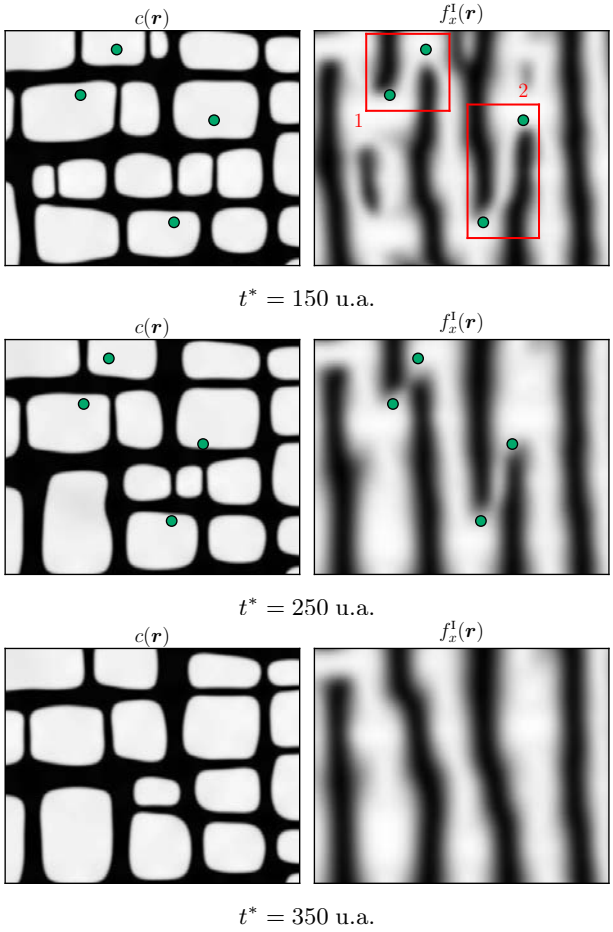


FIGURE 2.25: Glissement et annihilation de paires de branches.

La montée et la disparition de la branche 1 dans f_x^{I}, par l'allongement vertical du précipité qui la porte, a ainsi propagé la branche voisine dans f_y^{I} vers la gauche par montée. Considérons maintenant la branche 2 à $t^* = 180$ u.a., qui est encadrée d'une paire de branches dans f_y^{I} à la même ordonnée. La montée de la branche 2 survient par la croissance verticale du précipité qui la porte, et induit un décalage vertical progressif de la paire de défauts dans f_y^{I} dans la même direction. A $t^* = 380$ u.a., la branche 2 n'est plus détectée par l'analyse de phase limitée au mode fondamental. Malgré cela, sa montée a décalé la paire de branches en f_y^{I} jusqu'à ce que celle de droite sorte de la modulation verticale et devienne ainsi une macro-dislocation. Observons finalement la paire de branches 3 dans f_x^{I}. La montée progressive de ces deux défauts les rapproche entre $t^* = 180$ u.a. et $t^* = 280$ u.a., ce qui provoque un pincement de la modulation f_y^{I} correspondante. Au dernier instant considéré $t^* = 380$ u.a., la recontre de ces deux branches conduit à leur annihilation. La modulation en f_y^{I} se brise simultanément à cela, et conduit à la création d'une paire de macro-dislocations selon un mécanisme ressemblant à celui présenté à la figure 2.23.

Les figures 2.23 à 2.26 ont permis d'identifier des mécanismes de montée et de glissement des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ' au cours d'un recuit isotherme, et de montrer que les dynamiques des défauts dans les modulations f_x^{I} et f_y^{I} sont couplées. Nous pouvons également remarquer que les macro-dislocations tendent à évoluer plus rapidement que les branches.

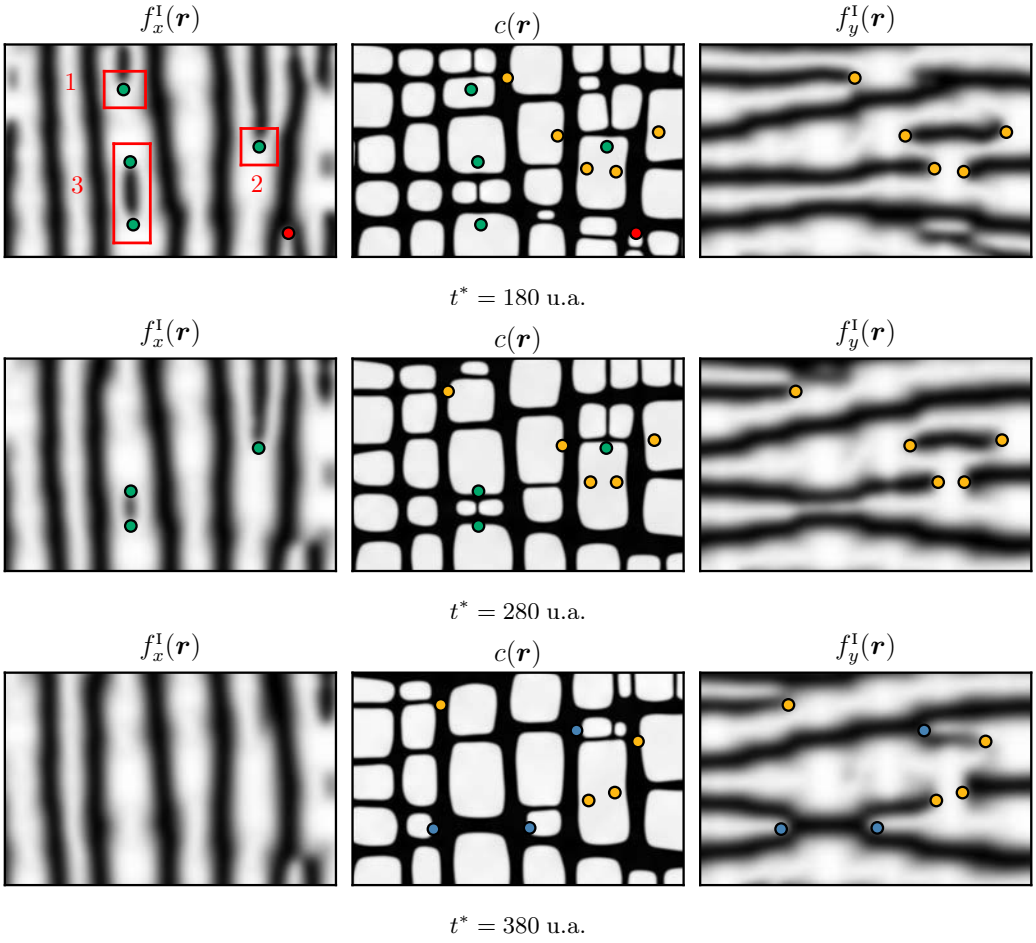


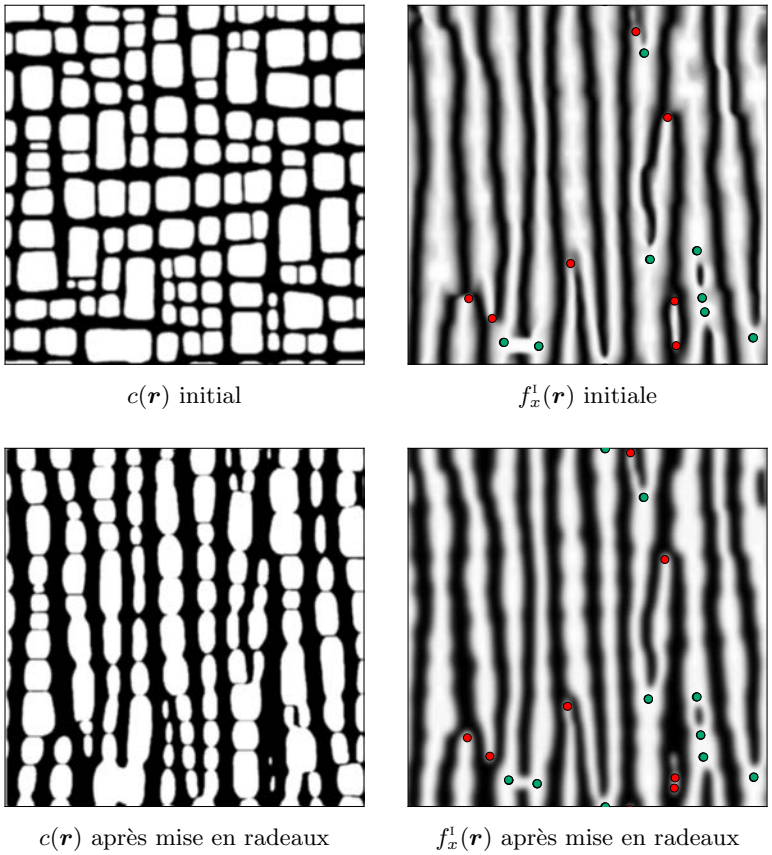
Figure 2.26: Mise en évidence du couplage de la dynamique des défauts d'alignement dans f_x^{I} et f_y^{I}.

Cette différence de temps d'évolution peut être rapprochée de la taille des précipités sur lesquels ces différents types de défauts sont généralement localisés. En effet, les macro-dislocations tendent à être localisées sur de petits précipités, contrairement aux branches qui sont généralement situées sur des précipités plus grands. De plus, la vitesse de montée d'une branche est susceptible de dépendre de l'ordre chimique des deux précipités qui séparent la modulation. Si ces deux précipités sont de même variants, leur coagulation peut rapidement propager le défaut. Sa montée risque d'être plus lente s'ils sont de variants différents, dans la mesure où l'un devra croître aux dépens de l'autre pour propager le défaut.

Les mécanismes identifiés dans cette sous-section suggèrent que les défauts de périodicité pourraient être des observables pertinentes sur lesquelles construire une modélisation de la microstructure γ/γ' à une échelle supérieure. Ce type de modélisation en dynamique de défauts nécessiterait cependant une étude approfondie et systématique de la dynamique des branches et des macro-dislocations, qui est une perpective de ce travail. L'analyse par phases rend cependant cette étude possible sur des microstructures simulées par champ de phase. La vitesse de migration des défauts, leur trajectoire et leur annihilation par la rencontre avec un autre défaut peuvent être mesurées directement sur les simulations. Dans ce contexte, une étude statistique de la dynamique des défauts serait nécessaire à partir des simulations de champ de phase.

2.4.2 Evolution des défauts d'arrangement lors d'une mise en radeaux

Les observations réalisées précédemment sur des simulations de champ de phase ont permis de discuter la dynamique des défauts de périodicité dans la microstructure γ/γ'. Les défauts migrent dans la microstructure selon des mécanismes de montée et de glissement au cours d'un recuit isotherme. Dans la continuité de ces observations, il est naturel de se demander ce que deviennent les défauts d'alignement au cours de la mise en radeaux de la microstructure. Une modélisation couplant une méthode de champ de phase pour les transformations diffusives et un modèle de plasticité cristalline en densités de dislocations a été réalisée par M. Cottura *et al* dans [27]. Ce modèle a été appliqué à l'étude de la mise en radeaux de la microstructure γ/γ', au cours d'une chargement en fluage. Nous calculons la phase ψ_x des microstructures initiale et en radeaux obtenues dans ces travaux pour repérer les défauts de périodicité. Ces microstructures sont présentées à la figure 2.27 avec la modulation horizontale $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ correspondante.



$c(\boldsymbol{r})$ initial — $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ initiale

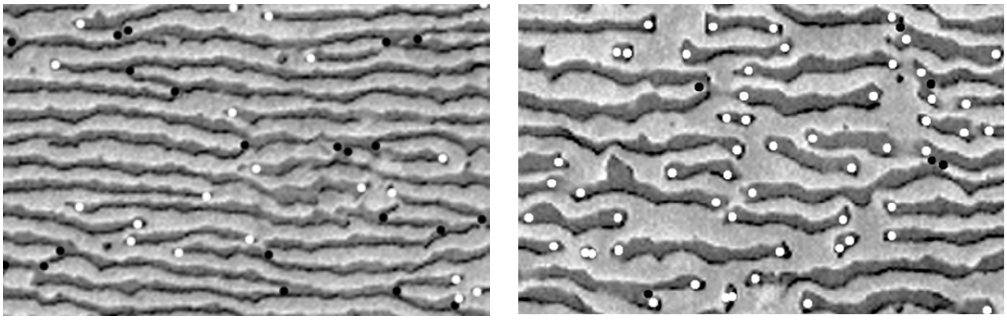
$c(\boldsymbol{r})$ après mise en radeaux — $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ après mise en radeaux

FIGURE 2.27: Identification des défauts dans la modulation $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ d'une microstructure γ/γ' avant et après la mise en radeaux simulée par champ de phase [27].

La comparaison des défauts avant et après la mise en radeaux de la microstructure montre immédiatement que leurs positions coïncident. La figure 2.27 révèle que la position des défauts dans $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ est conservée pendant la mise en radeaux de la microstructure. Ainsi, si les défauts migrent par montée et glissement dans la microstructure pendant un recuit isotherme, l'observation de la figure 2.27 révèle que l'organisation des défauts à l'application du chargement en fluage détermine la connexité initiale de la structure en radeaux qui sera formée.

Notons enfin que cette dernière observation ouvre des perspectives dans l'étude de la mise en radeaux et, à plus long terme, de l'inversion topologique de la microstructure γ/γ' sous un chargement en fluage à haute température. L'inversion topologique survient après déstabilisation de la structure en radeaux, au cours de laquelle la phase γ', initialement entourée par la matrice γ, devient progressivement la phase connectée de la microstructure. Ce régime survient entre les étapes de fluage secondaire et tertiaire : à cette évolution de la microstructure est associée une dégradation des propriétés mécaniques qui induit une augmentation significative de la vitesse de fluage.

L'inversion topologique de la microstructure γ/γ' a été étudiée par P. Caron *et al* [23] et par V. Carucci *et al* [24] au moyen d'un paramètre défini par A. Fredholm et J.-L. Strudel [38] appelé *connectivity number* ou nombre de connexions. Dans ces études, le nombre de connexions est défini à partir du nombre de terminaisons (macro-dislocations, dans notre cas) et du nombre de points-triples (branches, dans notre cas) de la structure en radeaux. Ce paramètre est utilisé pour caractériser la connexité de la structure en radeaux à différents instants de l'évolution microstructurale, et devient négatif lorsque l'inversion topologique de la microstructure survient. Mentionnons également les travaux de A. Epishin *et al* [34] sur la cinétique de l'inversion topologique de la microstructure γ/γ'. Dans ces derniers travaux, l'inversion topologique est étudiée *via* l'évolution du ratio entre la densité de "terminaisons-γ" (branches, dans notre cas) et la densité de "terminaisons-γ'" (macro-dislocations, dans notre cas) de la structure en radeaux (figure 2.28). Bien que ce régime d'évolution microstructurale ait été étudiée au moyen de simulations par G. Boussinot [15], N. Zhou *et al* [109], et J. V. Goerler *et al* [43], la modélisation de l'inversion topologique de la microstructure γ/γ' en champ de phase reste une question ouverte.



Microstructure en radeaux — Microstructure inversée topologiquement

Figure 2.28: Défauts topologiques de microstructures γ/γ' en radeaux et inversée topologiquement dans les travaux de A. Epishin *et al* [34]. Sur ces microstructures, les points noirs et blancs repèrent respectivement les terminaisons-γ' (macro-dislocations) et les terminaisons-γ (branches).

A plus long terme, l'analyse en phases que nous avons proposé à la section 1.2.3.2 du chapitre 1 ouvre la perspective d'une étude continue de l'évolution des défauts de la microstructure. Ainsi, l'évolution des défauts pourrait être suivie depuis la microstructure en cuboïdes, vers la structure en radeaux, et finalement jusqu'au régime d'inversion de connexité. Cette étude pourrait être réalisée sur des caractérisations expérimentales. Elle pourrait également être conduite sur des microstructures simulées, ce qui nécessite le développement de modèles incluant les mécanismes importants pour l'inversion de connexité.

2.5 Conclusions et perspectives

L'objectif du travail présenté dans ce chapitre est la compréhension de l'origine des défauts d'alignement des précipités cuboïdaux de la microstructure γ/γ', ainsi que des mécanismes de leur formation et de leur migration dans l'arrangement.

L'analyse perturbative statique de l'arrangement périodique de précipités cubiques établit son instabilité vis-à-vis de certains modes de perturbation, induite par l'anisotropie des interactions élastiques entre les inclusions cohérentes. La modélisation champ de phase de l'évolution de microstructures périodiques perturbées selon les modes instables au cours d'un recuit isotherme relie le développement des modes aux défauts identifiés expérimentalement et numériquement. La formation des défauts de périodicité de l'arrangement est ainsi expliquée par le développement spontané de ces instabilités, intrinsèques à l'élasticité de la microstructure γ/γ'.

L'augmentation de la fraction volumique de phase γ' stabilise les petites longueurs d'onde du mode responsable de la formation des motifs en chevrons, mais n'a pas d'influence sur l'instabilité des modes longitudinaux mis en cause dans la formation des branches et des terminaisons. Un taux de phase plus important induit un écrantage des interactions élastiques, qui résulte du recouvrement des champs anisotropes générés par chaque inclusion. Malgré cet écrantage, le profil d'énergie d'interaction dans la direction longitudinale reste concave et explique l'instabilité de l'arrangement de précipités cubiques. L'inhomogénéité du module de cisaillement C' accroît la stabilisation des petites longueurs d'onde du mode transverse instable avec la fraction volumique. Les contributions du taux de phase γ' et de l'inhomogénéité en C' sur la stabilisation des petites longueurs d'onde de ce mode instable sont susceptibles d'être les raisons pour laquelle les structures coudés dans l'arrangement des précipités ne sont observées qu'à faible fraction volumique.

La modélisation champ de phase révèle la différence d'expression de l'instabilité longitudinale avec l'inhomogénéité en C'. En effet, pour une inhomogénéité de 50 % sur le module élastique C', les simulations montrent que le changement de forme rapide des précipités, observé en élasticité homogène, ne se produit plus. Le mode longitudinal initialement imposé, instable dans l'analyse statique, semble figé et on observe progressivement le développement de modes longitudinaux de courte longueur d'onde. En ce qui concerne le mode transverse $[\zeta, 0, 0]$, dont l'analyse statique a démontré la stabilité, les simulations champ de phase montrent la décroissance attendue de ce mode, mais également le développement de modes longitudinaux, ce qui pose la question de l'existence d'un couplage dynamique entre ces modes. La question du couplage de longueurs d'onde entre les modes de perturbation stable et instable, et de ses conséquences sur la formation des défauts de périodicité dans la microstructure, est une perspective de ce travail.

La dernière partie de ce chapitre a été consacrée à l'étude de la dynamique d'évolution des défauts topologiques de la microstructure cuboïdale. Des simulations bidimensionnelles en champ de phase réalisées précédemment ont été analysées en utilisant l'analyse en phases géométriques proposée dans le chapitre 1. Il est montré que le grossissement de la microstructure cuboïdale peut être décrit au moyen du mouvement de macro-dislocations et de branches. Une perspective naturelle de ce travail est le développement d'un modèle cinétique à grande échelle permettant de décrire la croissance isotherme ainsi que la mise en radeaux par la dynamique des défauts. Le développement de ce modèle nécessiterait cependant de réaliser une étude statistique de la dynamique des défauts de périodicité dans une simulation champ de phase de la microstructure γ/γ' à grande échelle.

3 Modélisation champ de phase de microstructures à grande échelle

L'objectif du travail réalisé dans ce chapitre est de modéliser l'évolution de la microstructure γ/γ' à grande échelle, selon la méthode de champ de phase S-PFM récemment proposé par A. Finel *et al* dans [37], pour l'analyse statistique de la dynamique des défauts d'alignement. Dans un premier temps, nous présentons cette nouvelle formulation de la méthode des champs de phase, intrinsèquement discrète, qui permet de s'affranchir des limitations du champ de phase classique sur l'épaisseur de l'interface. Nous décrivons également l'introduction d'un champ conservé dans cette méthode, et l'approche multichamps pour la description des variants de translation de la phase γ'. Le couplage de l'élasticité est présenté, et discuté vis-à-vis de la stabilité du schéma de résolution de l'équilibre mécanique. Une étude préliminaire de validation des paramètres choisis pour le modèle est réalisée dans un second temps. Nous présentons finalement des simulations champ de phase de microstructures à grande échelle, comptant plusieurs milliers de précipités, sur lesquelles nous réalisons différentes analyses statistiques. Notamment, nous étudions l'influence de l'inhomogénéité en C' sur l'évolution des densités de défauts d'alignement des précipités dans la microstructure γ/γ'.

Sommaire

3.1 Méthode de champ de phase S-PFM 66
3.1.1 Formulation discrète de la méthode des champs de phase 66
3.1.1.1 Formulation 1D invariante par translation 66
3.1.1.2 Formulation discrète 3D 68
3.1.2 Couplage d'un champ conservé et approche multichamps 71
3.1.3 Couplage avec l'élasticité 76
3.1.4 Stabilité du schéma mécanique 78
3.2 Calibration du laplacien discret 81
3.3 Modélisation de microstructures à grande échelle 84
3.3.1 Statistiques des effets élastiques sur la taille des précipités 84
3.3.2 Statistiques de l'influence de l'inhomogénéité en C' 91
3.3.2.1 Etude de la taille, de la forme et de l'arrangement 92
3.3.2.2 Analyse des densités de défauts d'alignement 96
3.3.3 Synthèse des simulations à grande échelle 99
3.4 Conclusions et perspectives 100

3.1 Méthode de champ de phase S-PFM

Une nouvelle méthode de champ de phase, récemment proposée dans [37] et appelée S-PFM (Sharp Phase Field Method), permet de s'affranchir des limitations du champ de phase classique sur l'épaisseur de l'interface. La méthode S-PFM se distingue des approches classiques par une description intrinsèquement discrète du système. La formulation est telle qu'elle permet de générer des interfaces dont l'énergie est invariante par translation selon des directions choisies, et cela quelle que soit leur épaisseur, même inférieure au pas de grille. L'épaisseur de l'interface peut alors être du même ordre de grandeur que le pas de discrétisation d, rendant ainsi accessible des tailles de système bien supérieures à celles habituellement simulées avec les approches classiques, ou permettant une diminution considérable du temps de calcul.

Nous décrivons dans un premier temps la démarche permettant de définir un modèle discret unidimensionel strictement invariant par translation, quelle que soit l'épaisseur des interfaces, ainsi que la méthode définie dans [37] pour étendre ce modèle à l'espace 3D. Dans un second temps, le couplage de champs conservés et non conservés est présenté selon l'approche dite KKS, de Kim-Kim-Suzuki [53]. Nous discutons également le couplage de l'élasticité à la méthode S-PFM, pour lequel des schémas de résolution de l'équilibre mécanique particulièrement stables sont nécessaires. Dans ce contexte, A. Finel a récemment proposé un nouveau schéma cubique à faces centrées. Par conséquent, les opérateurs différentiels associés à la méthode S-PFM sont aussi présentés dans le cas d'une discrétisation sur une grille CFC.

3.1.1 Formulation discrète de la méthode des champs de phase

3.1.1.1 Formulation 1D invariante par translation

Considérons une fonctionnelle d'énergie libre discrète construite sur un champ ϕ non conservé dans un cas unidimensionnel :

$$F_{ch} = d\sum_n g(\phi_n) + \frac{\lambda}{2d^2}\left\|\bar{\nabla}\phi_n\right\|^2 \tag{3.1}$$

avec d le pas de discrétisation, $n \in \mathbb{N}$ repérant le point d'abscisse $x = nd$, et $\bar{\nabla}\phi_n = \phi_n - \phi_{n-1}$ un gradient discret sans dimension. La force motrice est nulle à l'équilibre $\partial F_{ch}/\partial\phi_n = 0$, et le profil ϕ_n est solution de l'équation :

$$g'(\phi_n) - \frac{\lambda}{d^2}(\phi_{n+1} - 2\phi_n + \phi_{n-1}) = 0 \tag{3.2}$$

avec les conditions aux limites $\lim_{n\to-\infty}\phi_n = 0$ et $\lim_{n\to+\infty}\phi_n = 1$ afin de stabiliser une interface. A ce stade, le potentiel homogène $g(\phi_n)$ n'a pas encore été défini. Si aucune précaution n'est prise sur la forme du potentiel $g(\phi)$, le profil $\phi(n)$ solution de (3.2) est défini à une translation près, égale au pas du réseau, ce qui implique que deux positions d'équilibre consécutives sont nécessairement séparés par une barrière d'énergie. En d'autres termes, l'énergie de l'interface n'est pas invariante par translation. Notre objectif est donc de choisir une fonction potentielle $g(\phi)$ telle que cette barrière disparaisse exactement, quelle que soit l'épaisseur de l'interface.

Le point crucial est d'identifier une fonction $g(\phi)$ de manière à ce qu'il existe une fonction $f(x)$ telle que, si $\phi_n = f(nd)$ est solution de l'équilibre (3.2), $\phi_n = f(nd - x_0)$ est également solution, *quel que soit le réel* x_0. Si nous savons résoudre ce problème, l'énergie associée à l'interface sera évidemment continûment invariante par translation, ce qui est la clé pour supprimer le frottement sur la grille.

Une condition nécessaire pour que notre problème ait une solution est que la fonction $f(x)$ mentionnée ci-dessus soit telle que si on pose $\phi_n = f(nd - x_0)$ dans l'équation (3.2), cette dernière se transforme en équation différentielle *ordinaire indépendante de* x_0. Cela n'est possible que si le laplacien discret $(\phi_{n+1} + \phi_{n-1} - 2\phi_n)$ ne dépend explicitement que de ϕ_n, indépendamment du réel arbitraire x_0. Il s'avère que le choix $f(x) = \big(1 + \tanh(x/w)\big)/2$ remplit cette condition, puisqu'il conduit à :

$$2\phi_{n\pm1} - 1 = \frac{(2\phi_n - 1) \pm \alpha}{1 \pm (2\phi_n - 1)\alpha} \tag{3.3}$$

avec $\alpha = \tanh(d/w)$. En utilisant (3.3), (3.2) devient une simple équation différentielle ordinaire :

$$g'(\phi) - \frac{\lambda}{d^2}\left(\frac{1-\alpha^2}{1-\alpha^2(2\phi-1)^2} - 1\right)(2\phi - 1) = 0 \tag{3.4}$$

dont l'intégration conduit au potentiel homogène :

$$g(\phi) = \frac{\lambda}{4d^2}\left\{\frac{\alpha^2-1}{\alpha^2}\log\Big[1 - \alpha^2(2\phi-1)^2\Big] - (2\phi-1)^2\right\} \tag{3.5}$$

Cette densité d'énergie libre homogène assure que le profil défini par $\phi_n = \big[1 + \tanh\big((nd - x_0)/w\big)\big]/2$ est solution de l'équation discrète (3.2), quelles que soient l'épaisseur de l'interface $2w$[1] et sa position x_0 où x_0 est un réel quelconque. L'interface se propage alors continûment d'un point à l'autre sans variation de son énergie : la friction de réseau est strictement nulle. Il n'y a alors plus de contrainte sur l'épaisseur de l'interface, qui peut par exemple être choisie égale ou même plus petite que le pas de grille d. L'énergie d'interface σ est déterminée en intégrant numériquement l'énergie le long du profil :

$$\sigma = d\sum_n \left\{g(\phi_n) + \frac{\lambda}{2d^2}\left\|\phi_n - \phi_{n-1}\right\|^2 - g(\phi_0)\right\} \tag{3.6}$$

D'après (3.5), la forme du potentiel $g(\phi)$ dépend de l'épaisseur $2w$ *via* le rapport d/w dans α. La courbure $g''(\phi)$ en $\phi_0 = 0$ et $\phi_1 = 1$ croît exponentiellement avec d/w [37]. Considérons $d/w = 2$, ce qui correspond à une interface d'épaisseur $2w = d$. La densité d'énergie libre homogène associée, ainsi que les profils d'interface translatés de $d/4$, $d/2$, $3d/4$ et d sont représentés à la figure 3.1. Ces profils possèdent exactement la même énergie σ, ce qui confirme l'absence de friction de réseau.

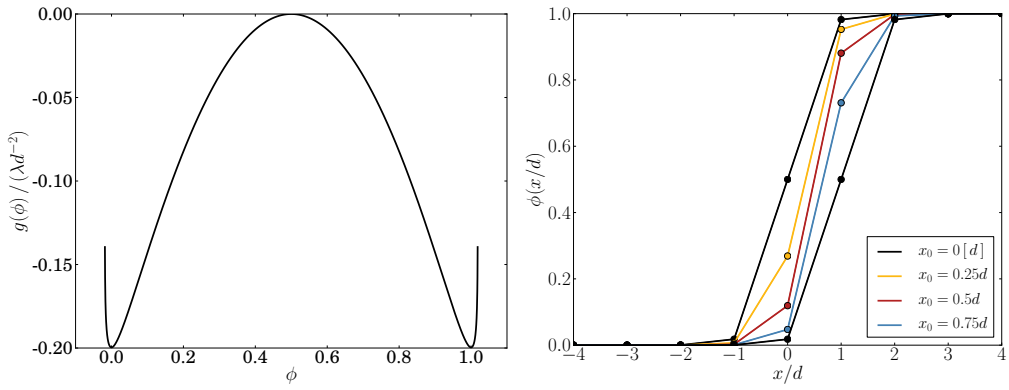


FIGURE 3.1: Gauche : densité d'énergie libre homogène (3.5) pour $d/w = 2$. Droite : interfaces étroites translatées de $d/4$, $d/2$, $3d/4$ et d.

[1] L'épaisseur de l'interface est définie ici comme la distance entre les points d'intersection de la tangente au point milieu du profil et les droites $\phi = 0$ et $\phi = 1$; cette définition conduit à $\ell = 2w$.

3.1.1.2 Formulation discrète 3D

Nous venons d'exposer une formulation de la méthode des champs de phase dans laquelle une interface plane ne frotte pas sur la grille unidimensionnelle sous-jacente, quelle que soit son épaisseur et même si celle-ci est plus petite que le pas de grille. Il est maintenant nécessaire d'étendre cette formulation aux espaces de dimension 3. Il est facile de montrer qu'il n'existe pas de fonction $g(\phi)$ telle qu'elle génère des interfaces planes qui ne frottent pas le long de plus d'une direction de translation. En d'autres termes, il est impossible de récupérer exactement l'invariance par translation et par rotation perdue par l'introduction d'une grille discrète 2D ou 3D. En conséquence, nous procédons de la manière suivante.

Nous sélectionnons une famille de plans $(h_1k_1l_1)$ et décidons que la densité d'énergie libre $g(\phi)$ sera construite de manière à ce que l'énergie de surface $\sigma(h_1k_1l_1)$ associée à cette famille soit exactement et continûment invariante par translation le long de la direction $(h_1k_1l_1)$. Puis, de manière à récupérer autant que possible l'invariance par rotation, nous choisissons deux autres familles de plans, notées $(h_2k_2l_2)$ et $(h_3k_3l_3)$ et procédons de manière à ce que leurs énergies d'interfaces $\sigma(h_2k_2l_2)$ et $\sigma(h_3k_3l_3)$ soient égales à l'énergie d'interface de la 1ère famille :

$$\sigma(h_1k_1l_1) = \sigma(h_2k_2l_2) = \sigma(h_3k_3l_3) \tag{3.7}$$

L'égalité des trois énergies d'interface correspond à deux contraintes qui requièrent l'introduction de deux degrés de liberté. Dans ce but, l'énergie libre de Ginzburg-Landau est réécrite en développant le terme de gradient jusqu'à la 3ème couronne de voisins :

$$\frac{F_{ch}}{V_0} = \sum_{\boldsymbol{r}} \left\{ g\big(\phi(\boldsymbol{r})\big) + \frac{\lambda}{2} \sum_{i=1}^{3} \gamma_i \frac{\nu_i}{d_i^2} \sum_{n=1}^{m_i} \big\| \phi\big(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{r}_i(n)\big) - \phi(\boldsymbol{r}) \big\|^2 \right\} \tag{3.8}$$

où V_0 est le volume par noeud du réseau discret et où $\boldsymbol{r}$ parcourt les différents sites de la grille. Les trois couronnes repérées par l'indice i contiennent chacune m_i voisins, localisés à une distance d_i de $\boldsymbol{r}$, et le facteur $\nu_i = 3/m_i$ est un coefficient de correction tenant compte de la multiplicité de la $i^{\text{ème}}$ couronne. Chaque couronne est pondérée d'un coefficient γ_i, sous la contrainte $\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 = 1$. En suivant un raisonnement identique à celui présenté précédemment, on aboutit à la densité d'énergie libre homogène suivante :

$$g\big(\phi(\boldsymbol{r})\big) = \frac{\lambda}{4} \sum_{i=1}^{3} \gamma_i \frac{\nu_i}{d_i^2} \sum_{n=1}^{m_i} \left\{ \frac{\alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big)^2 - 1}{\alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big)^2} \log\Big[1 - \alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big)^2 \big(2\phi(\boldsymbol{r}) - 1\big)^2\Big] - \big(2\phi(\boldsymbol{r}) - 1\big)^2 \right\} \tag{3.9}$$

dans laquelle les coefficients $\alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big)$ sont définis par :

$$\alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big) = \tanh\left(\frac{\boldsymbol{r}_i(n).\boldsymbol{u}}{w} \right) \tag{3.10}$$

où $\boldsymbol{u}$ est le vecteur unitaire normal aux plans $(h_1k_1l_1)$, et où la somme sur n parcourant les voisins de la couronne i dans (3.9) est restreinte à ceux pour lesquels $\alpha_i\big(\boldsymbol{r}_i(n)\big) \neq 0$.

La stratégie revient à déterminer une combinaison $(\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3)$ pour laquelle les égalités (3.7) sont respectées. La contrainte $\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3 = 1$ permet d'exprimer le coefficient de pondération de la 1ère couronne $\gamma_1 = 1 - \gamma_2 - \gamma_3$ en fonction des deux autres, et le couple (γ_2, γ_3) constitue alors les deux degrés de liberté à identifier.

Deux méthodes numériques ont été proposées dans [30] et [37] pour déterminer γ_2 et γ_3. La première [30] repose sur l'analyse de la forme d'un précipité initialement sphérique au cours de sa dissolution. Elle consiste à choisir le couple (γ_2, γ_3) pour lequel le précipité reste le plus isotrope possible. Le choix est réalisé dans un premier temps à 2D, dans le plan formé par les vecteurs normaux à $(h_1k_1l_1)$ et $(h_2k_2l_2)$, puis à 3D. La seconde méthode [37] repose sur le calcul des énergies d'interface suivant $<h_1k_1l_1>$, $<h_2k_2l_2>$ et $<h_3k_3l_3>$ à l'équilibre. Le calcul de l'énergie d'interface $\sigma(h_1k_1l_1)$ est immédiat, puisque précisément la démarche suivie ici consiste à appliquer le long de la direction $(h_1k_1l_1)$ la procédure utilisée plus haut à 1D, et qui conduit à une énergie d'interface donnée par l'équation (3.6) (avec un terme de gradient discret étendu ici aux 3$^{\text{èmes}}$ voisins) dans laquelle le profil $\phi(\boldsymbol{r})|_{(h_1k_1l_1)}$ le long de la direction $(h_1k_1l_1)$ suit exactement la loi $\phi(n) = \big(1 + \tanh[(nd_1 - x_0)/w]\big)/2$, où l'entier n indice les plans successifs de la famille $(h_1k_1l_1)$ et d_1 est la distance inter-réticulaire associée. Les profils d'équilibre $\phi(\boldsymbol{r})|_{(h_2k_2l_2)}$ et $\phi(\boldsymbol{r})|_{(h_3k_3l_3)}$, et les énergies d'interface associées, sont, quant à eux, déterminés numériquement en minimisant la force motrice $\partial F_{ch}/\partial\phi(\boldsymbol{r})|_{(h_ik_il_i)} = 0$ pour $i \in \{2, 3\}$.

Cette procédure d'optimisation nécessite bien entendu une implémentation numérique du modèle. Pour les mêmes raisons que celles évoquées dans le chapitre 1, les équations d'évolution sont résolues dans le réseau réciproque. Les termes de laplacien, hérités de la dérivée des termes en gradient, sont alors représentés par leurs transformées de Fourier. Nous allons maintenant présenter ces dernières, ce qui nous donnera l'occasion de discuter du rôle de ces termes dans la récupération de l'isotropie.

En considérant le développement du gradient sur les trois premières couronnes de voisins, le laplacien discret qui lui est associé s'écrit :

$$\mathcal{L}_d\big[\phi(\boldsymbol{r})\big] = (1 - \gamma_2 - \gamma_3)\frac{2\nu_1}{d_1^2}\mathcal{O}_1\big[\phi(\boldsymbol{r})\big] + \gamma_2\frac{2\nu_2}{d_2^2}\mathcal{O}_2\big[\phi(\boldsymbol{r})\big] + \gamma_3\frac{2\nu_3}{d_3^2}\mathcal{O}_3\big[\phi(\boldsymbol{r})\big] \tag{3.11}$$

où les $\mathcal{O}_i\big[\phi(\boldsymbol{r})\big]$ sont les opérateurs différentiels discrets définis sur chaque couronne de voisins. Leurs expressions dans les espaces direct et réciproque sont respectivement :

$$\mathcal{O}_i\big[\phi(\boldsymbol{r})\big] = \sum_{n=1}^{m_i}\Big(\phi\big(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{r}_i(n)\big) - \phi(\boldsymbol{r})\Big) \tag{3.12a}$$

$$\mathcal{F}\big\{\mathcal{O}_i\big[\phi(\boldsymbol{r})\big]\big\} = \left[\sum_{n=1}^{m_i}(e^{\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}_i(n)} - 1)\right]\phi(\boldsymbol{k}) = \mathcal{O}_i(\boldsymbol{k})\phi(\boldsymbol{k}) \tag{3.12b}$$

Ainsi, en lui appliquant la transformation de Fourier, l'équation (3.11) devient :

$$\mathcal{F}\big\{\mathcal{L}_d\big[\phi(\boldsymbol{r})\big]\big\} = \mathcal{L}_d(\boldsymbol{k})\phi(\boldsymbol{k}) \tag{3.13}$$

et le laplacien discret s'exprime de la façon suivante dans l'espace réciproque :

$$\mathcal{L}_d(\boldsymbol{k}) = (1 - \gamma_2 - \gamma_3)\frac{2\nu_1}{d_1^2}\mathcal{O}_1(\boldsymbol{k}) + \gamma_2\frac{2\nu_2}{d_2^2}\mathcal{O}_2(\boldsymbol{k}) + \gamma_3\frac{2\nu_3}{d_3^2}\mathcal{O}_3(\boldsymbol{k}) \tag{3.14}$$

La forme des opérateurs différentiels $\mathcal{O}_i(\boldsymbol{k})$ associés à chaque couronne dépend de la position $\boldsymbol{r}_i(n)$ des voisins par rapport à l'origine. Leur forme dépend donc du choix de la discrétisation de l'espace direct. Ainsi, pour une discrétisation cubique simple (CS) nous avons :

$$\mathcal{O}_1^{\mathrm{CS}}(\boldsymbol{k}) = \ 2\big[\cos(k_x) + \cos(k_y) + \cos(k_z) - 3\big] \tag{3.15a}$$

$$\mathcal{O}_2^{\mathrm{CS}}(\boldsymbol{k}) = \ 4\big[\cos(k_x)\cos(k_y) + \cos(k_y)\cos(k_z) + \cos(k_x)\cos(k_z) - 3\big] \tag{3.15b}$$

$$\mathcal{O}_3^{\mathrm{CS}}(\boldsymbol{k}) = \ 8\big[\cos(k_x)\cos(k_y)\cos(k_z) - 1\big] \tag{3.15c}$$

Pour une discrétisation CFC, la grille est générée par les vecteurs d'une maille élémentaire rhomboédrique $(\boldsymbol{a}, \boldsymbol{b}, \boldsymbol{c})$, avec :

$$\boldsymbol{a} = (\boldsymbol{i} + \boldsymbol{k})/2 \tag{3.16a}$$
$$\boldsymbol{b} = (\boldsymbol{i} + \boldsymbol{j})/2 \tag{3.16b}$$
$$\boldsymbol{c} = (\boldsymbol{j} + \boldsymbol{k})/2 \tag{3.16c}$$

où $(\boldsymbol{i}, \boldsymbol{j}, \boldsymbol{k})$ sont les vecteurs d'une base orthogonale avec $\|\boldsymbol{i}\| = \|\boldsymbol{j}\| = \|\boldsymbol{k}\| = d$. Le réseau réciproque associé, cubique centré, est généré par les vecteurs de la base duale $(\boldsymbol{a}^*, \boldsymbol{b}^*, \boldsymbol{c}^*)$ donnés par :

$$\boldsymbol{a}^* = \boldsymbol{i}^* - \boldsymbol{j}^* + \boldsymbol{k}^* \tag{3.17a}$$
$$\boldsymbol{b}^* = \boldsymbol{i}^* + \boldsymbol{j}^* - \boldsymbol{k}^* \tag{3.17b}$$
$$\boldsymbol{c}^* = -\boldsymbol{i}^* + \boldsymbol{j}^* + \boldsymbol{k}^* \tag{3.17c}$$

où $(\boldsymbol{i}^*, \boldsymbol{j}^*, \boldsymbol{k}^*)$ est une base orthogonale avec $\|\boldsymbol{i}^*\| = \|\boldsymbol{j}^*\| = \|\boldsymbol{k}^*\| = 1/d$. Dans ces bases, les positions $\boldsymbol{r}$ dans l'espace et les vecteurs d'onde $\boldsymbol{k}$ ont des coordonnées que nous notons $\boldsymbol{r}(r_a, r_b, r_c)$ et $\boldsymbol{k}(k_a, k_b, k_c)$. Le rhomboèdre élémentaire et la 1ère zone de Brillouin correspondante sont représentés figure 3.2.

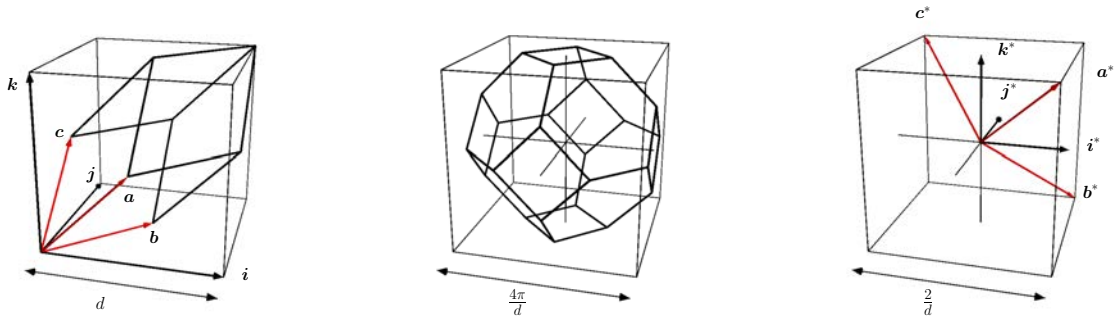


Figure 3.2: Discrétisation cubique à faces centrées. Gauche : maille élémentaire rhomboédrique du réseau direct et vecteurs de la base $(\boldsymbol{a}, \boldsymbol{b}, \boldsymbol{c})$. Milieu : 1ère zone de Brillouin du réseau réciproque cubique centré associé à la grille CFC. Droite : base orthogonale $(\boldsymbol{i}^*, \boldsymbol{j}^*, \boldsymbol{k}^*)$ du réseau réciproque et base $(\boldsymbol{a}^*, \boldsymbol{b}^*, \boldsymbol{c}^*)$ duale de $(\boldsymbol{a}, \boldsymbol{b}, \boldsymbol{c})$.

La définition du laplacien discret (3.14) dans une grille CFC conduit aux opérateurs différentiels :

$$\begin{aligned}\mathcal{O}_1^{\mathrm{CFC}}(\boldsymbol{k}) = \; & 2\big[\cos(k_a) - 1\big] + 2\big[\cos(k_b) - 1\big] + 2\big[\cos(k_c) - 1\big] \\ & + 2\big[\cos(k_a - k_b) - 1\big] + 2\big[\cos(k_b - k_c) - 1\big] + 2\big[\cos(k_a - k_c) - 1\big]\end{aligned} \tag{3.18a}$$

$$\mathcal{O}_2^{\mathrm{CFC}}(\boldsymbol{k}) = \; 2\big[\cos(k_a - k_b - k_c) - 1\big] + 2\big[\cos(-k_a + k_b - k_c) - 1\big] + 2\big[\cos(-k_a - k_b + k_c) - 1\big] \tag{3.18b}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{O}_3^{\mathrm{CFC}}(\boldsymbol{k}) = \; & 2\big[\cos(k_a + k_b) + \cos(2k_a - k_c) + \cos(2k_b - k_c) + \cos(k_a + k_b - 2k_c) - 4\big] \\ & + 2\big[\cos(k_b + k_c) + \cos(2k_b - k_a) + \cos(2k_c - k_a) + \cos(k_b + k_c - 2k_a) - 4\big] \\ & + 2\big[\cos(k_a + k_c) + \cos(2k_a - k_b) + \cos(2k_c - k_b) + \cos(k_a + k_c - 2k_b) - 4\big]\end{aligned} \tag{3.18c}$$

avec,

$$k_i = \frac{2\pi}{L_i}(0, 1, ..., L_{i-1}) \;,\; i \in \{a, b, c\} \tag{3.19}$$

où les entiers L_a, L_b et L_c représentent les nombres de mailles élémentaires rhomboédriques dans l'espace direct le long des directions $\boldsymbol{a}$, $\boldsymbol{b}$ et $\boldsymbol{c}$ respectivement.

Quelle que soit la discrétisation, l'invariance par rotation des propriétés de l'interface étroite est assurée par un couple (γ_2, γ_3) pour lequel l'anisotropie du gradient discret, et donc du laplacien associé, compense celle induite par la nature discrète du réseau.

On peut mettre en évidence cette anisotropie "contrôlée" en développant le laplacien discret (3.14) jusqu'à l'ordre 4 en $\boldsymbol{k}$. Dans le cas d'une discrétisation CS, on obtient :

$$\mathcal{L}_d^{\mathrm{CS}}(\boldsymbol{k})d^2 = -k^2 + \frac{k^4}{12} + \frac{1}{2}\left(\frac{\gamma_2}{2} + \gamma_3 - \frac{1}{3}\right)\left[k_x^2k_y^2 + k_y^2k_z^2 + k_x^2k_z^2\right] + O(k_i^6) \tag{3.20}$$

Ce laplacien est isotrope jusqu'à l'ordre 4 pour un couple (γ_2, γ_3) qui annule les termes croisés $k_i^2k_j^2$ avec $i \neq j$, par exemple $(\gamma_2, \gamma_3) = (4/9, 1/9)$ [90]. En revanche, un couple (γ_2, γ_3) différent déterminé dans [30] induit une anisotropie choisie du laplacien discret qui permet d'obtenir la même vitesse d'interface le long des directions [200], [220] et [111] pour un rapport $d/w = 1$, lors de la dissolution d'un précipité sphérique.

Pour la discrétisation CFC, le développement à l'ordre 4 du laplacien discret, en fonction des composantes (k_x, k_y, k_z) du vecteur $\boldsymbol{k}$ dans la base $(\boldsymbol{i}^*, \boldsymbol{j}^*, \boldsymbol{k}^*)$, donne :

$$\mathcal{L}_d^{\mathrm{CFC}}(\boldsymbol{k})d^2 = -k^2 + \frac{k^4}{48}(1 + 3\gamma_2 + 2\gamma_3) + \frac{1}{48}(1 - 9\gamma_2 - \gamma_3)\left[k_x^2k_y^2 + k_y^2k_z^2 + k_x^2k_z^2\right] + O(k_i^6) \tag{3.21}$$

Les termes croisés, qui brisent l'isotropie, s'annulent par exemple pour le couple $(\gamma_2, \gamma_3) = (1/9, 0)$: le laplacien discret est alors isotrope jusqu'à l'ordre 4. Pour assurer l'isotropie de l'énergie d'interface en imposant l'égalité suivant les directions [200], [111] et [135], les auteurs dans [37] ont montré que le couple $(\gamma_2, \gamma_3) = (0,1785, 0,2935)$ est le choix optimal pour $d/w = 3$. Ce choix génère une perte de sphéricité inférieure à 1% pendant la croissance d'un précipité sphérique, qui devient même inférieure à $0,1\%$ lorsque $d/w = 2$. La méthode de champ de phase S-PFM reproduit la vitesse de dissolution d'un précipité sphérique pilotée par la courbure d'interface avec une précision de $1,7\%$ lorsque $d/w = 3$, bien que l'interface ne soit résolue que par un seul point de grille [37], alors qu'il faudrait 8 points dans l'interface du champ de phase classique pour obtenir le même résultat. La cinétique de dissolution est même confondue avec la limite continue dans le modèle S-PFM avec $d/w = 2$, situation où l'interface reste essentiellement résolue avec un seul point de grille.

3.1.2 Couplage d'un champ conservé et approche multichamps

L'étude d'une transformation de phase dont la cinétique est régie par la diffusion des éléments d'alliage requiert de coupler le champ ϕ non-conservé, qui identifie la nature de la phase, avec un champ de concentration c. Nous souhaitons ici que l'introduction de ce champ ne perturbe pas les propriétés des interfaces obtenues dans le cadre du modèle S-PFM introduit précédemment.

Ainsi, afin que les propriétés de l'interface étroite ne soient régies que par le champ ϕ, ne doit intervenir que le gradient de ce champ, indépendamment de sa structuration discrète présentée ci-dessus. La formulation de Kim-Kim-Suzuki [53] est l'une des approches qui permet cela. Nous la présentons maintenant brièvement, d'abord dans sa version continue.

Formulation continue de la méthode KKS

Dans cette approche, l'état du système en chaque point de l'espace est supposé être un mélange de deux phases, matrice et précipités, de concentrations c_1 et c_2 différentes et associées chacune à une densité d'énergie libre. La pondération de chacune des deux phases est assurée par une fonction monotone $h(\phi)$ qui vérifie simplement $h(0) = 0$ et $h(1) = 1$. La concentration locale c et la densité d'énergie libre $f(c, \phi)$ sont donc écrites sous la forme :

$$c = \big[1 - h(\phi)\big]c_1 + h(\phi)c_2 \tag{3.22a}$$

$$f(c, \phi) = \big[1 - h(\phi)\big]f_1(c_1) + h(\phi)f_2(c_2) + g(\phi) \tag{3.22b}$$

où $f_1(c_1)$ et $f_2(c_2)$ sont les densités d'énergie libre des phases 1 (matrice) et 2 (précipité), respectivement, et $g(\phi)$ est une fonction double-puits qui permet de gérer l'interface.

Puisque les concentrations c_1 et c_2 sont associées à la même espèce chimique, nous devons introduire une contrainte entre ces deux champs car il n'y a en fait qu'un seul degré de liberté associé à cette espèce chimique, sa concentration c donnée par l'équation (3.22a). Cette contrainte est évidemment l'égalité des potentiels chimiques $\mu_1(c_1) = df_1(c_1)/dc_1$ et $\mu_2(c_2) = df_2(c_2)/dc_2$ associés aux énergies libres de chacune des deux phases[2] :

$$\mu_1(c_1) = \mu_2(c_2) \tag{3.23}$$

Il est alors immédiat de vérifier, à l'aide de l'équation (3.22a), que le potentiel chimique $\mu(c)$, défini par $\mu(c) = \partial f(c, \phi)/\partial c$, est donné par :

$$\mu(c) = \mu_1(c_1) = \mu_2(c_2) \tag{3.24}$$

[2]Egalité des potentiels chimiques $\mu_1(c_1)$ et $\mu_2(c_2)$:
Il est très facile de démontrer l'équation (3.23). Considérons un élément de volume ΔV, centré sur un point quelconque, contenant ΔN sites atomiques. Considérons maintenant que l'on remplace, dans cet élément de volume, ΔN_1 atomes de type A par autant d'atomes de type B, *ces échanges ayant tous lieu dans la phase* 1. Au cours de ce processus, la fraction volumique de la phase 1 ne change pas. Autrement dit, le champ ϕ reste constant. D'après l'équation (3.22b), ce processus conduit donc à la variation d'énergie suivante :

$$\Delta F_1 = \big[1 - h(\phi)\big]\frac{df_1}{dc_1}(c_1)\delta c_1 \Delta N V_{at}$$

où δc_1 est la variation de concentration associée à ΔN_1 et V_{at} est le volume atomique. D'après l'équation (3.22a), la variation de concentration δc_1 est reliée à ΔN_1 par :

$$\Delta N_1 = \big[1 - h(\phi)\big]\delta c_1 \Delta N$$

En conséquence, l'échange, dans la phase 1 de ΔN_1 atomes de type A en atomes de type B, entraîne une variation d'énergie libre égale à :

$$\Delta F_1 = \frac{df_1}{dc_1}(c_1)\Delta N_1 V_{at}$$

Evidemment, échanger ΔN_2 atomes de type A en atomes de type B, cette fois-ci dans la phase 2, conduit à une variation d'énergie libre égale à :

$$\Delta F_2 = \frac{df_2}{dc_2}(c_2)\Delta N_2 V_{at}$$

Bien entendu, si $\Delta N_1 = \Delta N_2$, les deux processus doivent conduire à la même variation d'énergie libre, car les atomes de type A ou de type B appartenant aux phases 1 et 2 sont en réalité de même nature :

$$\Delta N_1 = \Delta N_2 \quad \Rightarrow \quad \Delta F_1 = \Delta F_2$$

ce qui conduit à :

$$\frac{df_1}{dc_1}(c_1) = \frac{df_2}{dc_2}(c_2)$$

Notons que cette égalité est valable pour toute distribution des champs de concentration c_1 et c_2. Elle est donc vraie en tout point de l'espace, même quand le système n'est pas à l'équilibre.

Par souci de simplicité, nous avons choisi des densités d'énergies libres $f_1(c_1)$ et $f_2(c_2)$ quadratiques :

$$f_i(c_i) = \frac{A_i}{2}(c_i - c_i^0)^2 \ , \ i \in \{1,2\} \tag{3.25}$$

où A_i est la courbure d'énergie et c_i^0 est la concentration d'équilibre de la phase i. Ce choix permet une résolution analytique simple du système d'équations formé par (3.22a) et (3.23) :

$$c_1(c,\phi) = \big[A_2 c + h(\phi)(A_1 c_1^0 - A_2 c_2^0)\big] \ / \ \big[h(\phi)A_1 + \big(1-h(\phi)\big)A_2\big] \tag{3.26a}$$

$$c_2(c,\phi) = \big[A_1 c - \big(1-h(\phi)\big)(A_1 c_1^0 - A_2 c_2^0)\big] \ / \ \big[h(\phi)A_1 + \big(1-h(\phi)\big)A_2\big] \tag{3.26b}$$

L'énergie libre totale est ainsi une fonctionnelle des champs c et ϕ donnée par :

$$F = \int d^3r \Big\{ g(\phi) + \frac{\lambda}{2}|\nabla\phi|^2 + \big[1-h(\phi)\big]f_1(c_1) + h(\phi)f_2(c_2) \Big\} \tag{3.27}$$

où c_1 et c_2 sont reliées à c et ϕ par les équations (3.26a) et (3.26b). Enfin, les cinétiques d'évolution sont données par les dynamiques dissipatives usuelles :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = M\nabla^2 \frac{\delta F}{\delta c} \tag{3.28a}$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -L\frac{\delta F}{\delta \phi} \tag{3.28b}$$

En prenant en compte les contraintes données par (3.22a) et (3.24), on montre immédiatement que ces équations deviennent :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = M\nabla^2 \mu(c) \tag{3.29a}$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -L\big\{ g'(\phi) - \lambda\nabla^2\phi + h'(\phi)\big[f_2(c_2) - f_1(c_1) - \mu(c)(c_2 - c_1)\big]\big\} \tag{3.29b}$$

Comme nous l'annonçons plus haut, l'intérêt essentiel de la méthode KKS est de laisser l'interface être gérée par la fonction $g(\phi)$ et le préfacteur λ du terme de gradient, malgré le couplage du champ ϕ avec la concentration c. Nous démontrons ce point maintenant, car il faudra nous assurer que cette propriété est maintenue dans la version discrète du modèle. Nous considérons une interface plane à l'équilibre, perpendiculaire à l'axe x :

$$\lim_{x\to-\infty} c(x) = c_1^{\lim} \quad ; \quad \lim_{x\to+\infty} c(x) = c_2^{\lim} \tag{3.30a}$$

$$\lim_{x\to-\infty} \phi(x) = 0 \quad ; \quad \lim_{x\to+\infty} \phi(x) = 1 \tag{3.30b}$$

A l'état stationnaire, l'équation (3.29a) conduit à un potentiel chimique $\mu(c)$ uniforme, ce qui, avec l'équation (3.24), implique que les concentrations c_1 et c_2 sont elles-mêmes uniformes, égales respectivement aux conditions aux limites $c_1^{\lim}$ et $c_2^{\lim}$. Notons que cet état stationnaire ne peut exister que si les conditions aux limites $c_1^{\lim}$ et $c_2^{\lim}$ ont été choisies de manière à ce qu'elles vérifient $\mu_1(c_1^{\lim}) = \mu_2(c_2^{\lim})$. L'équation champ de phase (3.29b) devient alors :

$$g'(\phi) - \lambda\nabla^2\phi + h'(\phi)\big[f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim}) - \mu(c)(c_2^{\lim} - c_1^{\lim})\big] = 0 \tag{3.31}$$

où le terme entre crochets est uniforme. En multipliant cette équation par $d\phi(x)/dx$ et en intégrant de $-\infty$ à $+\infty$, on obtient alors immédiatement :

$$f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim}) - \mu(c)(c_2^{\lim} - c_1^{\lim}) = 0 \tag{3.32}$$

où nous avons utilisé le fait que la fonction double-puits $g(\phi)$ a la même profondeur pour chacune des deux phases ($g(0) = g(1)$) et la propriété de la fonction $h(\phi)$ d'être une fonction de pondération, ce qui implique $\int_0^1 h'(\phi)d\phi = h(1) - h(0) = 1$. Nous obtenons donc finalement :

$$\mu_1(c_1^{\text{lim}}) = \mu_2(c_2^{\text{lim}}) = \frac{f_2(c_2^{\text{lim}}) - f_1(c_1^{\text{lim}})}{c_2^{\text{lim}} - c_1^{\text{lim}}} \tag{3.33}$$

Nous retrouvons ainsi l'équation classique de la tangente commune, qui gère l'équilibre stationnaire d'une interface entre deux phases. Si les densités d'énergie libre $f_1(c_1)$ et $f_2(c_2)$ sont celles présentées dans les équations (3.25), cette équation est résolue, et donc l'interface est stable, si les conditions aux limites choisies vérifient $c_1^{\text{lim}} = c_1^0$ et $c_2^{\text{lim}} = c_2^0$. C'est la raison pour laquelle les concentrations c_1^0 et c_2^0 ont été qualifiées plus haut de "concentrations d'équilibre". Notons en passant que la concentration c n'est pas uniforme, puisqu'elle varie continûment de c_1^0 à c_2^0 par l'intermédiaire de la fonction $h(\phi)$. Finalement, l'équation de champ de phase (3.31) devient alors simplement :

$$g'(\phi) - \lambda\nabla^2\phi = 0 \tag{3.34}$$

ce qui montre bien que le profil d'équilibre de l'interface est uniquement déterminé par la fonction double-puits $g(\phi)$ et le terme de gradient $\lambda|\nabla\phi|^2$. La densité d'énergie de l'interface σ et son épaisseur $2w$ sont donc indépendantes des densités d'énergie libre $f_1(c_1)$ et $f_2(c_2)$. Ce sont là les propriétés que nous cherchions.

Formulation discrète de la méthode KKS

Nous considérons maintenant la version discrète de la méthode KKS. Les équations (3.22a) et (3.22b) restent les mêmes, à la différence près qu'elles ne sont lues que pour les valeurs discrètes des points d'espace :

$$c(n) = \big[1 - h(\phi(n))\big]c_1(n) + h(\phi(n))c_2(n) \tag{3.35a}$$

$$f(c(n), \phi(n)) = \big[1 - h(\phi(n))\big]f_1(c_1(n)) + h(\phi(n))f_2(c_2(n)) + g(\phi(n)) \tag{3.35b}$$

où, d'une manière générale, n est un entier qui indice le point $\boldsymbol{r}_n$. La raison pour laquelle les potentiels chimiques, associés aux deux densités d'énergie libre $f_1(c_1)$ et $f_2(c_2)$, doivent être égaux reste évidemment valable :

$$\frac{df_1}{dc_1}(c_1(n)) = \frac{df_2}{dc_2}(c_2(n)) = \mu(c(n)) \tag{3.36}$$

L'énergie libre totale est maintenant donnée par une somme discrète :

$$F = V_{at}\sum_n \left\{ g(\phi(n)) + \frac{\lambda}{2}|\nabla_d\phi(n)|^2 + \big[1 - h(\phi(n))\big]f_1(c_1(n)) + h(\phi(n))f_2(c_2(n)) \right\} \tag{3.37}$$

où V_{at} est le volume élémentaire associé à un point discret. La notation $\nabla_d\phi$ signifie que ce terme est un gradient *discret* dont l'expression précise ici n'a pas d'importance. Enfin, les équations d'évolution ont la même forme que précédemment, à ceci près que les termes en laplacien sont maintenant remplacés par des laplaciens discrets, que nous notons $\mathcal{L}_d$, associés au gradient discret précédemment évoqué :

$$\frac{\partial c}{\partial t}(n) = M\mathcal{L}_d\big[\mu(c(n))\big] \tag{3.38a}$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t}(n) = -L\big\{g'(\phi(n)) - \lambda\mathcal{L}_d\big[\phi(n)\big] + h'(\phi(n))\big[f_2(c_2(n)) - f_1(c_1(n)) - \mu(c(n))(c_2(n) - c_1(n))\big]\big\} \tag{3.38b}$$

Considérons maintenant une interface plane, perpendiculaire à l'axe x. L'indice n repère maintenant l'abscisse discrète x_n. Les conditions aux limites deviennent évidemment :

$$\lim_{n\to-\infty} c(n) = c_1^{\lim} \quad ; \quad \lim_{n\to+\infty} c(n) = c_2^{\lim} \tag{3.39a}$$

$$\lim_{n\to-\infty} \phi(n) = 0 \quad ; \quad \lim_{n\to+\infty} \phi(n) = 1 \tag{3.39b}$$

A l'état stationnaire, l'équation (3.38a) conduit à un potentiel chimique $\mu(c(n))$ indépendant de n, ce qui implique que les concentrations $c_1(n)$ et $c_2(n)$ sont également indépendantes de n, égales respectivement à $c_1^{\lim}$ et $c_2^{\lim}$. Comme précédemment, cet état stationnaire ne peut exister que si ces conditions aux limites ont été choisies de manière à ce qu'elles vérifient $\mu_1(c_1^{\lim}) = \mu_2(c_2^{\lim})$. Nous anticipons maintenant que l'interface est localisée, ce qu'il faudra vérifier plus loin. Dans la limite d'un nombre infini de sites, l'énergie libre par site ne dépend alors pas de l'énergie de l'interface. Puisque les concentrations c_1 et c_2 sont uniformes et égales à $c_1^{\lim}$ et $c_2^{\lim}$, cette énergie moyenne est donnée par :

$$F_{site} = V_{at}\big\{(1-\bar{h})f_1(c_1^{\lim}) + \bar{h}f_2(c_2^{\lim})\big\} \tag{3.40}$$

où la valeur moyenne $\bar{h}$, définie par $\bar{h} = \lim_{N\to+\infty} \frac{1}{N}\sum_n h(\phi(n))$, est reliée à la concentration moyenne $\bar{c} = \lim_{N\to+\infty} \frac{1}{N}\sum_n c(n)$ par :

$$\bar{c} = (1-\bar{h})c_1^{\lim} + \bar{h}c_2^{\lim} \tag{3.41}$$

A l'état d'équilibre, l'énergie F_{site} doit être stationnaire vis-à-vis de variations infinitésimales de $c_1^{\lim}$ et $c_2^{\lim}$ à concentration moyenne $\bar{c}$ constante, ce qui implique :

$$\frac{1}{V_{at}}\frac{\partial F_{site}}{\partial c_1^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = (1-\bar{h})\frac{df_1}{dc_1}(c_1^{\lim}) + (f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim}))\,\frac{\partial \bar{h}}{\partial c_1^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = 0 \tag{3.42a}$$

$$\frac{1}{V_{at}}\frac{\partial F_{site}}{\partial c_2^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = \bar{h}\frac{df_2}{dc_2}(c_2^{\lim}) + (f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim}))\,\frac{\partial \bar{h}}{\partial c_2^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = 0 \tag{3.42b}$$

L'équation (3.41) nous indique que les dérivées partielles de $\bar{h}$ sont données par :

$$\frac{\partial \bar{h}}{\partial c_1^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = -\frac{1-\bar{h}}{c_2^{\lim} - c_1^{\lim}} \tag{3.43a}$$

$$\frac{\partial \bar{h}}{\partial c_2^{\lim}}\bigg|_{\bar{c}=cte} = -\frac{\bar{h}}{c_2^{\lim} - c_1^{\lim}} \tag{3.43b}$$

Les équations (3.42a) et (3.42b) deviennent donc :

$$\frac{df_1}{dc_1}(c_1^{\lim}) - \frac{f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim})}{c_2^{\lim} - c_1^{\lim}} = 0 \tag{3.44a}$$

$$\frac{df_2}{dc_2}(c_2^{\lim}) - \frac{f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim})}{c_2^{\lim} - c_1^{\lim}} = 0 \tag{3.44b}$$

Nous retrouvons donc de nouveau qu'à l'équilibre, l'interface est gérée par la règle de la tangente commune[3]

$$\frac{df_1}{dc_1}(c_1^{\lim}) = \frac{df_2}{dc_2}(c_2^{\lim}) = \frac{f_2(c_2^{\lim}) - f_1(c_1^{\lim})}{c_2^{\lim} - c_1^{\lim}} \tag{3.45}$$

[3]La raisonnement que nous venons de suivre ici, pour démontrer la règle de la tangente commune, aurait pu être utilisé plus haut quand nous avons traité de ce même point dans la version continue du modèle

A l'état d'équilibre, l'équation du champ de phase (3.38b) devient donc :

$$g'(\phi(n)) - \lambda \mathcal{L}_d\big[\phi(n)\big] = 0 \tag{3.46}$$

Nous aboutissons à la même conclusion que celle obtenue dans le cas continu : dans le modèle KKS discret, le profil de l'interface et son énergie ne dépendent que de la fonction double-puits $g(\phi)$ et du gradient discret $\lambda|\nabla_d\phi|^2$. Enfin, en raison de la forme en double-puits de la fonction $g(\phi)$ et des conditions aux limites imposées (voir (3.39a) et (3.39b)), il est évident que l'équation (3.46) génère une interface d'épaisseur finie, ce qui justifie *a posteriori* l'hypothèse faite plus haut concernant la localisation de l'interface.

En conclusion, le modèle KKS discret garde exactement les mêmes propriétés que sa version continue, quelle que soit la manière dont est définie la nature discrète du modèle. Nous montrons ainsi que le modèle S-PFM gardera toutes ses propriétés malgré le couplage du champ de phase ϕ avec le champ de concentration c.

Approche multi-champs

Comme nous l'avons mentionné au chapitre 1, la description d'une microstructure γ/γ' dans la démarche KKS requiert en fait 4 champs de phase, chacun associé à l'un des 4 variants de la phase ordonnée γ'. La présence de plusieurs champs de phase nécessite de réécrire la fonctionnelle d'énergie libre chimique de la façon suivante :

$$F_{ch} = \sum_{\boldsymbol{r}} \left\{ f(c, \phi_1, ..., \phi_4) + \frac{\lambda}{2} \sum_{p=1}^{4} \sum_{i=1}^{3} \gamma_i \frac{\nu_i}{d_i^2} \sum_{n=1}^{m_i} \big\| \phi_p\big(\boldsymbol{r} + \boldsymbol{r}_i(n)\big) - \phi_p(\boldsymbol{r}) \big\|^2 \right\} \tag{3.47}$$

La densité d'énergie libre homogène y est définie par une somme sur tous les champs ϕ_p d'une expression similaire à l'équation (3.22b) à laquelle on ajoute la somme des produits croisés du carré des champs ϕ_p pour pénaliser leur recouvrement, soit :

$$f(c, \phi_1, ..., \phi_4) = \sum_{p=1}^{4} \left\{ \big[1 - h(\phi_p)\big] f_1(c_1) + h(\phi_p) f_2(c_2) + g(\phi_p) + \frac{\beta}{2} \sum_{q>p} \phi_p^2 \phi_q^2 \right\} \tag{3.48}$$

Le coefficient β est associé à l'énergie des parois d'antiphase, dont le coût favorise la présence de deux interfaces entre matrice et précipités plutôt qu'une interface entre deux variants de translation.

L'expression de la dérivée partielle qui entre dans la force motrice $\delta F_{ch}/\delta\phi_p$ est similaire à celle de l'équation (3.38b) au terme de pénalisation près :

$$\left.\frac{\partial f}{\partial \phi_p}\right|_{c, \phi_{q\neq p}} = h'(\phi_p)\big\{ f_2(c_2) - f_1(c_1) + \mu(c)[c_1 - c_2] \big\} + g'(\phi_p) + \beta\phi_p \sum_{q\neq p} \phi_q^2 \tag{3.49}$$

3.1.3 Couplage avec l'élasticité

L'approche KKS est également avantageuse lorsqu'on couple forces motrices chimique et élastique. Choisissons en effet de faire porter l'élasticité par le champ de concentration. Cela signifie que le tenseur propre ε^0_{ij} ne dépend de $\boldsymbol{r}$ que par l'intermédiaire de la concentration $c(\boldsymbol{r})$ et qu'il en est de même avec l'éventuelle variation spatiale des constantes élastiques. Nous écrivons donc, avec une notation un peu abusive :

$$\varepsilon^0_{ij}(\boldsymbol{r}) = \varepsilon^0_{ij}(c(\boldsymbol{r})) \tag{3.50a}$$

$$\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r}) = \lambda_{ijkl}(c(\boldsymbol{r})) \tag{3.50b}$$

Quand l'équilibre mécanique est atteint, l'énergie élastique est donc de la forme :

$$E_{el} = \int d^3r \; f_{el}(\sigma^a_{ij}, \{\varepsilon^{eq}_{ij}(\boldsymbol{r})\}, c(\boldsymbol{r})) \tag{3.51}$$

où f_{el} est la densité d'énergie élastique locale, σ^a_{ij} est une éventuelle contrainte externe et $\varepsilon^{eq}_{ij}(\boldsymbol{r})$ est le champ de déformation qui vérifie l'équilibre mécanique. L'énergie libre totale devient donc :

$$F_{tot} = V_{at} \sum \left\{ g(\phi) + \frac{\lambda}{2} |\nabla_d \phi|^2 + \big[1 - h(\phi)\big] f_1(c_1) + h(\phi) f_2(c_2) + f_{el}(\sigma^a_{ij}, \{\varepsilon^{eq}_{ij}(\boldsymbol{r})\}, c) \right\} \tag{3.52}$$

Par souci de simplicité, nous ne considérons ici qu'un seul champ de phase ϕ - la généralisation à plusieurs champs est immédiate - et nous omettons l'indice n.

Suivons maintenant le même raisonnement que dans la note de bas de page 2. Si, dans la phase 1, on échange ΔN_1 atomes de type A par des atomes de type B dans un élément de volume où il y a ΔN sites atomiques, nous avons la variation d'énergie suivante :

$$\Delta F_1 = (1 - h(\phi)) \frac{df_1}{dc_1} \delta c_1 \Delta N V_{at} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \frac{\partial c}{\partial c_1} \delta c_1 \Delta N V_{at} \tag{3.53}$$

où la variation de concentration δc_1 est reliée à ΔN_1 par $\Delta N_1 = (1 - h(\phi)) \delta c_1 \Delta N$. Or, puisque :

$$c = (1 - h(\phi)) c_1 + h(\phi) c_2 \tag{3.54}$$

nous avons $\partial c / \partial c_1 = 1 - h(\phi)$. Nous obtenons donc :

$$\Delta F_1 = \left(\frac{df_1}{dc_1} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \right) (1 - h(\phi)) \delta c_1 \Delta N V_{at} \tag{3.55}$$

ce qui conduit à :

$$\Delta F_1 = \left(\frac{df_1}{dc_1} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \right) \Delta N_1 V_{at} \tag{3.56}$$

En suivant le même raisonnement, on montre évidemment qu'échanger, dans la phase 2, ΔN_2 atomes de type A par autant d'atomes de type B conduirait à la variation d'énergie suivante :

$$\Delta F_2 = \left(\frac{df_2}{dc_2} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \right) \Delta N_2 V_{at} \tag{3.57}$$

Les atomes des phases 1 et 2 étant de même nature, $\Delta N_1 = \Delta N_2$ doit conduire à $\Delta F_1 = \Delta F_2$, ce qui implique :

$$\frac{df_1}{dc_1} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} = \frac{df_2}{dc_2} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \tag{3.58}$$

Nous obtenons donc de nouveau l'égalité suivante :

$$\frac{df_1}{dc_1}(c_1) = \frac{df_2}{dc_2}(c_2) \tag{3.59}$$

Par souci de clarté, nous introduisons les notations suivantes :

$$f_{ch}(c, \phi) = (1 - h(\phi)) f_1(c_1) + h(\phi) f_2(c_2) + g(\phi) \tag{3.60a}$$

$$\mu_{ch}(c) = \frac{\partial f_{ch}}{\partial c}(c, \phi) \tag{3.60b}$$

$$\mu_{el}(c) = \frac{\partial f_{el}}{\partial c}(\sigma^a_{ij}, \{\varepsilon^{eq}_{ij}(\boldsymbol{r})\}, c) \tag{3.60c}$$

La densité d'énergie libre $f_{ch}(c,\phi)$ correspond donc à la partie "chimique" de la densité d'énergie. Le potentiel chimique total est donc :

$$\mu(c) = \mu_{ch}(c) + \mu_{el}(c) \tag{3.61}$$

A l'aide des équations (3.54) et (3.59), on trouve immédiatement que la partie "chimique" $\mu_{ch}(c)$ du potentiel chimique vérifie :

$$\mu_{ch}(c) = \frac{df_1}{dc_1}(c_1) = \frac{df_2}{dc_2}(c_2) \tag{3.62}$$

En conséquence, les concentrations c_1 et c_2 vérifient les mêmes équations que celles obtenues en l'absence d'énergie élastique (voir les équations (3.26a) et (3.26b) dans le cas présent où les densités d'énergie f_1 et f_2 sont données par l'équation (3.25)). Nous concluons ce paragraphe avec les équations d'évolution. La cinétique du champ de concentration est donnée par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = M\mathcal{L}_d\big[\mu_{ch}(c) + \mu_{el}(c)\big] \tag{3.63}$$

L'évolution du champ c est donc contrôlée par une force motrice d'origine chimique *et* une force motrice d'origine élastique. Quant à l'équation d'évolution du champ ϕ, nous avons :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -L\frac{\delta F_{tot}}{\delta \phi} = -L\big\{g'(\phi) - \lambda\mathcal{L}_d\big[\phi\big] + h'(\phi)\big[f_2(c_2) - f_1(c_1) - \mu_{ch}(c)(c_2 - c_1)\big]\big\} \tag{3.64}$$

où nous avons tenu compte des équations (3.54) et (3.62). Nous retrouvons donc la même équation que celle obtenue en l'absence d'élasticité, à ceci près que n'intervient que la partie "chimique" $\mu_{ch}(c)$ du potentiel chimique et non le potentiel chimique total.

3.1.4 Stabilité du schéma mécanique

En champ de phase S-PFM, la variation abrupte des champs aux interfaces étroites requiert un schéma de résolution de l'équilibre mécanique particulièrement stable. L'étude de la stabilité d'un schéma numérique est réalisée sur les opérateurs différentiels qui interviennent dans la résolution, comme mentionné au chapitre 1. Certains schémas décrits dans la littérature reposent sur la méthode des grilles décalées, afin d'éliminer les instabilités numériques pouvant induire une oscillation des champs mécaniques [95]. Parmis ceux-là, nous présentons le schéma proposé dans [80], qui présente l'avantage important de définir l'ensemble des tenseurs élastiques (constantes élastiques, contraintes, tenseurs de déformation totale, tenseurs de déformation propre) sur les mêmes sites d'un sous-réseau.

Considérons un espace discrétisé selon deux grilles CS décalées l'une par rapport à l'autre d'un vecteur $d(1/2, 1/2, 1/2)$. La grille principale porte les modules élastiques, les contraintes et les déformations, et la grille secondaire porte les déplacements. Chaque voxel $\boldsymbol{r}$ de la grille principale est divisé en huit sous-voxels cubiques. Ces sous-voxels sont indexés relativement à $\boldsymbol{r}$ par $\boldsymbol{s} = (s_x, s_y, s_z)$, dont les composantes $s_i = \pm 1$ repèrent leur position dans le voxel. En considérant les composantes de déplacements en unités d, les transformations de Fourier des champs respectivement définis sur les grilles principale et décalée sont :

$$\varphi^{\boldsymbol{s}}(\boldsymbol{k}) = \frac{1}{N}\sum_{\boldsymbol{r}} \varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x, r_y, r_z)e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} \;\; ; \;\; u_i(\boldsymbol{k}) = \frac{1}{N}\sum_{\boldsymbol{r}} u_i\Big(r_x + \frac{1}{2}, r_y + \frac{1}{2}, r_z + \frac{1}{2}\Big)e^{-\mathrm{i}\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} \tag{3.65}$$

où $\varphi^{\boldsymbol{s}}(\boldsymbol{r})$ un champ défini sur la grille principale et N le nombre total de voxels. Le décalage de la grille secondaire intervient dans la transformation de Fourier des déplacements.

L'énergie élastique de la microstructure est définie par la somme sur tous les sous-voxels de la densité d'énergie associée à un sous-voxel :

$$E_{el} = \frac{1}{2}\sum_{\boldsymbol{r}}\left(\frac{d}{2}\right)^3\sum_{\boldsymbol{s}}\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\left[\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{ij}(\boldsymbol{r})-\varepsilon^0_{ij}\Delta c(\boldsymbol{r})\right]\left[\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{kl}(\boldsymbol{r})-\varepsilon^0_{kl}\Delta c(\boldsymbol{r})\right]-V\sigma^a_{ij}\overline{\varepsilon}_{ij} \tag{3.66}$$

où le dernier terme $V\sigma^a_{ij}\overline{\varepsilon}_{ij}$ est associé à la contrainte appliquée. Nous nous intéressons à la définition des opérateurs différentiels qui résulte du choix de la discrétisation. Cette étape précède la résolution numérique de l'équilibre mécanique, décrite au paragraphe 1.1.2.2 du chapitre 1. Considérons trois opérateurs de différences finies, respectivement associés aux directions cubiques de la discrétisation, soit :

$$D_1\Big[\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)\Big] = \varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)-\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x-1,r_y,r_z) \tag{3.67a}$$

$$D_2\Big[\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)\Big] = \varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)-\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y-1,r_z) \tag{3.67b}$$

$$D_3\Big[\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)\Big] = \varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z)-\varphi^{\boldsymbol{s}}(r_x,r_y,r_z-1) \tag{3.67c}$$

En l'illustrant sur les composantes $\delta\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{11}(\boldsymbol{r})$ et $\delta\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{12}(\boldsymbol{r})$ du tenseur des déformations hétérogènes, définie à l'équation (1.15) du chapitre 1, ces opérateurs définissent $\delta\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{ij}(\boldsymbol{r})$ en fonction des déplacements :

$$\delta\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{11}(\boldsymbol{r}) = D_1\left[u_1\Big(r_x+\frac{1}{2},r_y+\frac{s_y}{2},r_z+\frac{s_z}{2}\Big)\right] \tag{3.68a}$$

$$\delta\varepsilon^{\boldsymbol{s}}_{12}(\boldsymbol{r}) = \frac{1}{2}\left\{D_1\left[u_2\Big(r_x+\frac{1}{2},r_y+\frac{s_y}{2},r_z+\frac{s_z}{2}\Big)\right]+D_2\left[u_1\Big(r_x+\frac{s_x}{2},r_y+\frac{1}{2},r_z+\frac{s_z}{2}\Big)\right]\right\} \tag{3.68b}$$

La minimisation de l'énergie élastique par rapport à $u_i(r_x+1/2,r_y+1/2,r_z+1/2)$ conduit à :

$$\begin{aligned}\sum_{\boldsymbol{s}}\Big\{&D_1\Big[\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i1}\big(r_x+1,\,r_y+(1-s_y)/2,\,r_z+(1-s_z)/2\big)\Big]\\&+D_2\Big[\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i2}\big(r_x+(1-s_x)/2,\,r_y+1,\,r_z+(1-s_z)/2\big)\Big]\\&+D_3\Big[\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i3}\big(r_x+(1-s_x)/2,\,r_y+(1-s_y)/2,r_z\,+1\big)\Big]\Big\}=0\end{aligned} \tag{3.69}$$

ce qui correspond dans l'espace réciproque à :

$$\sum_{\boldsymbol{s}}\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_1(\boldsymbol{k})\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i1}(\boldsymbol{k})+\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_2(\boldsymbol{k})\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i2}(\boldsymbol{k})+\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_3(\boldsymbol{k})\sigma^{\boldsymbol{s}}_{i3}(\boldsymbol{k})=0 \tag{3.70}$$

avec les opérateurs différentiels :

$$\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_1(\boldsymbol{k}) = [e^{\mathrm{i}kx}-1]e^{\mathrm{i}ky(1-s_y)/2}e^{\mathrm{i}kz(1-s_z)/2} \tag{3.71a}$$

$$\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_2(\boldsymbol{k}) = e^{\mathrm{i}kx(1-s_x)/2}[e^{\mathrm{i}ky}-1]e^{\mathrm{i}kz(1-s_z)/2} \tag{3.71b}$$

$$\mathcal{D}^{\boldsymbol{s}}_3(\boldsymbol{k}) = e^{\mathrm{i}kx(1-s_x)/2}e^{\mathrm{i}ky(1-s_y)/2}[e^{\mathrm{i}kz}-1] \tag{3.71c}$$

La stabilité mathématique du schéma est immédiatement vérifiée, étant donné qu'il n'existe pas de vecteur d'onde $\boldsymbol{k}\neq\boldsymbol{0}$ qui annule simultanément les opérateurs (3.71a) à (3.71c) dans la 1ère zone de Brillouin du réseau réciproque du réseau CS.

Dans la continuité de la résolution décrite au chapitre 1 où la méthode de point fixe a été présentée, la déformation homogène $\overline{\varepsilon}_{ij}^{(n+1)}$ et les déplacements $u_k^{(n+1)}(\boldsymbol{k})$ à l'itération $(n+1)$ se déduisent de la déformation hétérogène $\delta\varepsilon_{kl}^{\boldsymbol{s}(n)}(\boldsymbol{r})$ à l'itération (n) de la manière suivante :

$$\overline{\varepsilon}_{ij}^{(n+1)} = \overline{S}_{ijkl}\Big[\sigma_{kl}^a + \lambda'_{klmn}\big(\varepsilon_{mn}^0\langle\Delta c^2(\boldsymbol{r})\rangle - \langle\frac{1}{8}\sum_{\boldsymbol{s}}\delta\varepsilon_{mn}^{\boldsymbol{s}(n)}(\boldsymbol{r})\Delta c(\boldsymbol{r})\rangle\big)\Big] \tag{3.72a}$$

$$u_k^{(n+1)}(\boldsymbol{k}) = \mathcal{G}_{ki}(\boldsymbol{k})\frac{1}{8}\sum_{\boldsymbol{s}}\mathcal{D}_j^{\boldsymbol{s}}(\boldsymbol{k})\mathcal{F}\Big\{\lambda_{ijkl}(\boldsymbol{r})\big[\overline{\varepsilon}_{kl} - \varepsilon_{kl}^0\Delta c(\boldsymbol{r})\big] + \lambda'_{ijkl}\Delta c(\boldsymbol{r})\delta\varepsilon_{kl}^{\boldsymbol{s}(n)}(\boldsymbol{r})\Big\} \tag{3.72b}$$

où l'opérateur de Green est défini par son inverse :

$$\mathcal{G}_{ik}^{-1}(\boldsymbol{k}) = \overline{\lambda}_{ijkl}\frac{1}{8}\sum_{\boldsymbol{s}}\mathcal{D}_j^{\boldsymbol{s}}(\boldsymbol{k})\mathcal{D}_l^{*\boldsymbol{s}}(\boldsymbol{k}) \tag{3.73}$$

Le schéma proposé dans [80] et présenté dans cette section est stable et par conséquent adapté à la résolution de l'équilibre mécanique d'une microstructure avec des interfaces étroites. La somme sur les sous-voxels $\boldsymbol{s}$ à l'équation (3.72b) entraîne cependant un coût en temps de calcul, sur lequel le schéma pourrait être amélioré.

A. Finel a récemment montré que le seul moyen de s'affranchir de la description en sous-voxels sans affecter la stabilité de la résolution consiste à discrétiser la microstructure selon deux grilles CFC décalées (A. Finel, à venir). Cette discrétisation conduit à des opérateurs différentiels différents de ceux identifiés aux équations (3.71a) à (3.71c). Les grilles décalées respectivement CS et CFC sont illustrées sur la figure 3.3.

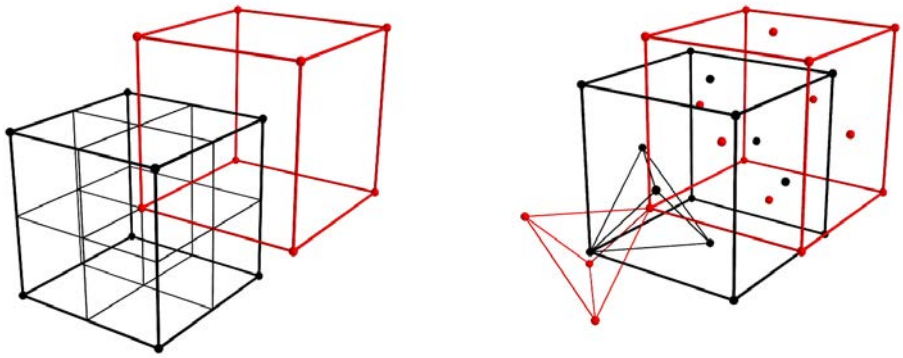


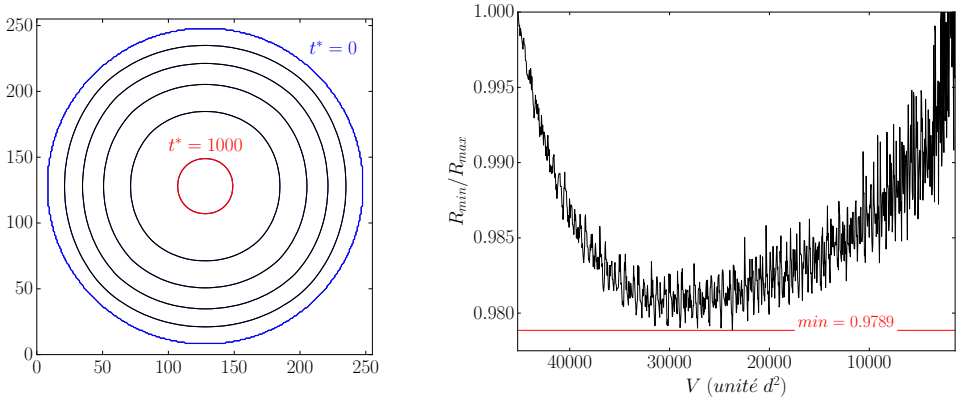
Figure 3.3: Illustrations des grilles CS décalées avec sous-voxels (gauche) et des grilles CFC décalées (droite). Pour les grilles CFC, chaque voxel de la grille principale est au centre d'un tétraèdre formé par les voxels de la grille secondaire et réciproquement.

3.2 Calibration du laplacien discret

La méthode de champ de phase S-PFM, permettant la modélisation de microstructures avec des interfaces étroites, a été présentée dans la section précédente. Nous avons notamment décrit comment une pondération juste du laplacien affranchit presque totalement la simulation des effets de la friction de réseau, en assurant une invariance par rotation précise de l'interface étroite [37]. Afin de modéliser des microstructures à grande échelle, c'est à dire avec un grand nombre de précipités, nous choisissons $d/w = 2$ pour lequel l'interface a une épaisseur $2w$ égale au pas de discrétisation d. Nous présentons dans cette section la calibration du laplacien qui a été réalisée pour ce choix d'épaisseur, et nous illustrons l'efficacité de la pondération sur la dissolution et la croissance de précipités isolés.

La calibration du laplacien a été optimisée selon la procédure définie dans [30], en simulant la décroissance d'un disque de rayon initial $32d$ sur une grille CS de 128×128 pixels. Le précipité est décrit par un champ ϕ non-conservé, et décroît sous l'effet de sa courbure. L'énergie d'interface est prise telle que $\sigma = 20$ mJ.m^{-2}, et la direction [200] est choisie pour recevoir l'invariance par translation. Les opérateurs du laplacien sont pondérés de sorte que la forme du précipité reste la plus isotrope possible pendant la décroissance. Cette optimisation minimisant l'anisotropie de forme pendant la dissolution a conduit à l'identification du couple $(\gamma_2, \gamma_3) = (0, 4766, 0)$.

L'efficacité de cette pondération est illustrée à la figure 3.4 par une simulation de la décroissance à 2D d'un précipité de rayon initial $120d$ sur une grille CS de 256×256 pixels. Sur la figure 3.4, les contours du précipité sont superposés à différents instants pour visualiser l'évolution de sa forme au cours du temps. Les contours aux instants initial et final sont tracés en bleu et en rouge.



Superposition des contours

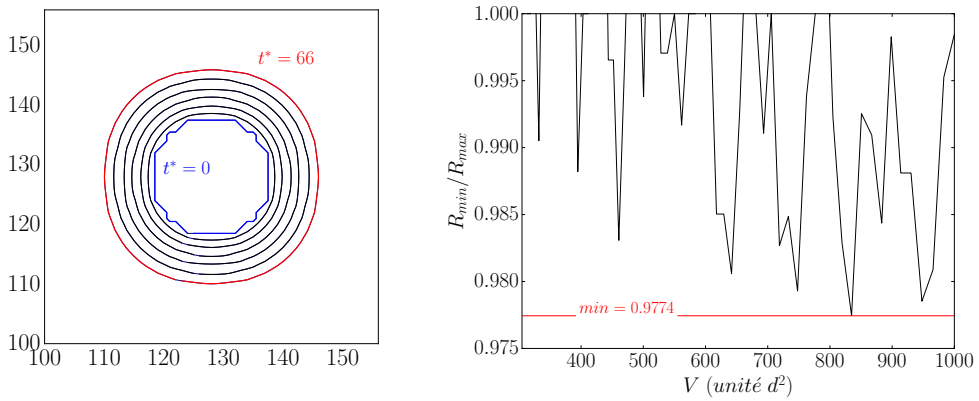
R_{min}/R_{max} en fonction de la taille V

FIGURE 3.4: Dissolution d'un précipité sphérique, de rayon initial $R_{ini} = 120d$, sous l'effet de sa courbure. Les contours du précipité sont superposés à différents instants de la dissolution, et l'évolution du ratio R_{min}/R_{max} avec V repèrent la perte de sphéricité.

Les rayons minimum et maximum du précipité sont mesurés à chaque instant de la simulation, et le ratio R_{min}/R_{max} est tracé en fonction du volume du précipité. L'évolution de ce ratio permet de quantifier la perte de sphéricité du précipité pendant sa décroissance. La valeur minimale du ratio R_{min}/R_{max} mesurée correspond à $0,9789$. La pondération du laplacien induit donc une perte de sphéricité de l'ordre de 2% pendant la décroissance du précipité.

Cette valeur est supérieure à celles obtenues dans [37] pour $d/w = 3$ et $d/w = 2$ sur une grille CFC, et dans [30] pour $d/w = 1$ sur une grille CS. Dans ces derniers travaux, les pertes de sphéricité mesurées pour les pondérations choisies sont inférieures à 1%. La perte d'isotropie est ici un peu plus importante. Il y a donc lieu d'analyser si celle-ci est acceptable, au regard des tailles atteintes par les précipités dans les simulations multi-précipités analysées par la suite.

Dans les simulations multi-précipités à 2D présentées dans la section suivante, les tailles des précipités qui croissent sans coaguler avec un voisin de même variant restent inférieures à $1000\,d^2$. Afin d'étudier si la perte d'isotropie, résultant du choix (γ_2, γ_3), est acceptable pour les tailles inférieures à $1000\,d^2$, nous simulons la croissance d'un précipité décrit par un champ ϕ non-conservé et sans élasticité. La croissance est provoquée par une inclinaison du potentiel en faveur du domaine $\phi = 1$: le terme $\Delta f h(\phi)$ est retranché à l'énergie libre F avec $h(\phi) = 3\phi^2 - 2\phi^3$ et $\Delta f/A = 0,075$, où $A = \lambda d^{-2}$. Le précipité a un rayon initial de $10d$ et sa croissance est simulée sur une grille CS de 256×256 pixels. Le résultat de cette simulation est présenté sur la figure 3.5. De même que pour la figure 3.4, l'évolution de la forme est suivie en superposant les contours du précipité à différents instants, et la perte de sphéricité est repérée par l'évolution du ratio R_{min}/R_{max} en fonction de V.



Superposition des contours

R_{min}/R_{max} en fonction de la taille V

Figure 3.5: Croissance d'un précipité sphérique, de rayon initial $R_{ini} = 10d$, induite par une inclinaison du potentiel en faveur de $\phi = 1$. Les contours du précipité sont superposés à différents instants, et sa perte de sphéricité est suivie par l'évolution de R_{min}/R_{max} avec V.

Sur la figure 3.5, le précipité croît jusqu'à une taille proche de $1000\,d^2$ en conservant une forme sphéroïdale quasi-isotrope. L'évolution de R_{min}/R_{max} montre une décroissance globale du ratio à mesure que le précipité croît, qui reste cependant supérieure à $0,9774$. Au cours de la croissance du précipité, la pondération (γ_2, γ_3) induit ainsi une perte de sphéricité légèrement supérieure à 2 %. Nous concluons de l'observation de la figure 3.5 que la perte de sphéricité est acceptable pour les tailles de précipités qui vont être visitées dans les simulations de la section suivante.

Nous complétons cette étude préliminaire par une simulation de la croissance d'un précipité cohérent dans une matrice sursaturée, en élasticité homogène. Nous nous plaçons dans le cadre de l'approche KKS décrite à la section 3.1.2, et pour laquelle un champ c conservé est couplé à ϕ. Les concentrations d'équilibre sont choisies telles que $c^0_\gamma = 0,1$ et $c^0_{\gamma'} = 0,25$ dans la matrice et dans le précipité respectivement. Le ratio des courbures des potentiels des phases est $A_{\gamma'}/A_\gamma = 10$ et nous choisissons $A_\gamma/A = 50$.

Pour assurer que l'évolution du précipité soit régie par la diffusion de c, le coefficient cinétique sans dimension $\widetilde{L}$ pour l'évolution de ϕ est choisi 20 fois supérieur à la mobilité $\widetilde{M}$ adimensionnée. Dans le cadre de la loi de Vegard, la composante diagonale de la déformation libre isotrope est choisie telle que $\varepsilon_0 = 0,02$. Dans l'approximation de l'élasticité homogène, les constantes élastiques sont $C_{11} = 197$ GPa, $C_{12} = 144$ GPa et $C_{44} = 90$ GPa. Le précipité a une forme carrée de côté $6d$ à l'instant initial, et le résultat de cette simulation est présenté sur la figure 3.6.

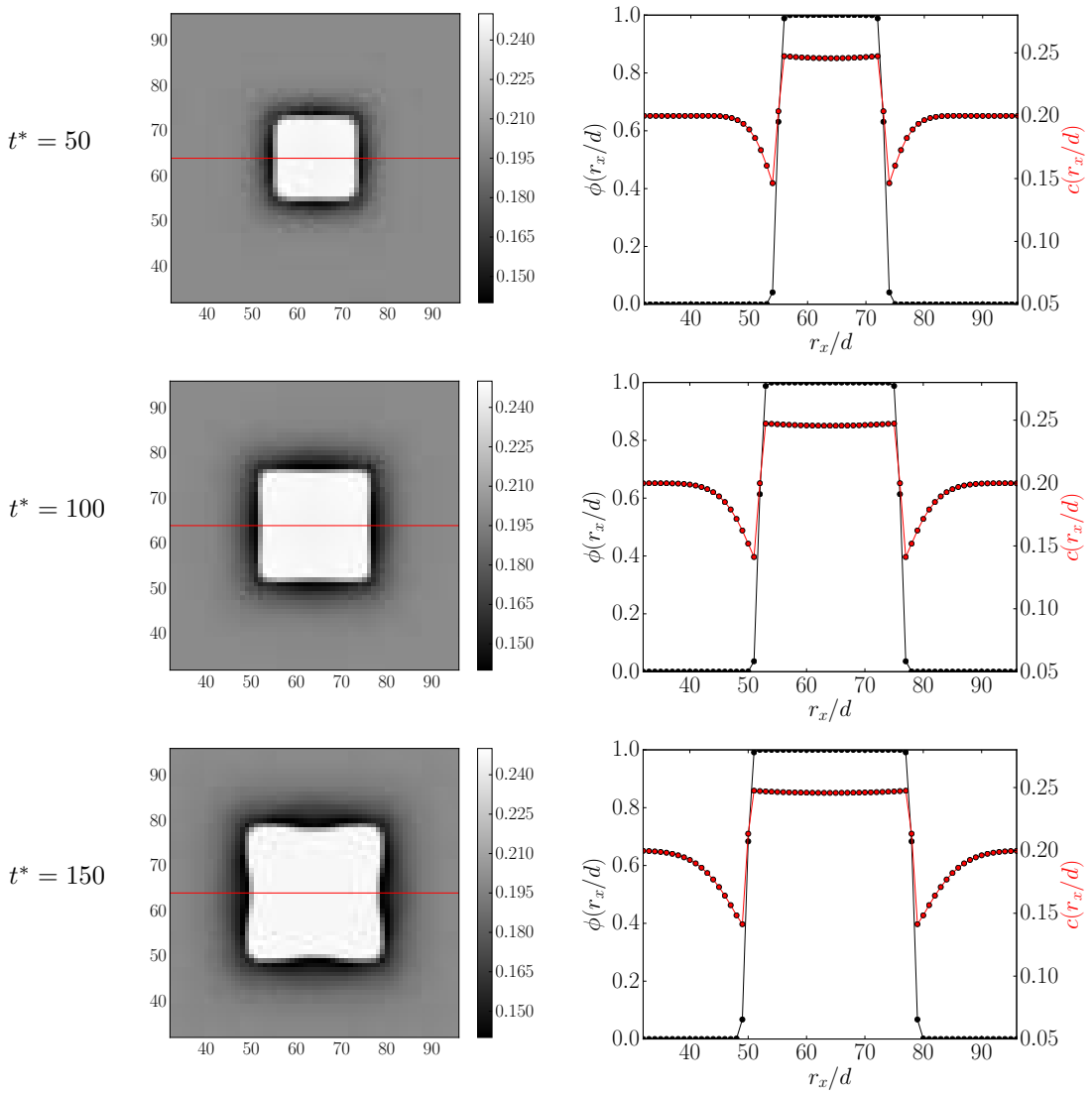


FIGURE 3.6: Croissance d'un précipité cubique, de côté $c_{ini} = 6d$, induite par une sursaturation $c_\infty = 0,20$ dans la matrice et en présence d'élasticité.

La champ c est présenté à différents instants de la croissance du précipité, avec les profils horizontaux correspondants des champs ϕ et c. Le précipité croît avec une forme cuboïdale caractéristique de l'élasticité dans les superalliages monocristallins. L'évolution couplée des champs c et ϕ est immédiatement visible sur leurs profils, dans lesquels les interfaces étroites ont bien une épaisseur égale au pas de discrétisation d.

3.3 Modélisation de microstructures à grande échelle

Dans les sections précédentes de ce chapitre, la méthode de champ de phase S-PFM a été présentée, et une validation de la calibration choisie pour le laplacien discret a été réalisée. Il a été montré que la pondération retenue induit une perte de sphéricité de l'ordre de 2 %, acceptable pour les petites tailles de précipités. Dans cette section, nous simulons l'évolution de microstructures à grande échelle, c'est à dire avec un grand nombre de précipités. Nous cherchons ainsi à identifier les possibilités de la méthode S-PFM pour l'analyse statistique de l'évolution des microstructures, et plus spécifiquement en présence d'élasticité. Ce travail a pour objectif de réaliser une étude statistique de la dynamique des défauts d'alignement des précipités γ'. Nous introduisons dans nos simulations quatre champs ϕ_p pour décrire les variants de translation de la phase γ'. Le recouvrement de ces champs est pénalisé par le terme décrit à l'équation (3.49) avec $\beta = 20$. Les concentrations d'équilibre et les courbures de potentiels sont les mêmes que ceux considérés à la section précédente. Nous verrons que les temps de calculs atteints permettent une analyse quantitative des simulations et prouvent l'étendue des possibilités offertes par la méthode de champ de phase S-PFM.

Dans un premier temps, des simulations de microstructures avec et sans élasticité sont réalisées. Nous comparons leurs évolutions et nous déterminons les distributions en classes de tailles des précipités. La forme précise de ces distributions démontre les statistiques obtenues sur l'évolution de ces microstructures, dans nos simulations. Dans un second temps, nous nous intéressons à l'influence de l'inhomogénéité en C' sur l'évolution d'une microstructure à grande échelle. La forme et l'arrangement des précipités sont étudiés et discutés au regard du travail réalisé dans [28]. Enfin, les simulations sont analysées par le calcul des phases ψ_x et ψ_y associées aux microstructures, conformément à la démarche présentée au paragraphe 1.2.3.2 du chapitre 1. Les modulations du fondamental de ces microstructures sont décomposées afin d'identifier les défauts de périodicité. L'influence de l'inhomogénéité en C' sur l'évolution des densités de défauts est étudiée.

3.3.1 Statistiques des effets élastiques sur la taille des précipités

Considérons des microstructures de $20,48 \times 20,48\ \mu\text{m}^2$, discrétisées sur une grille CS de 2048×2048 pixels avec un pas $d = 10$ nm. Les grandeurs physiques sans dimensions utilisées dans le modèle sont les mêmes que celles introduites pour l'étude préliminaire de calibration du laplacien. La condition initiale des calculs correspond à un désordre aléatoire sur les champs c et ϕ_p, avec une concentration moyenne $\bar{c} = 0,20$. Les ratios des échelles d'énergie élastique sur chimique valent $\chi = 0$ pour la microstructure sans élasticité, et $\chi = 0,16$ pour celle avec élasticité (voir l'équation (1.62) pour la définition du paramètre χ). Les simulations sont présentées en fonction d'un temps t^* sans dimension, dont une unité correspond à 2500 pas de temps Δt. Les microstructures sont représentées à $t^* = 5$ et $t^* = 85$, pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ respectivement, aux figures 3.7 et 3.8.

A $t^* = 85$ sur la microstructure de la figure 3.7, le plus grand précipité a une taille $V = 2638\, d^2$ supérieure à celle de $1000\, d^2$ discutée précédemment. Cette taille résulte d'évènements de coagulations de précipités décrits par le même champ ϕ_p, et n'est pas issue d'une croissance isolée. La forme des petits précipités est globalement isotrope, ce qui prouve à nouveau que la perte de sphéricité induite par le choix (γ_2, γ_3) est acceptable dans nos simulations. Au même instant, le plus grand précipité dans la microstructure avec élasticité a une taille $V = 1657\, d^2$. Pour comparer les microstructures, des régions de $2,56 \times 2,56\ \mu\text{m}^2$ (256×256 pixels) sont zoomées à différents instants sur la figure 3.9.

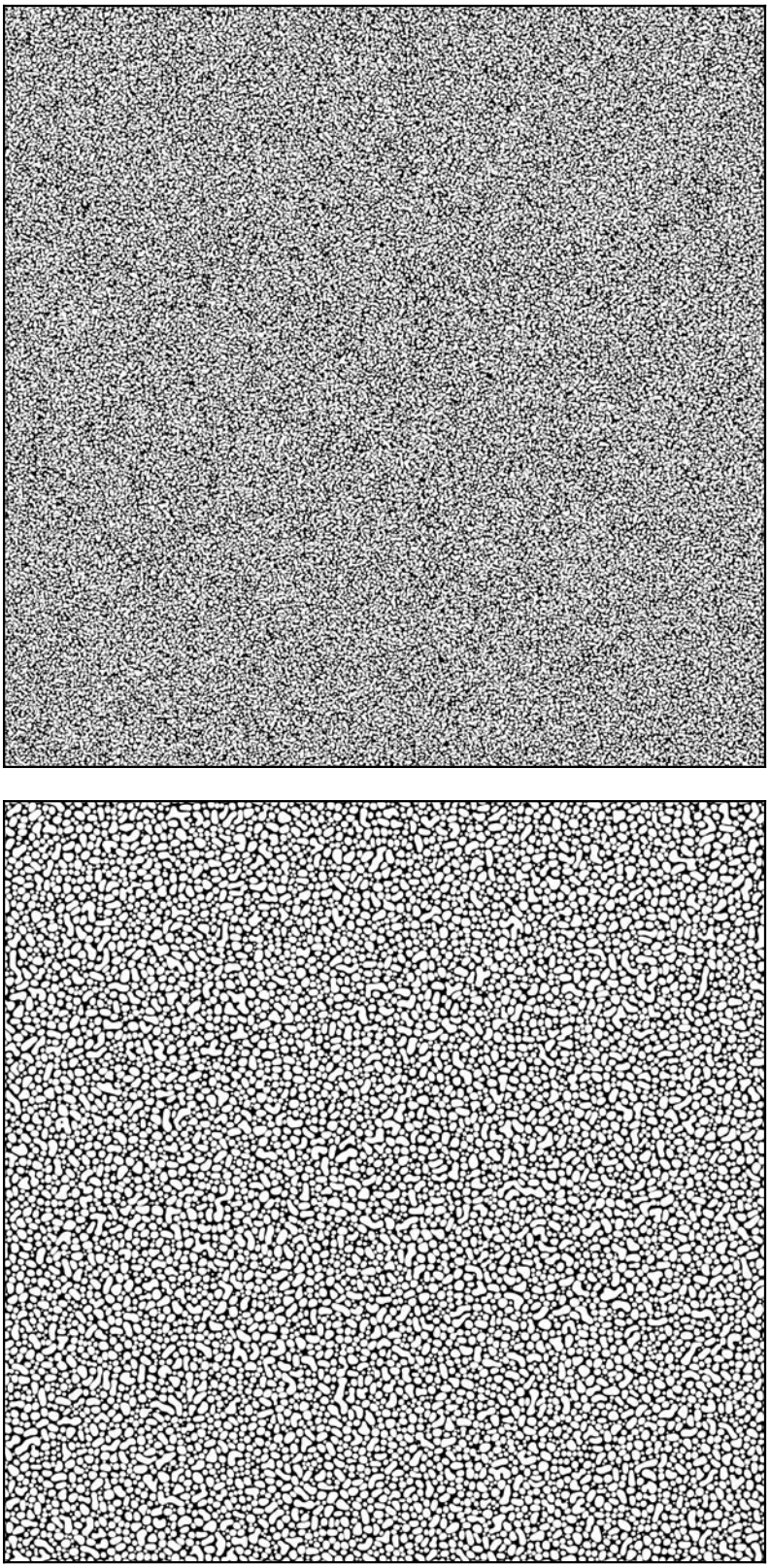


FIGURE 3.7: Evolution d'une microstructure étendue sans élasticité aux instants $t^* = 5$ et $t^* = 85$.

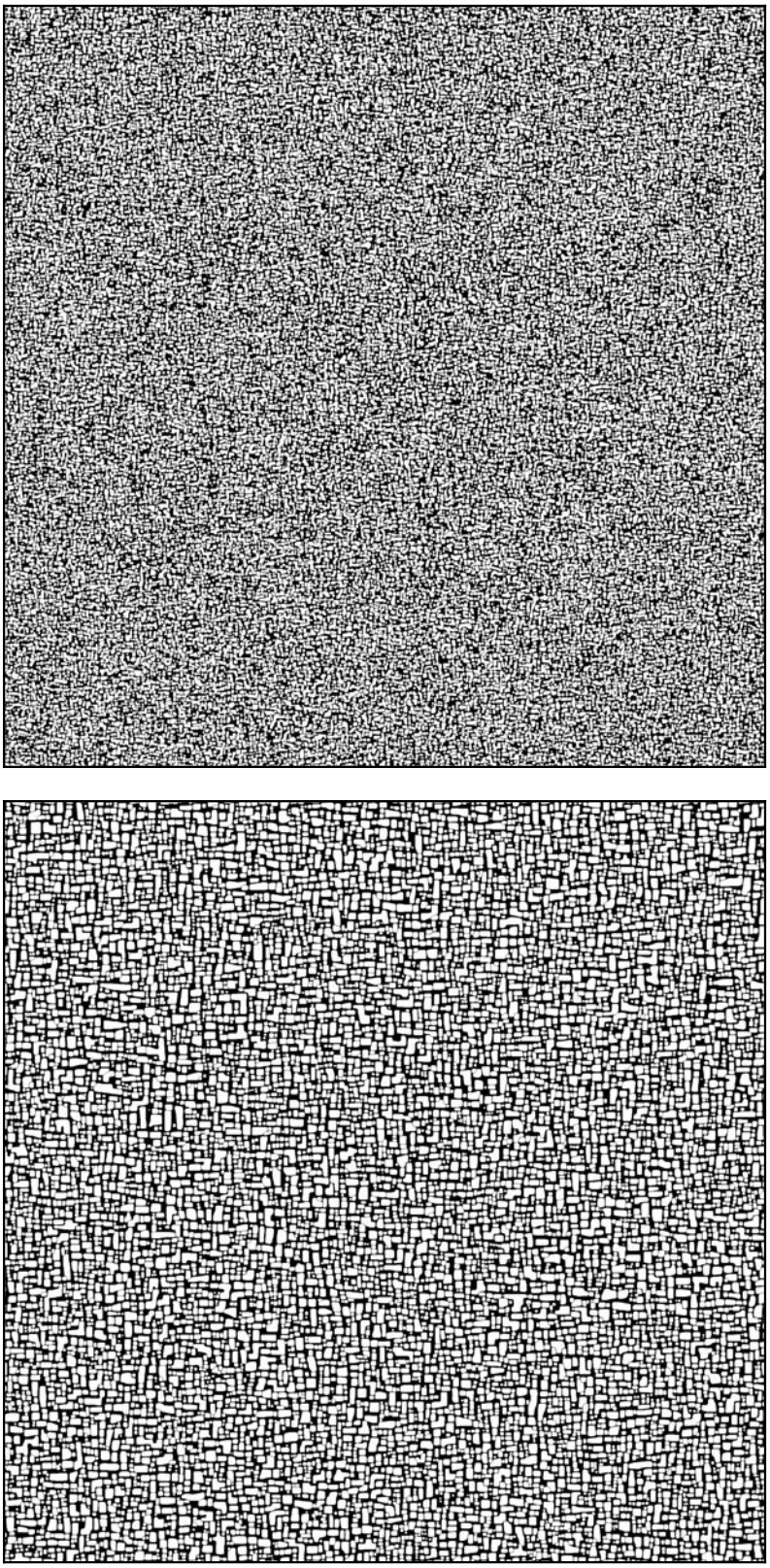


Figure 3.8: Evolution d'une microstructure étendue en élasticité homogène aux instants $t^* = 5$ et $t^* = 85$.

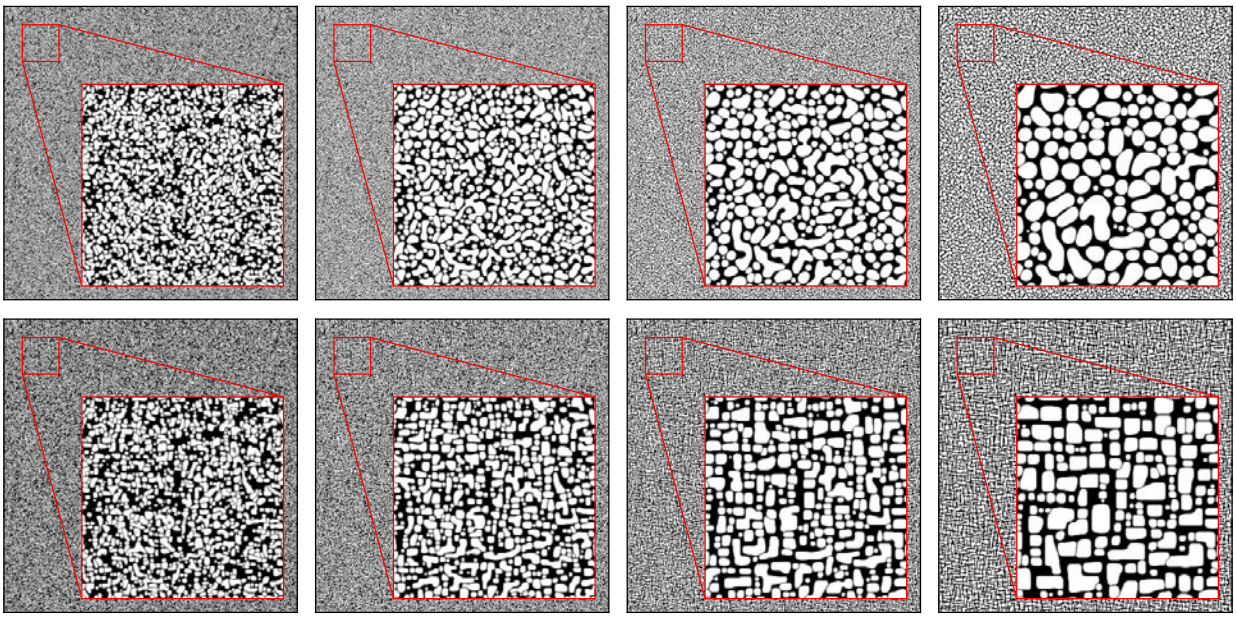


FIGURE 3.9: Comparaison des microstructures étendues sans élasticité et en élasticité homogène, à différents instants. Des régions de 256×256 pixels sont zoomées pour faciliter la visualisation.

Sur la figure 3.9, des différences entre les microstructures avec et sans élasticité sont visibles dès $t^* = 1$, où une fraction volumique plus grande est observée lorsque $\chi = 0$. A $t^* = 5$, les deux microstructures possèdent de nombreux précipités de formes irrégulières. Des morphologies cuboïdales et des alignements de précipités sont cependant visibles à cet instant dans la microstructure pour $\chi = 0,16$. Le nombre de précipités de morphologies irrégulières diminue dans les deux microstructures entre $t^* = 5$ et $t^* = 20$, et de nouveaux alignements de précipités se sont formés dans la microstructure avec élasticité. A l'instant final, la microstructure sans élasticité est majoritairement constituée de précipités isotropes, et les formes irrégulières proviennent de coagulations de précipités décrits par le même champ ϕ_p. Les précipités de la microstructure avec élasticité possèdent une morphologie cuboïdale et sont globalement alignés selon les directions élastiquement molles. Notons que des structures coudées sont visibles dans l'arrangement des précipités à $t^* = 85$, dans la région zoomée. Ces structures traduisent l'influence du mode transverse instable selon $[\zeta, \zeta, 0]$, comme il a été discuté au chapitre précédent.

En l'absence d'élasticité, la fraction volumique d'équilibre incohérent est donnée par la relation $f_v = (\bar{c} - c_\gamma^0)/(c_{\gamma'}^0 - c_\gamma^0)$ et correspond à $0,667$ d'après les concentrations moyenne et d'équilibre choisies. En présence d'élasticité, les champs élastiques issus de la cohérence des interfaces affectent l'équilibre des phases, et la fraction volumique de l'équilibre cohérent peut être estimée selon l'approche décrite G. Boussinot dans [15]. Cette méthode consiste à approcher les décalages des concentrations d'équilibre induits par la contribution élastique en faisant une hypothèse sur la forme des précipités. La morphologie de précipité qui minimise l'énergie élastique est celle d'une plaquette infinie en élasticité homogène. La normale $\boldsymbol{n}_0$ à cette plaquette est la direction selon laquelle $B(\boldsymbol{n}_0) = B_{\min}$ [48].

En considérant une configuration de la microstructure en plaquettes et la loi de Vegard, l'énergie élastique s'exprime exactement en fonction de $B_{\min}$, du taux de phase γ' et des concentrations c_γ et $c_{\gamma'}$ de l'équilibre cohérent. En supposant de plus que les énergies libres chimiques des phases sont paraboliques de courbures A_γ et $A_{\gamma'}$, et que les variations de concentrations d'équilibre sont faibles, les concentrations de l'équilibre cohérent sont approchées par [15] :

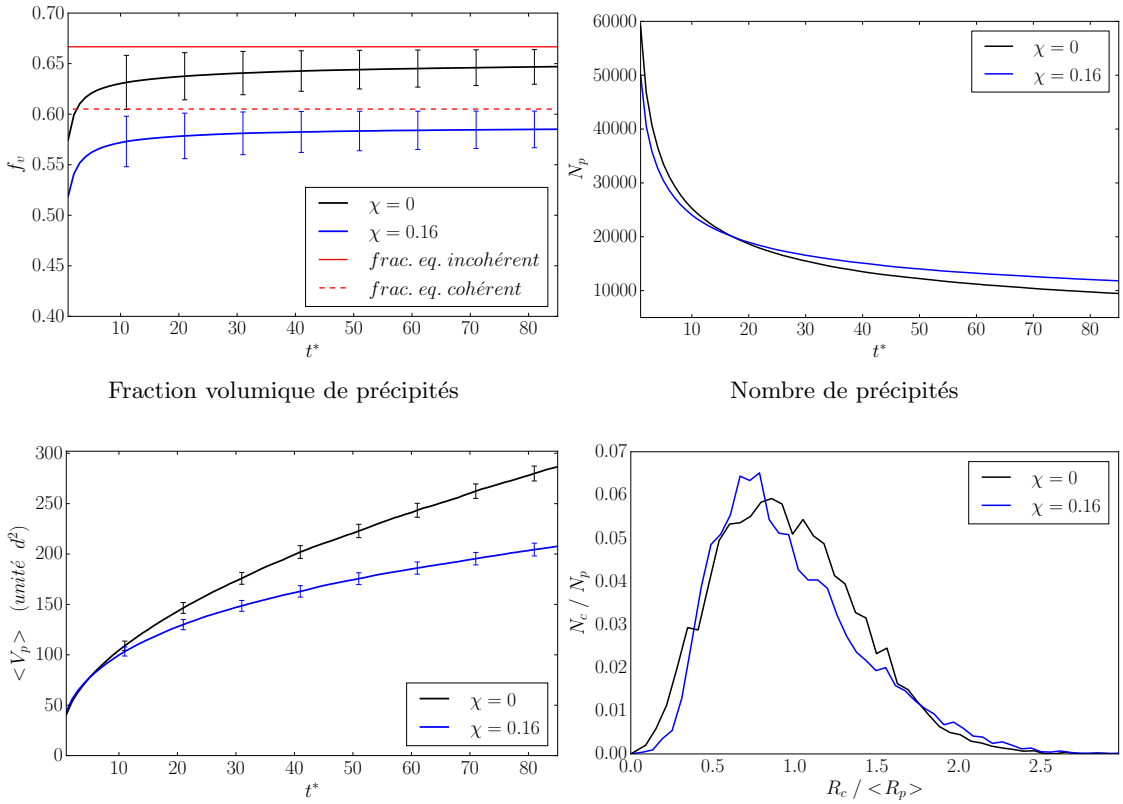
$$c_\gamma = c_\gamma^0 + \Delta c_\gamma \quad ; \quad \Delta c_\gamma = \frac{\left(c_{\gamma'}^0 - c_\gamma^0\right) B_{\min}/2}{A_\gamma + \left(1 + A_\gamma/A_{\gamma'}\right) B_{\min}/2} \tag{3.74a}$$

$$c_{\gamma'} = c_{\gamma'}^0 + \Delta c_{\gamma'} \quad ; \quad \Delta c_{\gamma'} = -\frac{\left(c_{\gamma'}^0 - c_\gamma^0\right) B_{\min}/2}{A_{\gamma'} + \left(1 + A_{\gamma'}/A_\gamma\right) B_{\min}/2} \tag{3.74b}$$

Les paramètres chimiques et élastiques considérés précédemment conduisent à des décalages des concentrations d'équilibre de $\Delta c_\gamma = 0,02763$ et $\Delta c_{\gamma'} = -0,00276$. Dans l'approximation considérée, les concentrations d'équilibre incohérent de $c_\gamma^0 = 0,1$ et $c_{\gamma'}^0 = 0,25$ deviennent $c_\gamma^0 = 0,1276$ et $c_{\gamma'}^0 = 0,2472$ pour l'équilibre cohérent d'une microstructure en plaquettes. En accord avec les observations dans [15], la contribution élastique réduit la zone de biphasage du diagramme de phase. Ainsi, en considérant les paramètres physiques introduits dans nos simulations, la fraction volumique de l'équilibre cohérent d'une microstructure en plaquettes est $0,605$.

Observons maintenant l'évolution du nombre, de la fraction volumique et du volume moyen des précipités dans les microstructures des figures 3.7 et 3.8. Le nombre de précipités est déterminé en comptant les domaines isolés sur chaque champ ϕ_p, après un seuillage à une valeur $\phi = 0,5$. La fraction volumique est mesurée par la somme de tous les champs ϕ_p sans seuillage, divisée par la taille du système. A cette mesure est associée une incertitude que nous pouvons estimer en analysant le cas simple d'un précipité isolé en forme de disque de rayon R et avec une interface d'épaisseur $2w$. Calculer la fraction du disque en sommant le champ ϕ entraîne une incertitude sur la fraction volumique proportionnelle à w/R. Cette erreur est négligeable lorsque la taille du précipité est grande devant l'épaisseur de l'interface. Elle peut cependant avoir une influence non négligeable lorsque R et $2w$ sont comparables, ce qui est le cas des précipités observés dans nos simulations. Il est donc nécessaire de prendre en compte cette incertitude, dont l'ordre de grandeur est donné par $d/4R_{moy}$, où R_{moy} est le rayon équivalent associé au volume moyen des précipités.

Les évolutions de fraction volumique, du nombre et du volume moyen des précipités dans les microstructures pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ sont comparées sur la figure 3.10. Les fractions des équilibres cohérent et incohérent sont repérées par les lignes rouges discontinue et continue, et des barres d'erreurs sont indiquées sur les mesures de la fraction volumique et du volume moyen. Entre $t^* = 0$ et $t^* = 1$ pour les deux microstructures, la fraction volumique de précipités chute dans les premiers pas de temps. Cette diminution rapide de f_v, absente de la figure 3.10, correspond à la dissolution d'un grand nombre de petits précipités sous-critiques. Leur dissolution enrichit fortement la matrice dès les premiers instants des simulations, et entraîne la croissance des précipités ayant survécu. Ce régime de croissance est observé sur les courbes d'évolution de f_v où les fractions croissent rapidement jusqu'à $t^* = 10$ puis plus lentement. A l'instant final $t^* = 85$, les fractions volumiques pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ sont respectivement de $0,647 \pm 0,017$ (à comparer avec $0,667$ théoriquement) et $0,585 \pm 0,18$ (à comparer avec $0,605$).



Fraction volumique de précipités

Nombre de précipités

Volume moyen des précipités

Distributions de tailles à $t^* = 85$

FIGURE 3.10: Evolution des microstructures étendues sans élasticité et en élasticité homogène.

Dans les premiers instants des simulations, les microstructures pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ possèdent plusieurs dizaines de milliers de précipités. Le nombre de précipités diminue plus rapidement en présence d'élasticité jusqu'à l'instant $t^* = 16$, où la tendance s'inverse. A l'instant final $t^* = 85$, la microstructure sans élasticité compte 9470 précipités, tandis que la microstructure élastiquement homogène en compte 11815. Ces nombres sont à rapprocher de ceux généralement accessibles par les méthodes de champ de phase classiques, qui sont de l'ordre de la centaine de précipités. Ainsi, la méthode S-PFM permet d'accéder à des informations réellement statistiques sur l'évolution de microstructures.

Le volume moyen $\langle V_p \rangle$ des précipités croît légèrement plus lentement dans la microstructure sans élasticité jusqu'à $t^* = 5$. Au delà de cet instant, $\langle V_p \rangle$ croît sensiblement plus lentement dans la microstructure élastiquement homogène. Les volumes moyens à l'instant final sont $\langle V_p \rangle = 286,6 \pm 7,5\, d^2$ et $\langle V_p \rangle = 207,7 \pm 6,4\, d^2$ pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ respectivement. Les différences d'évolution du nombre et du volume moyen des précipités sont expliquées par les effets de l'élasticité. Pour $\chi = 0$, l'évolution de la microstructure est régie par la sursaturation dans la matrice et par le mûrissement d'Ostwald, bien que le régime de coalescence ne soit pas encore pleinement atteint. Le mûrissement d'Ostwald consiste en un échange de matière des régions où l'interface a une forte courbure vers celles où la courbure est plus faible par diffusion dans la matrice. Les précipités les plus larges croissent à mesure que les plus petits se dissolvent, et la force motrice pour cette évolution est la diminution de l'énergie d'interface.

Ce mécanisme est modifié en présence d'élasticité : l'évolution de la microstructure est régie par la diminution de la somme de l'énergie d'interface et de l'énergie élastique. Ce couplage peut induire un mûrissement inverse, où un petit précipité peut croître aux dépens d'un plus large si sa position dans l'arrangement est énergétiquement favorable vis-à-vis de l'élasticité [85]. De manière plus générale, les courbes de la figure 3.10 montre une cinétique d'évolution microstructurale plus lente en présence d'élasticité.

Le rayon équivalent de chaque précipité est calculé dans les microstructures pour $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$ à l'instant final $t^* = 85$. Les distributions correspondantes sont présentées dans la figure 3.10 avec 50 classes de tailles, et sont normalisées pour comparer leur forme. Une comparaison quantitative de leur forme est possible en calculant l'écart-type σ des distributions, ainsi que leur asymétrie γ_1 et leur kurtosis γ_2. Ces deux derniers coefficients sont respectivement déterminés à partir des moments centrés d'ordre 3 et 4 des distributions. Ils quantifient l'écart de leur forme à celle d'une distribution normale, dont l'asymétrie et le kurtosis valent respectivement 0 et 3. Une asymétrie positive $\gamma_1 > 0$ (resp. négative $\gamma_1 < 0$) indique que la distribution est décalée à gauche (resp. droite) de la médiane et possède une queue de distribution étalée vers la droite (resp. gauche). Le kurtosis est également appelé coefficient d'acuité ou d'aplatissement, et l'excès de kurtosis est obtenu en retranchant au γ_2 celui de la loi normale : $\gamma_2 - 3$. Un excès de kurtosis positif $\gamma_2 - 3 > 0$ (resp. négatif $\gamma_2 - 3 < 0$) décrit une distribution plus élevée (resp. aplatie) que la distribution normale. La moyenne, l'écart-type, l'asymétrie et l'excès de kurtosis des distributions de rayons équivalents des précipités sont repertoriés au tableau 3.1.

Microstructure	$\chi = 0$	$\chi = 0,16$
Moyenne	$8,81\,d$	$7,57\,d$
Ecart-type	$3,74\,d$	$3,33\,d$
Asymétrie (γ_1)	$0,51$	$0,87$
Excès de kurtosis ($\gamma_2 - 3$)	$0,15$	$0,56$

Tableau 3.1: Etude statistique des distributions de rayons équivalents à $t^* = 85$.

Les grandeurs présentées au tableau 3.1 décrivent une moyenne et un écart-type supérieurs pour la distribution avec $\chi = 0$. Les deux distributions sont décalées à gauche de leur médiane, avec cependant une asymétrie supérieure pour $\chi = 0,16$. L'excès de kurtosis est relativement faible pour $\chi = 0$, ce qui traduit la proximité de l'acuité de la distribution à celle d'une distribution normale. La forte acuité de la distribution lorsque $\chi = 0,16$ est visible à la figure 3.10 malgré la normalisation.

Dans une certaine mesure, la distribution de la microstructure sans élasticité peut être discutée vis-à-vis des distributions obtenues dans [36] et dans [52]. Dans ces travaux, la méthode de champ de phase est utilisée pour l'étude du mûrissement d'Ostwald de particules solides immergées dans un liquide, respectivement à 2D et 3D. Les simulations dans [36] sont réalisées sur des grilles de 512×512 pixels, et le phénomène de coagulation, non désiré, est limité par l'introduction d'un grand nombre de champs d'orientation, précisémment 30, afin de restreindre les évènements de coagulation entre particules représentées par le même champ de phase. Dans [52], les coagulations entre particules sont interdites dans le modèle et les simulations sont conduites sur des grilles de $400 \times 400 \times 400$ voxels. Le point commun de ces travaux est l'étude de l'influence du taux de phase sur l'asymétrie de la distribution, et également sur son excès de kurtosis dans [36].

Dans [36] et [52] respectivement, les microstructures comptent jusqu'à 200 et 3000 particules à l'instant final, dont les tailles sont distribuées en 15 et 23 classes, respectivement. En considérant dans ces travaux les taux de phases comparables à celui de notre calcul, les asymétries des distributions sont respectivement négatives et positives dans [52] et [36]. De plus, l'excès de kurtosis dans [36] est négatif pour des taux de phase de $0,5$ et $0,7$. Si l'asymétrie que nous mesurons dans notre simulation est cohérente avec celle décrite dans [36], les différences d'excès de kurtosis avec [36] et d'asymétrie avec [52] peuvent avoir plusieurs origines. La première est la coagulation des particules, qui est interdite dans [52] et restreinte dans [36], tandis que dans nos simulations, dans lesquelles les 4 champs de phases correspondent à la présence des 4 variants de la phase γ', la coagulation correspond à des évènements physiques réels qu'il faut reproduire. La seconde est que le régime de coalescence est atteint dans les travaux discuté précédemment, ce qui n'est pas tout à fait le cas de notre simulation.

Nous concluons ce paragraphe en notant que pour les deux microstructures simulées avec $\chi = 0$ et $\chi = 0,16$, le grand nombre de précipités permet une définition précise de la forme des distributions de tailles, en comparaison à celles obtenues avec les méthodes de champ de phase classiques. Les distributions obtenues par simulations S-PFM sont comparables à celles mesurées expérimentalement. Notamment, la distribution de tailles de la figure 3.10, pour la microstructure avec élasticité, possède une asymétrie cohérente avec celle de distributions de tailles de précipités γ' déterminées expérimentalement dans des superalliages à base de nickel [67].

3.3.2 Statistiques de l'influence de l'inhomogénéité en C'

Les simulations conduites dans la sous-section précédente ont montré que la méthode S-PFM permet d'accéder à des informations statistiques sur l'évolution de microstructures. Dans cette section, nous étudions l'influence de l'inhomogénéité en C' sur l'évolution de la microstructure γ/γ' à grande échelle, dans la continuité du travail réalisé par M. Cottura dans [26].

Considérons deux microstructures de $10,24 \times 10,24$ μm^2 discrétisées sur une grilles CS de 1024×1024 pixels, avec un pas de grille $d = 10$ nm. Les paramètres physiques sans dimensions introduits dans le modèle sont les mêmes que ceux utilisés précédemment. La première microstructure est élastiquement homogène avec les constantes élastiques considérées précédemment. Dans le cas de la microstructure élastiquement inhomogène, les modules élastiques sont ceux répertoriés au tableau 3.2, et entraînent une inhomogénéité en C' telle que $\Delta C' = 50\,\%$. La condition initiale est un désordre sur les champs, et les microstructures pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ sont représentées aux instants $t^* = 10$, 50 et 170 à la figure 3.11.

Phase	C_{11}	C_{12}	C_{44}
γ	197	144	90
γ'	193	113	132

Tableau 3.2: Modules élastiques des phases en GPa pour lesquels $\Delta C' = 50\,\%$.

Aux trois instants considérés à la figure 3.11, les microstructures homogène et inhomogène sont proches en termes de formes et d'arrangements des précipités. Dans un premier temps, nous réalisons une comparaison statistique des tailles, des formes et des alignements de pécipités. Dans un second temps, nous nous intéressons à l'évolution des densités de défauts de périodicité dans ces deux microstructures.

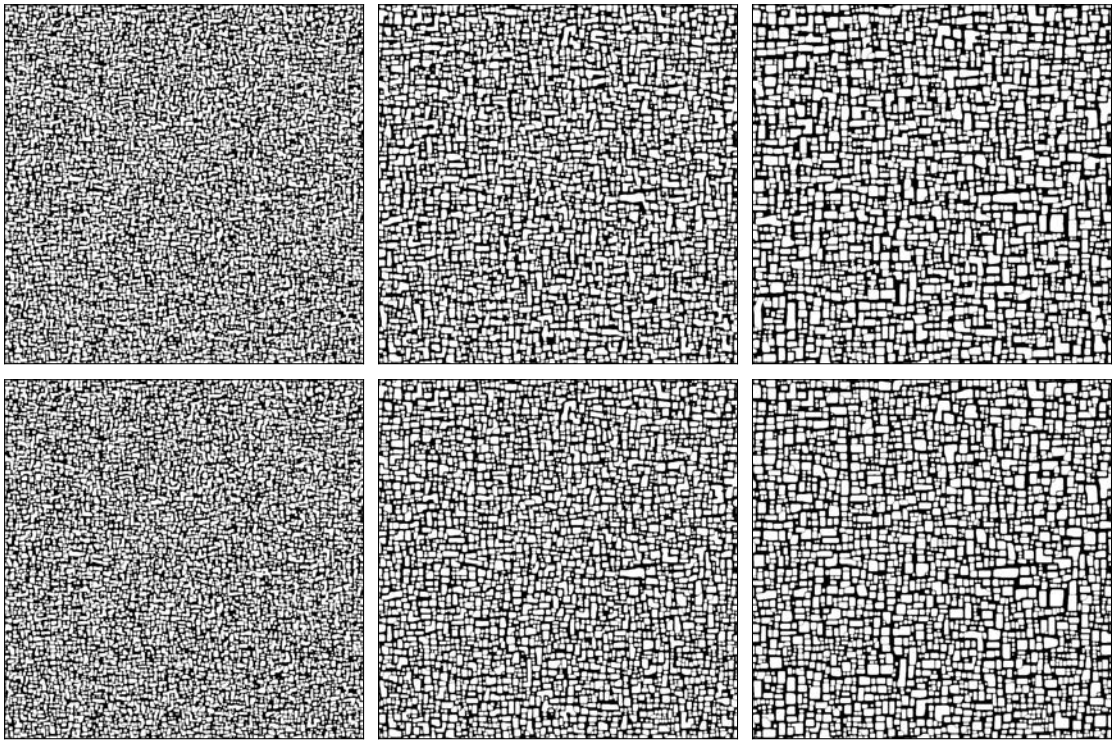


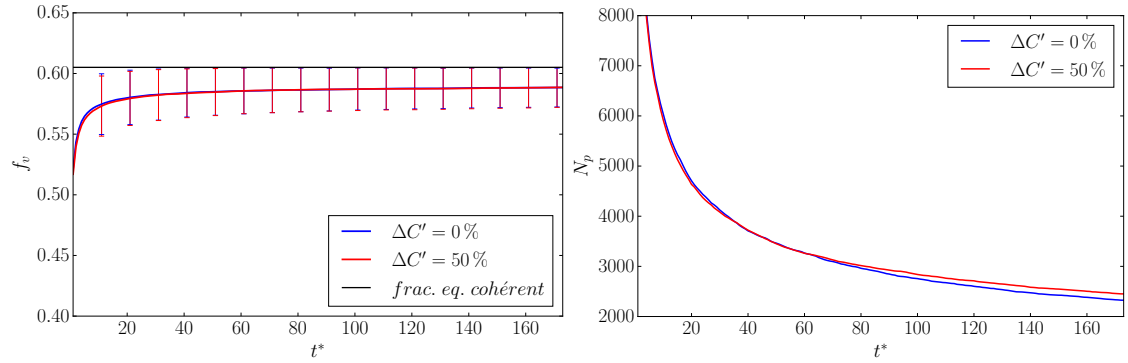
Figure 3.11: Microstructures étendues en élasticité homogène (haut) et inhomogène (bas) en C'.

3.3.2.1 Etude de la taille, de la forme et de l'arrangement

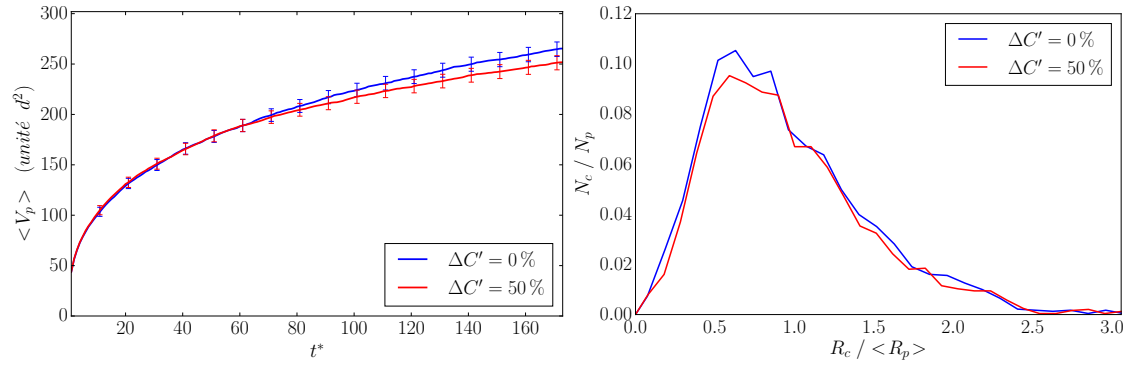
L'évolution de la fraction volumique, du nombre et du volume moyen des précipités au cours du temps est représentée à la figure 3.12 pour les deux microstructures $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$. La fraction de l'équilibre cohérent déterminée précédemment dans le cas d'une microstructure homogène en plaquettes est indiquée.

De même que pour les microstructures étendues discutées à la sous-section précédente, le taux de phase γ' chute entre $t^* = 0$ et $t^* = 1$ dans ces microstructures. De nombreux petits précipités se dissolvent et enrichissent la matrice, ce qui favorise la croissance des précipités plus grands. Les évolutions de taux de phase γ' dans les microstructures pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ sont presques superposées à tous les instants. f_v croît rapidement jusqu'à $t^* = 10$, puis plus lentement jusqu'à une valeur proche de $f_v = 0,588 \pm 0,016$ à $t^* = 173$. En tenant compte de l'erreur de mesure de f_v, les taux de phase atteints en fin de simulation sont proches de celui de l'équilibre cohérent.

Dans [26], un taux de phase γ' légèrement supérieur est observé pour $\Delta C' = 50\,\%$ par rapport à la microstructure élastiquement homogène. L'écart de taux de phase rapporté dans ces travaux provient de la différence entre les équilibres cohérents pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$. Dans nos simulations, l'erreur de mesure du taux de phase ne permet pas d'observer cet écart entre les microstructures homogène et inhomogène sur C'.



Fraction volumique de précipités — Nombre de précipités



Volume moyen des précipités — Distributions de tailles à $t^* = 173$

FIGURE 3.12: Evolution des microstructures étendues pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$.

Considérons maintenant l'évolution du nombre et du volume moyen des précipités dans les deux microstructures (figure 3.12). De $t^* = 0$ à $t^* = 35$, le nombre de précipités diminue légèrement plus rapidement dans la microstructure inhomogène en C'. Les courbes pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ sont superposées entre $t^* = 35$ et $t^* = 65$, puis le nombre de précipités diminue plus lentement pour la microstructure inhomogène que dans le cas homogène, jusqu'à l'instant final. Les évolutions du volume moyen des précipités sont superposées jusqu'à $t^* = 65$, puis l'évolution de $\langle V_p \rangle$ est plus lente pour $\Delta C' = 50\,\%$ jusqu'à $t^* = 173$. Ces observations de l'influence de l'inhomogénéité élastique sur le nombre et le volume moyen des précipités sont cohérentes avec les résultats décrits dans [26], ainsi que dans [81, 110]. Ces travaux rapportent une cinétique d'évolution microstructurale plus lente en présence d'inhomogénéité élastique.

L'analyse réalisée dans [26, 28] a notamment permis de comprendre que l'inhomogénéité en C' augmente les répulsions élastiques à courte distance entre précipités. Ces répulsions élastiques s'opposent en partie à la coagulation de précipités voisins de même variants, et explique les précipités plus nombreux et plus petits lorsque $\Delta C' = 50\,\%$ que pour la microstructure élastiquement homogène. Ainsi, les tendances observées sur la figure 3.12 sont cohérentes avec celles rapportées dans [26], bien que moins marquées. Il est attendu que ces tendances soient plus affirmées pour des temps de calculs plus longs.

De mêmes que pour les microstructures analysées à la sous-section précédente, le rayon équivalent de chaque précipité est calculé à l'instant final $t^* = 173$, et les distributions de tailles correspondantes sont présentées à la figure 3.12 avec 30 classes. Les distributions sont normalisées et superposées pour comparer leur forme. Leur moyenne, leur écart-type, leur asymétrie et leur excès de kurtosis sont comparés dans le tableau 3.3.

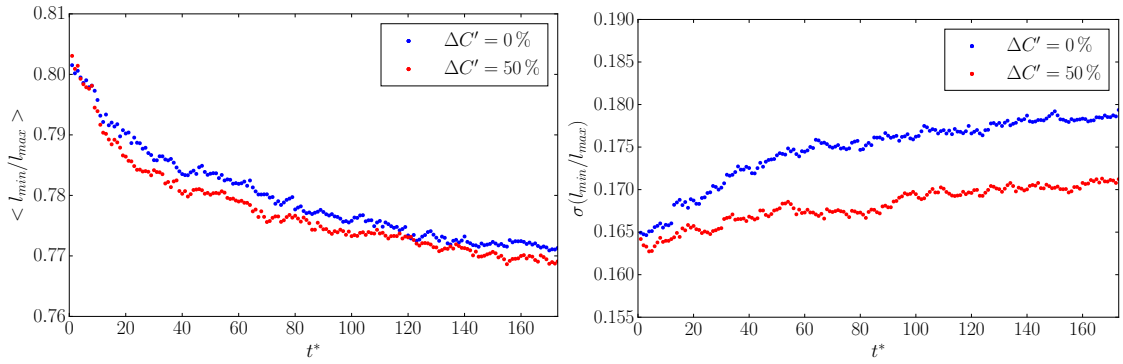
Microstructure	$\Delta C' = 0\,\%$	$\Delta C' = 50\,\%$
Moyenne	$8,54\,d$	$8,35\,d$
Ecart-type	$3,82\,d$	$3,66\,d$
Asymétrie (γ_1)	$0,94$	$0,93$
Excès de kurtosis ($\gamma_2 - 3$)	$0,96$	$0,95$

Tableau 3.3: Etude statistique des distributions de rayons équivalents à $t^* = 173$.

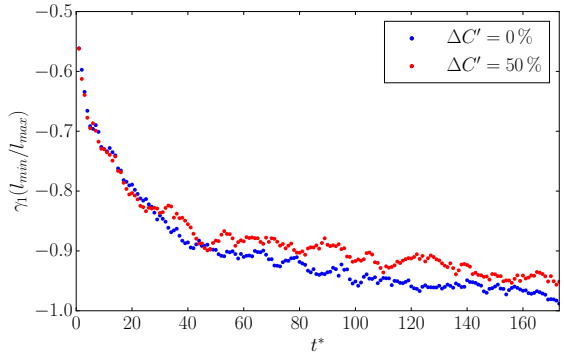
Les temps de simulations atteints ne permettent d'identifier que de légères variations de forme des distributions pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$. Ces observations sont cependant cohérentes avec celles décrites dans [26]. La moyenne des rayons équivalents est supérieure dans le cas de la distribution pour $\Delta C' = 0\,\%$, et la comparaison des écarts-types traduit une distribution de tailles plus dispersée pour la microstructure homogène. La distribution de taille est légèrement plus asymétrique et aiguë en élasticité homogène, ce qui est cohérent avec des tailles de précipités plus grandes que celles obtenues pour $\Delta C' = 50\,\%$.

L'influence du $\Delta C'$ sur la forme des précipités a été expliquée dans [26, 28]. L'inhomogénéité en C' favorise des morphologies de précipités cuboïdales plutôt qu'en plaquettes, dans une microstructure à fort taux de phase γ'. Dans la continuité de ce travail, nous nous intéressons à la forme des précipités dans les microstructures étendues de la figure 3.11. Le rapport d'aspect l_{min}/l_{max} de chaque précipité est déterminé par le ratio de son petit côté sur son grand côté. La moyenne, l'écart-type et l'asymétrie des distributions de l_{min}/l_{max} sont obtenues à partir de ces mesures, pour les microstructures avec $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$. L'évolution de ces grandeurs au cours du temps est présentée sur la figure 3.13.

Considérons dans un premier temps l'évolution des moyennes des distributions de rapports d'aspect. Pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$, les valeurs moyennes $\langle l_{min}/l_{max} \rangle$ sont légèrement supérieures à $0,8$ à $t^* = 1$, et décroissent toutes les deux jusqu'à une valeur proche de $0,77$ en fin de simulation. La moyenne des rapports d'aspect en élasticité homogène reste globalement supérieure à celle pour $\Delta C' = 50\,\%$. Les tendances rapportées à des temps longs dans [26, 28], où la moyenne décroît en dessous de $0,7$ pour $\Delta C' = 0\,\%$ et reste proche de $0,78$ pour $\Delta C' = 50\,\%$, ne sont pas observées aux temps atteints par nos simulations. Malgré cela, les écarts-types des distributions de l_{min}/l_{max} traduisent une dispersion des rapports d'aspect supérieure dans le cas de la microstructure élastiquement homogène. Les distributions pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ possèdent une asymétrie négative, ce qui indique qu'elles sont toutes les deux décalées à droite de leur médiane et qu'elles possèdent une queue de distribution étalée vers la gauche, c.-à-d. vers des formes de précipités allongés. L'asymétrie de la distribution pour la microstructure homogène est inférieure à celle pour $\Delta C' = 50\,\%$, ce qui révèle un plus grand nombre de précipités en plaquettes.



Moyennes des rapports d'aspect — Ecarts-types des rapports d'aspect



Asymétries des rapports d'aspect

FIGURE 3.13: Moyennes, écarts-types et asymétries des rapports d'aspect des précipités au cours du temps.

Les analyses de formes de précipités dans les simulations de microstructures étendues sont cohérentes avec les effets de l'inhomogénéité de C' discutés dans [26, 28]. Dans ces travaux notamment, les moyennes $\langle l_{min}/l_{max} \rangle$ sont superposées au début des simulations quelle que soit l'inhomogénéité en C'. Les tendances d'évolution décrites précédemment pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ n'apparaissent qu'après un certain temps, lorsque l'influence du $\Delta C'$ sur la forme devient significative. Par analogie avec ce travail, il est attendu que les effets de l'inhomogénéité sur la forme des précipités dans les microstructures étendues soient davantage marqués à des temps de simulations plus longs.

Dans le cadre des méthodes d'analyse présentées au chapitre 1, les arrangements de précipités des microstructures étendues sont étudiés au moyen de la fonction d'autocorrélation des barycentres. Le calcul est restreint aux précipités séparés d'une distance inférieure à $128d$ et les autocorrélations obtenues sont présentées à la figure 3.14. Les profils selon [100] des autocorrélations sont lissés avec un filtre gaussien d'écart-type $2d$ pour faciliter la visualisation, et sont superposés pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ à droite de la figure 3.14. Les autocorrélations de barycentres des microstructures élastiquement homogène et inhomogène en C' sont quasiment identiques, ce qui traduit à quel point leurs arrangements de barycentres des précipités sont proches. Les profils d'autocorrélations permettent l'identification de légères différences, qui sont cependant restreintes au voisinage proche : les arrangements de barycentres semblent globalement décorrélés au delà des premiers voisins selon [100]. Les corrélations sur les premiers voisins pour $\Delta C' = 50\,\%$ sont légèrement supérieures et à plus courte distance que pour la microstructure élastiquement homogène.

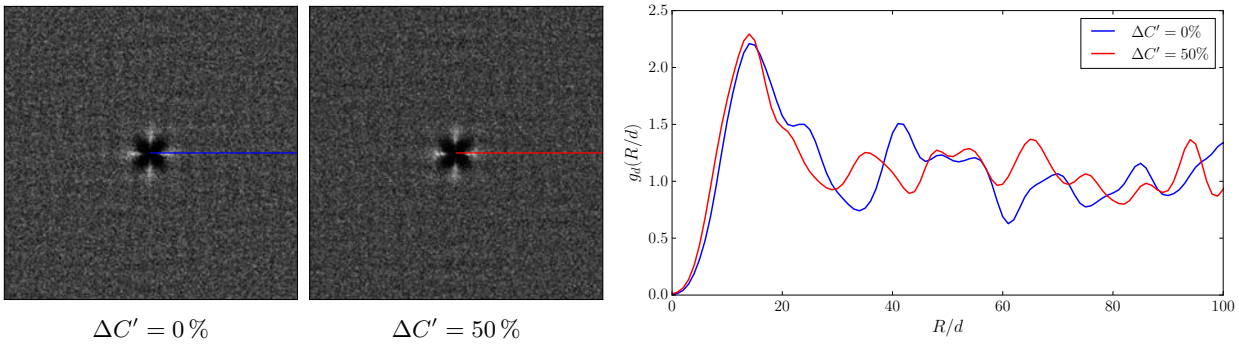


Figure 3.14: Autocorrélations des barycentres des précipités de microstructures homogène et inhomogène sur C' à $t^* = 173$. Les profils selon [100] des autocorrélations sont superposés à droite.

Ces observations sont cohérentes avec celles réalisées au paragraphe 1.2.2 du chapitre 1, sur des microstructures issues de simulations de champ de phase classique. De même que pour les résultats discutés précédemment, les tendances sont cohérentes mais bien moins marquées que dans [26, 28]. L'accès à des temps plus longs permettrait de confirmer ces observations. L'analyse des arrangements de précipités soulève cependant la question d'un effet de taille de boîte de simulation dans le cas du champ de phase classique. En effet, les conditions aux limites périodiques sont susceptibles de favoriser voire d'accélérer la formation des alignements de précipités une fois que la taille des alignements dépasse la moitié de la grille de simulation. Un avantage supplémentaire de la méthode S-PFM par rapport au champ de phase classique, est que cet effet de taille de boîte est susceptible de moins affecter l'évolution de la microstructure. Ainsi, la méthode S-PFM permettrait une étude plus juste de la cinétique de formation des alignements de précipités γ' du fait de leurs interactions élastiques anisotropes.

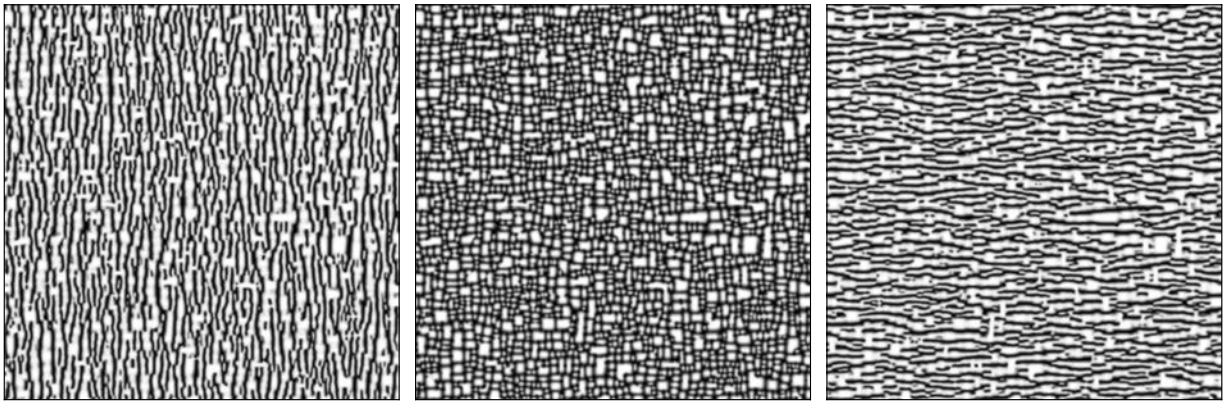
En résumé, les résultats présentés dans ce paragraphe ont montré que nous observons, dans nos simulations de microstructures à grande échelle, une influence du $\Delta C'$ cohérente avec celle rapportée par M. Cottura *et al* dans [26, 28], et cela malgré les temps de simulation courts.

3.3.2.2 Analyse des densités de défauts d'alignement

L'influence de l'inhomogénéité en C' sur la stabilité de l'arrangement périodique de précipités cubiques a été étudiée au chapitre 2. Les analyses statiques ont révélé la dépendance de ces effets au taux de phase γ'. Le $\Delta C'$ stabilise les petites longueurs d'onde du mode transverse instable selon $[\zeta, \zeta, 0]$ avec le taux de phase, et affecte la cinétique de développement et l'expression de l'instabilité longitudinale selon $[\zeta, 0, 0]$. Au moyen de simulations de champ de phase classiques, le changement de forme des précipités observé en élasticité homogène ne se produit pas lorsque $\Delta C' = 50\,\%$. Le mode introduit dans l'arrangement est figé à l'amplitude et à la longueur d'onde initiale, et la croissance de modes longitudinaux instables selon $[\zeta, 0, 0]$ à courtes longueurs d'onde est observée.

Dans ce paragraphe, l'influence du $\Delta C'$ est étudiée vis-à-vis de l'évolution des densités de défauts de périodicité, dans les microstructures étendues de la figure 3.11. En utilisant la méthode présentée au chapitre 1, les phases ψ_x et ψ_y des microstructures sont calculées et les modulations $f_x^1(\boldsymbol{r})$ et $f_y^1(\boldsymbol{r})$ du fondamental sont décomposées.

Les défauts de périodicité sont détectés automatiquement par le calcul des squelettes des modulations, qui renseignent sur leur position ainsi que sur leur type (branche ou macro-dislocation). A titre d'exemple, la décomposition des modulations de la microstructure avec $\Delta C' = 50\,\%$ à $t^* = 170$ est présentée dans la figure 3.15. Sur cette figure, le fondamental $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) \times f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ montre une reconstruction satisfaisante de la microstructure initiale sur la figure 3.11, malgré la perte de certains précipités de petites tailles et la perte de fins couloirs de matrice.



$f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ $\qquad$ $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) \times f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ $\qquad$ $f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$

FIGURE 3.15: Modulations $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ et $f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ du fondamental et reconstruction $f_x^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r}) \times f_y^{\mathrm{I}}(\boldsymbol{r})$ de la microstructure pour $\Delta C' = 50\%$, à $t^* = 170$.

Sans réaliser de distinction entre les défauts de périodicité horizontale et verticale, le nombre de branches et de macro-dislocations dans les modulations est déterminé à chaque instant des simulations pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$. Les densités ρ de défauts correspondantes sont obtenues en divisant le nombre de défauts par la taille du système. L'évolution des densités de défauts au cours du temps est présenté pour les microstructure homogène et inhomogène dans la figure 3.16.

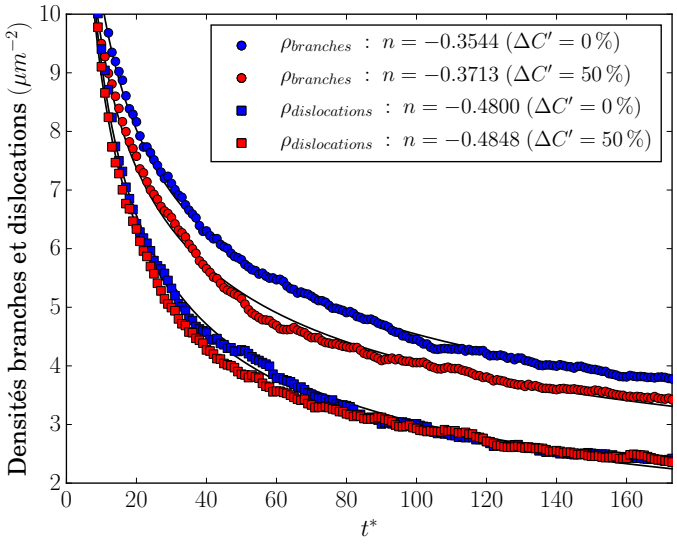


FIGURE 3.16: Evolutions des densités de branches et de macro-dislocations dans les microstructures homogène et inhomogène en C'. Lignes continues : ajustements en lois de puissance $\rho_0 t^n$.

Des courbes d'équations $\rho(t) = \rho_0 t^n$ sont ajustées sur les évolutions de densités de défauts, et les exposants n sont indiqués dans la légende de la figure. Considérons dans un premier temps l'évolution des densités de macro-dislocations. Ces densités, pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$, sont presque superposées à tous les instants. Elles diminuent jusqu'à atteindre une valeur proche de $2,4\,\mu\text{m}^{-2}$ en fin de simulation. La superposition de ces courbes suggère que l'inhomogénéité en C' n'a pas d'influence sur l'évolution de la densité de macro-dislocations dans la microstructure γ/γ'. La diminution des densités de branches s'effectue à des vitesses différentes suivant l'inhomogénéité en C'. Les courbes $\rho(t) = \rho_0 t^n$ ajustées sur ces densités ont des exposants $n = -0,3544$ et $n = -0,3713$, respectivement pour $\Delta C' = 50\,\%$ et $\Delta C' = 0\,\%$. Ainsi, cette densité diminue plus rapidement pour $\Delta C' = 50\,\%$ que dans le cas homogène. Sachant que les évènements de création et d'annihilation de défauts sont confondus dans les courbes de la figure 3.16, la différence d'évolution des densités de branches peut être expliquée simplement par les effets du $\Delta C'$ décrits dans [26]. La création de branches résulte le plus souvent de coagulations de précipités voisins de mêmes variants. Sachant que l'inhomogénéité de C' augmente les répulsions élastiques à courtes distances entre précipités voisins et s'oppose à ce genre de coagulations, il est attendu que moins de branches soient ainsi créées dans la microstructure avec $\Delta C' = 50\,\%$. A l'instant final, les densités de branches pour $\Delta C' = 0\,\%$ et $\Delta C' = 50\,\%$ ont diminué jusqu'à des valeurs proches de $3,8\,\mu\text{m}^{-2}$ et $3,5\,\mu\text{m}^{-2}$ respectivement.

Les courbes de la figure 3.16 montrent que les densités de défauts diminuent au cours du temps quel que soit leur type. Notamment, il y a une densité de branches environ $1,5$ fois supérieure à celle des macro-dislocation dans les deux microstructures à $t^* = 173$. La diminution des densités de macro-dislocations est sensiblement plus rapide que celle des densités des branches, ce qui peut être expliqué par la taille des précipités à proximité des défauts, comme il a été discuté au chapitre 2. En effet, les macro-dislocations tendent à être localisées sur des précipités de petites tailles, tandis que la position des branches coïncide généralement avec les précipités plus grands.

L'analyse des densités de défauts est complétée des courbes de la figure 3.17 où nous présentons l'évolution du nombre de défauts par précipité, indépendamment de leur type, en fonction du $\Delta C'$.

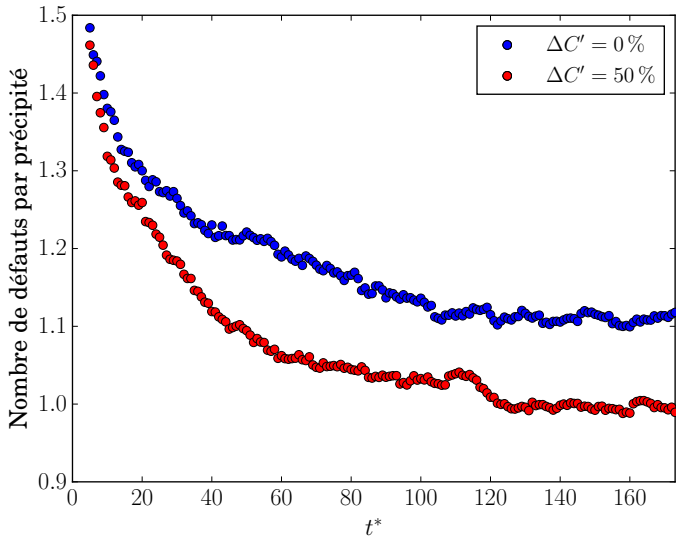


Figure 3.17: Evolution du nombre de défauts (branches et macro-dislocations) par précipité, dans les microstructures homogène et inhomogène en C'.

Considérons l'évolution du nombre de défauts par précipité en fonction de l'inhomogénéité en C'. Sur ces courbes, les nombres de défauts tiennent compte à la fois des branches et des macro-dislocations. Pour les deux microstructures, le nombre de défauts par précipité diminue au cours du temps, et semble atteindre un plateau vers les temps les plus longs. Il apparait sur les courbes de la figure 3.17 que le plateau est atteint légèrement plus rapidement dans le cas de la microstructure inhomogène en C'. Un nombre de défauts par précipité constant au delà d'un certain temps pourrait correspondre à un régime permanent, qui indiquerait que le système devient invariant à une échelle de temps ou de longueur près. Cette hypothèse pourrait également être confirmée par l'analyse des défauts de périodicité dans la microstructure γ/γ' à des temps plus longs.

Notons, en conclusion de cette analyse, que l'étude des densités de défauts d'alignement dans les microstructures simulées est un parfait exemple d'analyse statistique rendue possible par la méthode S-PFM. Une perspective de ce travail consiste à étudier les corrélations des défauts, leur trajectoire, ainsi que leur vitesse de migration dans la microstructure.

3.3.3 Synthèse des simulations à grande échelle

Nous concluons cette section par une synthèse des simulations de la microstructure γ/γ' réalisées à grande échelle, grâce à la méthode de champ de phase S-PFM. Les simulations de microstructures avec et sans élasticité ont prouvé que la méthode S-PFM donne accès à des informations statistiques sur l'évolution des microstructures, notamment en présence d'élasticité. Les distributions en classes de tailles obtenues ont une forme bien définie, en raison des grands nombres de précipités simulés. Notons, dans le cas des microstructures simulées avec élasticité, que nous obtenons des distributions de tailles avec une asymétrie cohérente avec celle des distributions issues de l'expérience.

Dans un second temps, nous avons réalisé une étude statistique des effets de l'inhomogénéité en C' sur la microstructure γ/γ'. Nous observons dans nos simulations une influence du $\Delta C'$ sur la taille, la forme et l'arrangement des précipités qui est cohérente avec celle rapportée par M. Cottura *et al* [26, 28]. Nous nous intéressons finalement à l'influence de l'inhomogénéité en C' sur l'évolution des densités de défauts d'alignement dans la microstructure γ/γ'. Les courbes obtenues suggèrent que le $\Delta C'$ n'a pas d'influence sur les densités de macro-dislocations jusqu'au dernier instant considéré. Les différences d'évolution pour les branches ont été expliquées par l'augmentation des répulsions élastiques à courte distance induite par le $\Delta C'$, qui tend à limiter la formation de paires de branches par coagulation de précipités voisins de même variant. L'analyse des défauts doit être poursuivie, et étendue à 3D, en vue de développer une modélisation de la microstructure γ/γ' à une échelle supérieure par une description de la dynamique des défauts de périodicité. L'étude statistique des défauts que nous avons présenté est un parfait exemple d'analyse rendue possible par la méthode de champ de phase S-PFM.

3.4 Conclusions et perspectives

L'objectif du travail présenté dans ce chapitre est de simuler l'évolution de microstructures à grande échelle et sous l'influence de l'élasticité, pour l'analyse statistique de la dynamique des défauts de périodicité de la microstructure γ/γ'.

La méthode de champ de phase S-PFM générant des interfaces invariantes par translation quelle que soit leur épaisseur a été introduite, ainsi que la méthode pour récupérer une invariance par rotation précise. Le couplage de champs conservé et non-conservé a été présenté, ainsi que l'approche multichamps permettant de décrire les variants de translation de la phase γ'. Le couplage de l'élasticité a été décrit et discuté en termes de stabilité du schéma de résolution de l'équilibre mécanique. L'optimisation du laplacien discret réalisée dans ces travaux de thèse a conduit à une calibration qui induit une perte de sphéricité de l'ordre de 2 %, acceptable pour les petites tailles de précipités simulées ensuite.

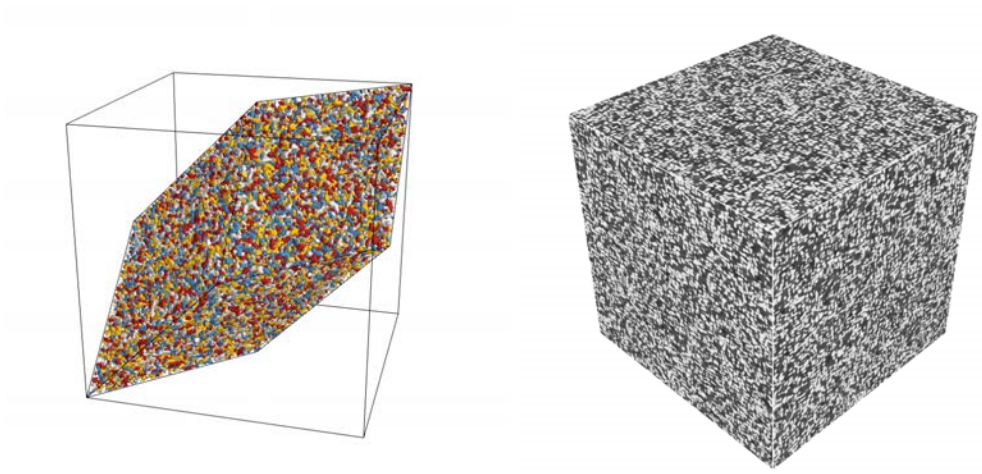
Des microstructures comptant plusieurs milliers de précipités ont été modélisées grâce à la méthode S-PFM, lorsque les méthodes de champ de phase classiques ne permettent d'en modéliser que quelques centaines. Ces résultats prouvent l'intérêt de cette nouvelle méthode, dans la mesure où elle donne accès à des informations statistiques sur l'évolution d'une microstructure en présence d'élasticité. En termes de distributions de tailles de précipités, les statistiques obtenues permettent une comparaison directe et quantitative des simulations de champ de phase à l'expérience, ou encore aux approches en classes de tailles.

Nous observons une influence de l'inhomogénéité en C' cohérente avec celle décrite dans des travaux antérieurs sur la taille, la forme et l'arrangement spatial des précipités γ'. Une première analyse statistique des densités de défauts de périodicité a été rendue possible par la méthode S-PFM. Ainsi, la méthode S-PFM permet indéniablement d'accéder à des informations statistiques sur l'évolution de la microstructure γ/γ', qui sont indispensables pour poursuivre l'étude des défauts d'alignement des précipités γ' à grande échelle.

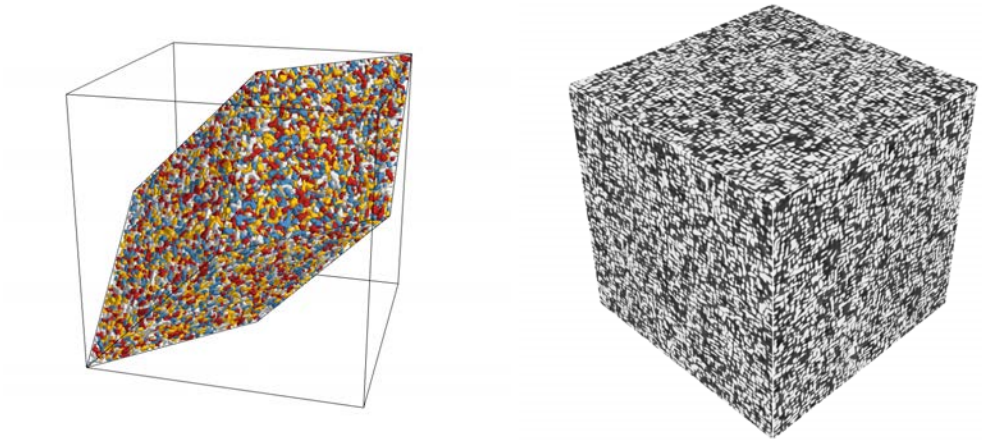
Nous discutons maintenant les perspectives du travail présenté dans ce chapitre, et nous présentons certains travaux préliminaires qui ont déjà été réalisés.

La première perspective du travail présenté dans ce chapitre consiste à poursuivre à 3D la modélisation de microstructures à grande échelle. A titre d'exemple, nous présentons à la figure 3.18 plusieurs instants d'une simulation 3D de microstructure γ/γ' en élasticité homogène. La microstructure est discrétisée sur un réseau CFC de $496 \times 496 \times 496$ voxels, et les champs ϕ_p sont représentés avec différentes couleurs dans le rhomboèdre de la simulation. Le champ c est représenté à droite, après avoir répliqué sa valeur selon les directions périodiques du réseau, jusqu'à remplir le cube contenant le rhomboèdre.

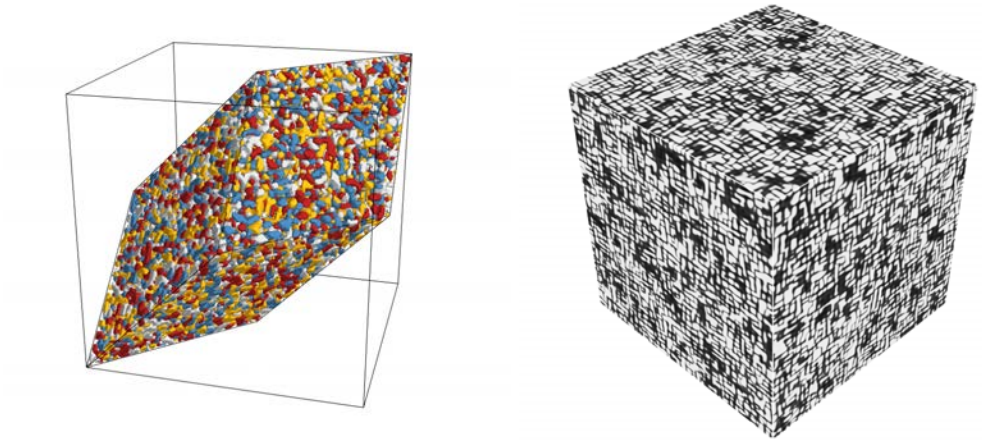
L'interface étroite dans cette simulation est décrite par $d/w = 3$, et son épaisseur $2w = 2d/3$ est inférieure au pas de grille. Le laplacien discret est pondéré par un couple (γ_2, γ_3) identifié dans [37], qui assure l'invariance par rotation de l'interface étroite dans la grille CFC. De même que pour les microstructures étendues à 2D, les microstructures de la figure 3.18 possèdent un grand nombre de précipités et donnent ainsi accès à une statistique fiable de l'évolution de microstructures en présence d'élasticité.



$t^* = 5$



$t^* = 14$

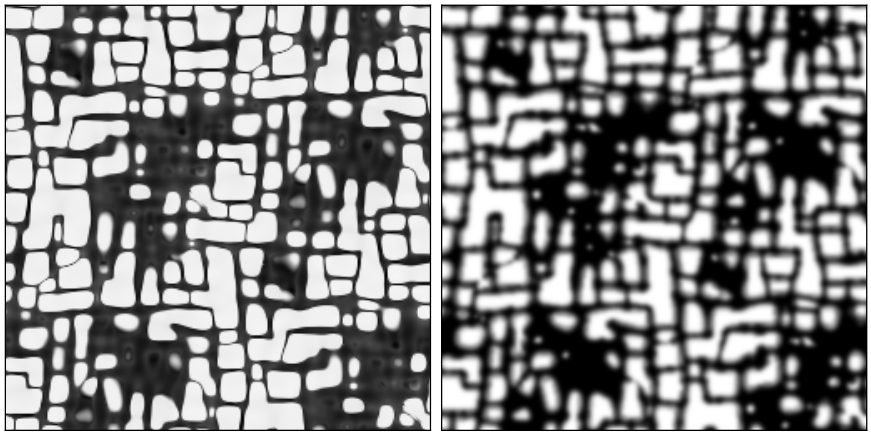


$t^* = 56$

FIGURE 3.18: Evolution d'une microstructure étendue en élasticité homogène, discrétisée sur un réseau CFC.

La seconde perspective de ce travail consiste à étendre à 3D l'étude de l'organisation des défauts de périodicité des microstructures γ/γ'. La méthode d'analyse par phases décrite au chapitre 1 peut être généralisée à 3D sans difficulté. Une attention particulière doit cependant être apportée aux régions de la microstructure où le champ est constant (plateaux de précipité ou de matrice).

Nous illustrons l'analyse par phases à 3D sur une microstructure γ/γ' simulée en champ de phase S-PFM sur une grille CFC de $256 \times 256 \times 256$ voxels et avec $\Delta C' = 50\,\%$. De même que pour la microstructure présentée à la figure 3.18, le champ c est répliqué jusqu'à remplir le cube contenant le rhomboèdre de la simulation. A titre d'exemple, nous réalisons une analyse par phases 2D d'une coupe de la microstructure 3D, en $r_y = l_y$ qui correspond au bord du cube contenant la grille rhomboédrique. Les phases ψ_x et ψ_y sont calculées, et la reconstruction du fondamental de la microstructure est présentée à la figure 3.19.



$c(r_x, l_y, r_z)$ $\qquad$ $f^1_x(r_x, l_y, r_z) \times f^1_y(r_x, l_y, r_z)$

Figure 3.19: Coupe d'une microstructure 3D issue d'une simulation S-PFM sur une grille CFC et reconstruction au fondamental par le calcul des phases ψ_x et ψ_y à 2D.

De mêmes que pour les reconstructions discutées précédemment, certaines informations décrites par de hautes fréquences sont perdues dans le filtre passe-bas précédant le calcul des phases. La reconstruction du fondamental est cependant satisfaisante en termes de formes et d'arrangement des précipités et permet une identification précise de la position des défauts et de leur type.

Les phases ψ_x, ψ_y et ψ_z sont calculées et la reconstruction $f^1_x(\boldsymbol{r}) \times f^1_y(\boldsymbol{r}) \times f^1_z(\boldsymbol{r})$ du fondamental de la microstructure est présentée à la figure 3.20 ainsi que les modulations $f^1_i(\boldsymbol{r})$ et les produits $f^1_i(\boldsymbol{r}) \times f^1_j(\boldsymbol{r})$. Ces résultats préliminaires révèlent la possibilité de déterminer la position et le type de défaut de périodicité en calculant les squelettes des modulations $f^1_i(\boldsymbol{r})$ et des produits de modulations $f^1_i(\boldsymbol{r}) \times f^1_j(\boldsymbol{r})$.

Caractériser l'arrangement et la dynamique des défauts à 3D permettrait de mieux comprendre leur importance dans l'évolution de la microstructure γ/γ', et de déterminer s'ils tendent à s'organiser sous forme de lignes ou de boucles. Cette étude permettrait notamment de confirmer que les défauts de périodicité sont des observables pertinentes sur lesquelles construire une modélisation de la microstructure γ/γ' à une échelle supérieure.

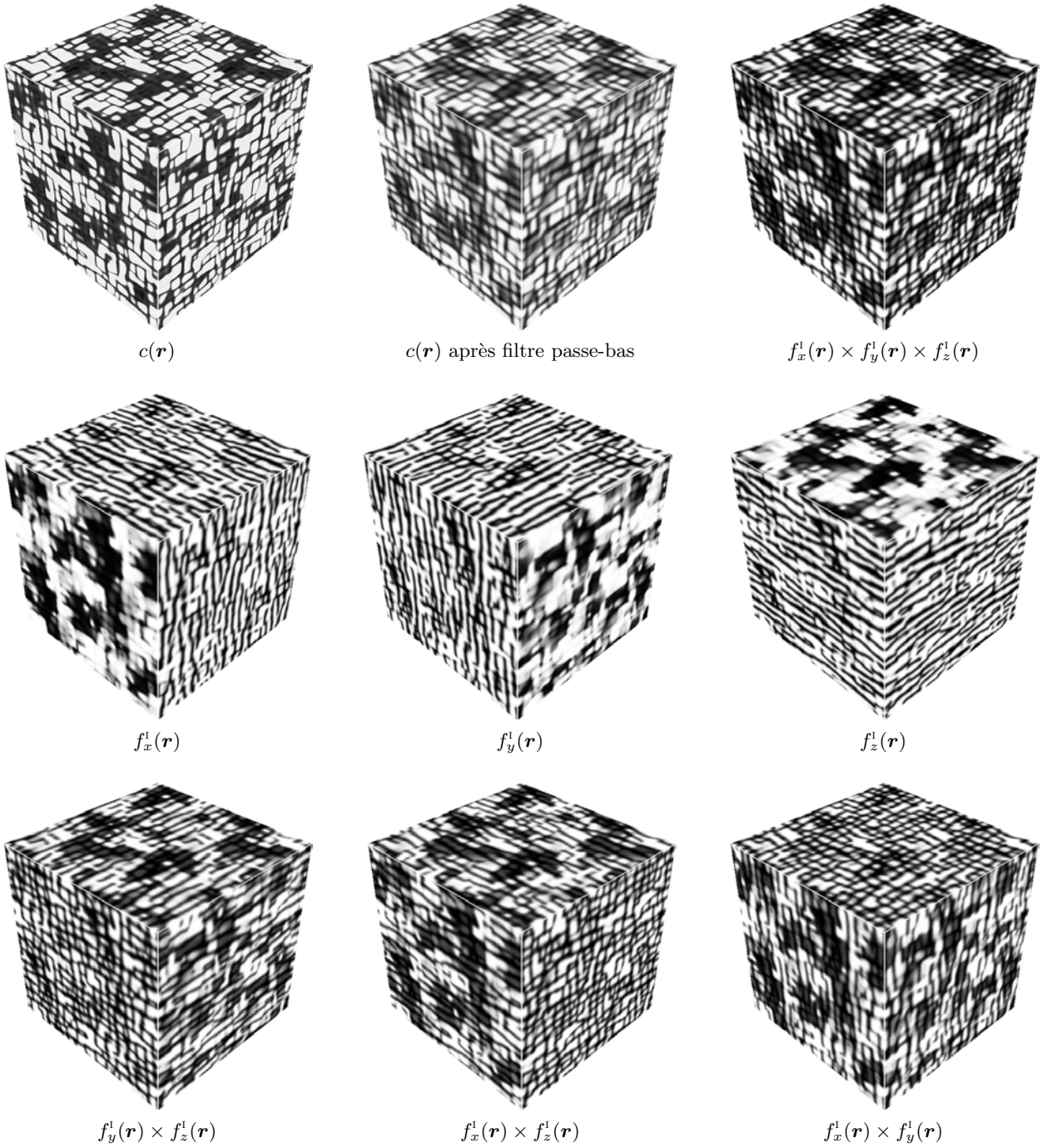


FIGURE 3.20: Analyse par phases ψ_x, ψ_y et ψ_z d'une microstructure issue d'une simulation S-PFM à 3D sur un réseau CFC. Le champ c est représenté dans le cube contenant le rhomboèdre, puis après application d'un filtre passe bas qui lui donne un aspect diffus.

Conclusions et perspectives

Cette thèse est une contribution à l'étude de l'influence de l'élasticité sur la microstructure des superalliages monocristallins. Plus spécifiquement, nous avons étudié la formation et la dynamique des défauts de périodicité dans l'arrangement des précipités, par des calculs énergétiques semi-analytiques et par l'utilisation de plusieurs modèles de champ de phase.

Après une présentation d'une méthode de champ de phase classique au chapitre 1, nous avons proposé une méthode originale d'analyse de la microstructure γ/γ'. Cette méthode est issue de la phénoménologie des structures hors-équilibre. L'arrangement des précipités est décrit comme le produit de développements d'un nombre limité de modes de Fourier (décrivant le réseau de référence), qui sont localement déphasés. Nous avons montré que ces phases géométriques $\psi_i(\boldsymbol{r})$ permettent de caractériser efficacement les défauts de la microstructure. Plus précisément, cette méthode conduit à une décomposition de la microstructure γ/γ' en modulations $f_i^{\mathrm{l}}(\boldsymbol{r})$ selon chacune des directions cubiques. Le calcul du squelette de ces modulations permet alors une détection *automatique* de la position et du type des défauts de périodicité : branche, macro-dislocation, ... Cette approche, que nous avons mise en oeuvre à 2D, est également applicable à 3D. Elle est utilisable aussi bien pour l'analyse de microstructures expérimentales que simulées.

La première partie du chapitre 2 est consacrée à une analyse de stabilité d'un arrangement périodique de précipités γ' identiques. A partir de cet arrangement, la démarche suivie consiste à calculer, dans l'espace de Fourier, la variation d'énergie associée à de faibles déplacements des précipités. Dans le cas d'une microstructure constituée d'inclusions sphériques avec un taux de phase $f_v = 37\,\%$, nous retrouvons le résultat de la littérature selon lequel l'énergie élastique de configuration augmente quel que soit le mode de perturbation appliqué à l'arrangement. Ceci traduit la stabilité de l'arrangement périodique de sphères. Nous montrons ensuite que ce résultat change quand on modifie la forme des précipités. Pour des précipités de forme cubique, l'analyse montre l'existence de modes conduisant à une diminution de l'énergie de la microstructure. Les deux principaux sont le mode L longitudinal selon $\boldsymbol{\tau} = [\zeta, 0, 0]$ et le mode T_2 transverse selon $\boldsymbol{\tau} = [\zeta, \zeta, 0]$ associé au vecteur propre $[1\bar{1}0]$. L'analyse de stabilité statique de l'arrangement est complétée par des simulations champ de phase qui permettent d'accéder à la cinétique d'évolution des modes de perturbation, et de s'affranchir des hypothèses de faibles déplacements et de formes constantes des précipités. Nous étudions l'évolution microstructurale lors d'un recuit isotherme à partir d'arrangements perturbés selon les deux principales instabilités L et T_2 identifiés dans l'analyse de stabilité statique. On observe un changement de la forme des précipités, mais pas de leur position : la modulation de l'arrangement est figée à la longueur d'onde et à l'amplitude initiales. Le développement des modes instables permet de mieux comprendre l'observation des défauts dans les arrangements des précipités γ' tels que les branches, les macro-dislocations et les motifs en chevrons.

L'influence du taux de phase γ' et de l'inhomogénéité du module C' sur la stabilité de l'arrangement est étudiée dans un second temps pour des précipités de forme cubique. Nous montrons que le mode L selon $\boldsymbol{\tau} = [\zeta, 0, 0]$ est instable pour toutes les longueurs d'onde et quelle que soit la fraction volumique. Les petites longueurs d'onde du mode transverse instable selon $\boldsymbol{\tau} = [\zeta, \zeta, 0]$ sont stabilisées à mesure que le taux de phase augmente. Cet effet est lié à l'écrantage progressif des interactions élastiques lorsque f_v croît, et est cohérent avec l'absence de motifs en chevrons dans les microstructures à forte fraction de phase γ'. Des calculs énergétiques montrent que l'introduction d'une inhomogénéité du module C' ($\Delta C' > 0$) déstabilise encore plus le mode longitudinal $[\zeta, 0, 0]$ mais diminue la plage d'instabilité du mode T_2 $[\zeta, \zeta, 0]$. Enfin, des simulations champ de phase en élasticité inhomogène montrent que pour $\Delta C' = 50\,\%$ la cinétique de développement de l'instabilité L est plus lente qu'en élasticité homogène, et que son expression est davantage marquée par une évolution de la position des précipités que par celle de leur forme. L'amplitude du mode initial est figée au cours du temps, et des modes longitudinaux instables croissent à plus petites longueurs d'onde.

La dernière section du chapitre 2 est consacrée à la dynamique des défauts de périodicité. Des simulations champ de phase réalisées dans [26] sont analysées par le calcul des phases et la décomposition des modulations du fondamental de la microstructure. Au cours d'un recuit isotherme, la création et l'annihilation de paires de macro-dislocations sont mises en évidence et surviennent selon un mécanisme de montée par la dissolution progressive de rangées de précipités. L'annihilation de paires de branches est observée par montée dans une même rangée, mais également par un mécanisme de glissement des défauts entre rangées voisines. Au cours d'un chargement en fluage, nous avons montré sur les simulations de [26] que les défauts de périodicité de la microstructure initiale et de la structure en radeaux coïncident. Ce maintien des défauts de modulation pendant la mise en radeaux suggère que l'organisation des défauts à l'application du chargement détermine la connexité initiale de la structure en radeaux [23, 24].

Le chapitre 3 est consacré à la modélisation de microstructures étendues en présence d'élasticité, selon la méthode de champ de phase S-PFM récemment proposée dans [37]. Après une description détaillée de la méthode S-PFM, nous modélisons des microstructures comptant plusieurs milliers de précipités, sans et avec élasticité. L'analyse de ces microstructures permet d'obtenir des distributions de tailles des précipités directement comparables à celles issues de l'expérience. En présence d'élasticité, la distribution en classes de tailles obtenue à l'instant final possède une asymétrie cohérente avec des mesures expérimentales réalisées dans des superalliages. Ces résultats montrent que la méthode S-PFM permet d'accéder à des informations statistiques sur l'évolution de microstructures en présence d'élasticité. Dans un second temps, et dans la continuité du travail réalisé dans [26], une analyse statistique des effets de l'inhomogénéité de C' sur la microstructure γ/γ' est réalisée en champ de phase S-PFM. L'influence du $\Delta C'$ mesurée sur le nombre de précipités, sur leur taille moyenne, sur leur forme et sur les corrélations spatiales de leur barycentre dans la microstructure étendue est cohérente avec les observations effectuées dans [26].

La dernière partie du chapitre 3 est consacrée à l'étude des densités de défauts de périodicité dans des microstructures homogène et inhomogène sur C'. Dans ces microstructures, les nombres de branches et de macro-dislocations sont déterminés sur les squelettes des modulations. L'évolution des densités correspondantes au cours du temps est étudiée sans distinction des événements de création et d'annihilation de défauts.

En élasticité homogène et inhomogène, les densités de macro-dislocations diminuent sensiblement plus rapidement que celles des branches. Ce résultat est expliqué par la tendance des macro-dislocations à être localisées sur les petits précipités dont l'évolution (dissolution ou coagulation) dans la microstructure est rapide devant celle des précipités plus grands sur lesquels sont généralement localisées les branches. La densité de branches diminue plus lentement dans la microstructure élastiquement homogène que dans la microstructure avec $\Delta C' = 50\,\%$. Cette différence est expliquée par l'augmentation des répulsions élastiques à courte distance entre précipités dans le cas inhomogène [26] : la coagulation de précipités voisins de même variant, conduisant à la formation de paires de branches, est défavorisée lorsque $\Delta C' = 50\,\%$. L'évolution des densités de défauts de périodicité dans la microstructure γ/γ' est un parfait exemple d'analyse statistique rendue possible par la méthode de champ de phase S-PFM. Des simulations de microstructures étendues avec élasticité sont en cours en discrétisation CFC à 3D, et les premiers résultats sont présentés à la fin du chapitre 3. Les microstructures obtenues possèdent un grand nombre de précipités, et ouvrent la possibilité d'une analyse statistique de l'évolution de la microstructure γ/γ' à 3D. La méthode d'analyse par phases que nous avons développé est généralisable sans difficulté et permettrait d'étudier l'organisation et la dynamique des défauts de périodicité dans la microstructure à 3D.

Plusieurs perspectives sont considérées dans la continuité de ces travaux de thèse afin de mieux comprendre l'influence de l'élasticité sur la microstructure γ/γ', ainsi que le rôle fondamental que semblent jouer les défauts de périodicité dans son évolution.

La première perspective porte sur l'analyse par phases géométriques de la microstructure γ/γ' que nous avons proposé au chapitre 1. Dans un premier temps, la précision de la méthode pourrait être améliorée en tenant compte des harmoniques d'ordres supérieures ou en postulant une forme différente du produit des développements en séries de Fourier utilisé pour décrire la microstructure en cuboïdes. Cette méthode pourrait être appliquée à l'étude systématique des défauts de périodicité dans des microstructures expérimentales dans un second temps. Enfin, le calcul des squelettes des modulations de microstructures 3D issues de l'expérience et des simulations de champ de phase permettrait de déterminer si les défauts de périodicité tendent à s'organiser sous formes de lignes ou de boucles, dont il serait alors nécessaire de caractériser la dynamique.

La seconde perspective consiste à améliorer les calculs de stabilité des arrangements de précipités γ' en travaillant sur deux points. Le premier consiste, dans le cadre d'une analyse statique, à aller au-delà de l'hypothèse de forme constante des précipités en utilisant une description basée à la fois sur leur position et un paramètre décrivant leur forme. Cette extension apparaît importante puisque les simulations champ de phase que nous avons réalisées ont montré l'existence d'instabilités couplant changements de forme et de position des précipités. La seconde piste d'amélioration, plus ardue, consiste à aller au delà de l'analyse statique en effectuant une analyse de stabilité dynamique, c'est à dire en partant de l'équation cinétique décrivant l'évolution des précipités. Cette extension est nécessaire pour prédire la vitesse de croissance des modes instables. Elle permettrait ainsi de mieux comprendre les simulations réalisées au chapitre 2, dans lesquelles des instabilités de courtes longueurs d'onde se développent préférentiellement à l'instabilité de grande longueur d'onde initiale.

Le développement récent de la méthode S-PFM ouvre également de nombreuses perspectives dans l'étude des superalliages base nickel. Comme nous l'avons montré, l'efficacité numérique de cette méthode permet des études plus systématiques en trois dimensions.

Ceci est d'autant plus essentiel que des progrès importants ont récemment été réalisés dans la caractérisation expérimentale en trois dimensions de ces microstructures, notamment grâce à la tomographie dans un MEB/FIB ("méthode slice-and-view"). Des comparaisons simulations-expériences en trois dimensions permettront d'approfondir les connaissances sur ces alliages. Notons que ces études pourront s'appuyer sur les descriptions en phases géométriques développées dans ce travail.

La dernière perspective de ce travail consiste à développer un modèle décrivant la dynamique des défauts de périodicité dans la microstructure γ/γ', qui permettrait un changement d'échelle dans la modélisation de l'évolution des microstructures dans les superalliages monocristallins. Ce modèle pourrait s'inspirer de méthodes de champ de phase développées pour la montée des dislocations.

Bibliographie

[1] N. Akaiwa and P. W. Voorhees. Late-stage phase separation : dynamics, spatial correlations, and structure functions. *Phys. Rev. E*, 48(5), 1994.

[2] N. Akaiwa and P. W. Voorhees. Large scale numerical simulation of microstructural evolution in elastically stressed solids. *Mater. Sci. Eng., A*, 285, 2000.

[3] S. Akamatsu, K. Lee, and W. Losert. Control of eutectic solidification microstructures through laser spot perturbations. *J. Cryst. Growth*, 289, 2006.

[4] S. Akamatsu, M. Plapp, G. Faivre, and A. Karma. Overstability of lamellar eutectic growth below the minimum-undercooling spacing. *Metall. Mater. Trans. A*, 35A, 2004.

[5] S. M. Allen and J. W. Cahn. Coherent and incoherent equilibria in iron-rich iron-aluminum alloys. *Acta Metall.*, 23, 1975.

[6] S. M. Allen and J. W. Cahn. A microscopic theory for antiphase boundary motion and its application to antiphase domain coarsening. *Acta Metall.*, 27, 1979.

[7] A. J. Ardell. The Ni-Ni_3Al phase diagram : thermodynamic modelling and the requirements of coherent equilibrium. *Melling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 8, 2000.

[8] A. J. Ardell and R. B. Nicholson. On the modulated structure of aged Ni-Al alloys. *Acta Metall.*, 14, 1966.

[9] A. Baldan. Review - Progress in Ostwald ripening theories and their applications to nickel-base superalloys. part I : Ostwald ripening theories. *J. Mater. Sci.*, 37, 2002.

[10] V. Biss and D. L. Sponseller. The Effect of Molybdenum on γ' Coarsening and on Elevated-Temperature Hardness in Some Experimental Nickel-Base Superalloys. *Metall. Trans.*, 4, 1973.

[11] E. Bodenschatz, W. Pesch, and G. Ahlers. Recent developments in Rayleigh-Bénard convection. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 32, 2000.

[12] S. Bottin-Rousseau. *Dynamique des structures de solidification eutectique en échantillons massifs, et effets d'anisotropie interfaciale.* Thèse d'Habilitation à Diriger les Recherches de l'Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012.

[13] Y. Le Bouar. *Influence des effets élastiques lors de la mise en ordre cohérente dans le système Co-Pt : microstructure de biphasage* $L1_0 + L1_2$. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 1998.

[14] Y. Le Bouar, A. Loiseau, and A. G. Khachaturyan. Origin of chessboard-like structures in decomposing alloys. Theoretical model and computer simulation. *Acta Mater.*, 46(8), 1998.

[15] G. Boussinot. *Etude du vieillissement des superalliages à base nickel par la méthode de champs de phase*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007.

[16] G. Boussinot, Y. Le Bouar, and A. Finel. Phase-field simulations with inhomogeneous elasticity : Comparison with an atomic-scale method and application to superalloys. *Acta Mater.*, 58, 2010.

[17] Q. Bronchart. *Développement de méthodes de champs de phase quantitatives et applications à la précipitation homogène dans les alliages binaires*. PhD thesis, Université de Cergy-Pontoise, 2006.

[18] F. H. Busse and J. A. Whitehead. Instabilities of convection rolls in a high Prandtl number fluid. *J. Fluid Mech.*, 47(2), 1971.

[19] J. W. Cahn. Theory of crystal growth and interface motion in crystalline materials. *Acta Metall.*, 8, 1960.

[20] J. W. Cahn and J. E. Hilliard. Free energy of a nonuniform system. i. interfacial energy. *J. Chem. Phys.*, 28(258), 1958.

[21] J. W. Cahn and F. Larché. A simple model for coherent equilibrium. *Acta Metall.*, 32, 1984.

[22] P. Caron. High γ' solvus new generation nickel-based superalloys for single crystal turbine blade applications. In *Superalloys 2000*. The Minerals, Metals & Materials Society, 2000.

[23] P. Caron, C. Ramusat, and F. Diologent. Influence of the γ' fraction on the γ/γ' topological inversion during high temperature creep of single crystal superalloys. In *Superalloys 2008*. The Minerals, Metals & Materials Society, 2008.

[24] V. Carucci, J. Cormier, and R. Desmorat. γ'-Rafting mechanisms under complex mechanical stress state in Ni-based single crystalline superalloys. *Mater. Des.*, 131, 2017.

[25] J. Cormier and G. Cailletaud. Constitutive modeling of the creep behavior of single crystal superalloys under non-isothermal conditions inducing phase transformations. *Mater. Sci. Eng., A*, 527, 2010.

[26] M. Cottura. *Modélisation Champ de Phase du couplage entre évolution microstructurale et propriétés mécaniques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013.

[27] M. Cottura, B. Appolaire, A. Finel, and Y. Le Bouar. Coupling the Phase Field Method for diffusive transformations with dislocation density-based crystal plasticity : Application to Ni-based superalloys. *J. Mech. Phys. Sol.*, 94, 2016.

[28] M. Cottura, Y. Le Bouar, B. Appolaire, and A. Finel. Role of elastic inhomogeneity in the development of cuboidal microstructures in Ni-based superalloys. *Acta Mater.*, 94, 2015.

[29] M. C. Cross and P. C. Hohenberg. Pattern formation outside of equilibrium. *Rev. Mod. Phys.*, 65(3), 1993.

[30] B. Dabas. *Nouvelle formulation champ de phase pour des interfaces étroites et application dans le cadre du pressage isostatique à chaud*. Rapport de stage - Ecole Polytechnique - Université Paris-Saclay, 2017.

[31] M. Degeiter, M. Perrut, B. Appolaire, Y. Le Bouar, and A. Finel. A new analysis of the microstructure of Ni-based single-crystal superalloys : relevant topological parameters for efficient microstructure modeling. In *Superalloys 2016*. The Minerals, Metals & Materials Society, 2016.

[32] R. Desmorat, A. Matiello, and J. Cormier. A tensorial thermodynamic framework to account for the γ' rafting in nickel-based single crystal superalloys. *Int. J. Plast.*, 95, 2017.

[33] F. Diologent. *Comportement en fluage et en traction de superalliages monocristallins à base de nickel*. PhD thesis, Université Orsay - Paris XI, 2002.

[34] A. Epishin, T. Link, U. Brückner, and P. D. Portella. Kinetics of the topological inversion of the γ/γ' microstructure during creep of a nickel-based superalloy. *Acta Mater.*, 49, 2001.

[35] PH. Eurin, J. M. Penisson, and A. Bourret. Etude du réseau de germes dans l'alliage CoPt équiatomique par microscopie électronique et diffraction optique. *Acta Metall.*, 21, 1973.

[36] D. Fan, S. P. Chen, L. Q. Chen, and P. W. Voorhees. Phase-field simulation of 2-D Ostwald ripening in the high volume fraction regime. *Acta Mater.*, 50, 2002.

[37] A. Finel, Y. Le Bouar, B. Dabas, B. Appolaire, Y. Yamada, and T. Mohri. Sharp Phase Field Method. *Phys. Rev. Lett.*, 121(2), 2018.

[38] A. Fredholm and J.-L. Strudel. High temperature creep mechanisms in single crystals of some high performance nickel base superalloys. In *High temperature Alloys, their Exploitable Potential, Proceedings of the Petten International Conference*. ed. J. B. Mariott, et al. (London, U.K. : Elsevier Applied Science), 2008.

[39] F. Fujiwara, M. Watanabe, Z. Horitaand, N. Nemoto, K. Noumi, and T. Simozaki. International conference on solid-solid transformations, in JIMIC-3. 1999.

[40] A. Gaubert. *Modélisation des effets de l'évolution microstructurale sur le comportement mécanique du superalliage monocristallin AM1*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2007.

[41] P.-A. Geslin. *Contribution à la modélisation champ de phase des dislocations*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013.

[42] J. Ghighi, J. Cormier, E. Ostoja-Kuczynski, J. Mendez, G. Cailletaud, and F. Azzouz. A microstructure sensitive approach for the prediction of the creep behaviour and life under complex loading paths. *Technische Mechanik*, 32, 2012.

[43] J. V. Goerler, I. Lopez-Galilea, L. Mujica-Roncery, O. Shchyglo, W. Theisen, and I. Steinbach. Topological phase inversion after long-term thermal exposure of nickel-base superalloys : Experiment and phase-field simulation. *Acta Mater.*, 124, 2017.

[44] J.-B. Le Graverend. *Etude et modélisation des effets d'incursions à très haute température sur le comportement mécanique d'un superalliage monocristallin pour aube de turbine*. PhD thesis, ISAE-ENSMA, 2013.

[45] S. Y. Hu and L. Q. Chen. A phase-field method for evolving microstructures with strong elastic inhomogeneity. *Acta Mater.*, 49, 2001.

[46] W. C. Johnson. On the elastic stabilization of precipitates against coarsening under applied load. *Acta Metall.*, 32(3), 1984.

[47] W. C. Johnson and P. W. Voorhees. Phase equilibrium in two-phase coherent solids. *Metall. Trans. A*, 18A, 1987.

[48] A. G. Khachaturyan. *Theory of Structural Transformations in Solids.* (Wiley, New York) Dover Publications, Inc., (1983) 2008.

[49] A. G. Khachaturyan and V. M. Airapetyan. Spatially periodic distributions of new phase inclusions caused by elastic distorsions. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 49(61), 1974.

[50] A. G. Khachaturyan, S. V. Semenovskaya, and J. W. Morris Jr. Theoretical analysis of strain-induced shape changes in cubic precipitates during coarsening. *Acta. Metall.*, 36(6), 1988.

[51] A. G. Khachaturyan, S. V. Semenovskaya, and T. Tsakalakos. Elastic strain energy of inhomogeneous solids. *Phys. Rev. B*, 52(22), 1995.

[52] S. G. Kim. Large-scale three-dimensional simulation of Ostwald ripening. *Acta Mater.*, 55, 2007.

[53] S. G. Kim, W. T. Kim, and T. Suzuki. Phase-field model for binary alloys. *Phys. Rev. E*, 60(6), 1999.

[54] E. L. Koschmieder and S. G. Pallas. Heat transfer through a shallow, horizontal convecting fluid layer. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 17, 1974.

[55] J. S. Langer. *Solids far from equilibrium. Chapter 3 - An introduction to the kinetics of first-order phase transitions.* C. Godrèche, 1991.

[56] F. Larché and J. W. Cahn. A linear theory of thermochemical equilibrium of solids under stress. *Acta Metall.*, 21, 1973.

[57] F. Larché and J. W. Cahn. A nonlinear theory of thermochemical equilibrium of solids under stress. *Acta Metall.*, 26, 1978.

[58] F. Larché and J. W. Cahn. Thermochemical equilibrium of multiphase solids under stress. *Acta Metall.*, 26, 1978.

[59] J. K. Lee and W. Tao. Coherent phase equilibria : effect of composition-dependent elastic strain. *Acta Metall. Mater.*, 42(2), 1994.

[60] N.-L. Li, W. P. Wu, and K. Nie. Molecular dynamics study on the evolution of interfacial dislocation network and mechanical properties of Ni-based single crystal superalloys. *Phys. Lett. A*, 382, 2018.

[61] X. Li, K. Thornton, Q. Nie, P. W. Voorhees, and J. S. Lowengrub. Two- and three-dimensional equilibrium morphology of a misfitting particle and the Gibbs-Thomson effect. *Acta Mater.*, 52, 2004.

[62] X. Li, X. N. Zhang, C. P. Liu, C. Y. Wang, T. Yu, and Z. Zhang. Regular γ/γ' phase interface instability in a binary model nickel-based single-crystal alloy. *J. Alloys Compd.*, 633, 2015.

[63] I. M. Lifshitz and V. V. Slyozov. The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions. *J. Phys. Chem. Solids*, 19(1/2), 1961.

[64] W. T. Loomis, J. W. Freeman, and D. L. Sponseller. The Influence of Molybdenum on the γ' Phase in Experimental Nickel-Base Superalloys. *Metall. Trans.*, 3, 1972.

[65] A. C. Lund and P. W. Voorhees. The effects of elastic stress on microstructural development : the three-dimensional microstructure of a γ/γ' alloy. *Acta Mater.*, 50, 2002.

[66] A. C. Lund and P. W. Voorhees. A quantitative assessment of the three-dimensional microstructure of a γ/γ' alloy. *Philos. Mag.*, 83(14), 2003.

[67] R. A. MacKay and M. V. Nathal. γ' coarsening in high volume fraction nickel-base alloys. *Acta Metall. Mater.*, 38(6), 1990.

[68] J. MacSleyne, M. D. Uchic, J. P. Simmons, and M. De Graef. Three-dimensional analysis of secondary γ' precipitates in René-88 DT and UMF-20 superalloys. *Acta Mater.*, 57, 2009.

[69] J. Millán-Rodríguez, M. Bestehorn, C. Pérez-García, R. Friedrich, and M. Neufeld. Defect motion in rotating fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 74(4), 1995.

[70] H. Moulinec and F. Silva. Comparison of three accelerated FFT-based schemes for computing the mechanical response of composite materials. *Int. J. Numer. Meth. Eng.*, 97, 2014.

[71] H. Moulinec and P. Suquet. A FFT-based numerical method for computing the mechanical properties of composites from images of their microstructures. In *IUTAM Symposium on Microstructure-Property Interactions in Composite Materials*, 1995.

[72] L. Nguyen, R. Shi, Y. Wang, and M. De Graef. Quantification of rafting of γ' precipitates in Ni-based superalloys. *Acta Mater.*, 103, 2016.

[73] Y. Ni and A. G. Khachaturyan. Mechanism and conditions of the chessboard structure formation. *Acta Mater.*, 56, 2008.

[74] V. Perovic, G. R. Purdy, and L. M. Brown. On the stability of arrays of precipitates. *Acta Metall.*, 27, 1979.

[75] V. Perovic, G. R. Purdy, and L. M. Brown. Autocatalytic nucleation and elastic stabilization of linear arrays of plate-shaped precipitates. *Acta Metall.*, 29, 1981.

[76] M. Perrut. *Etude expérimentale par observation in situ de la dynamique non-linéaire des fronts de solidification directionnelle eutectiques fibreux de l'alliage transparent succinonitrile-camphre.* PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007.

[77] Y. Pomeau and P. Manneville. Stability and fluctuations of a spatially periodic convective flow. *J. Phys. Lett.*, 40(23), 1979.

[78] D. Rodney, Y. Le Bouar, and A. Finel. Phase field methods and dislocations. *Acta Mat.*, 51, 2003.

[79] A. Ruffini, Yann Le Bouar, and A. Finel. Three-dimensional phase-field model of dislocations for a heterogeneous face-centered cubic crystal. *J. Mech. Phys. Sol.*, 105, 2017.

[80] A. Ruffini and A. Finel. Phase-field model coupling cracks and dislocations at finite strain. *Acta Mater.*, 92, 2015.

[81] C. Sagui, D. Orlikowski, A. M. Somoza, and C. Roland. Three-dimensional simulations of Ostwald ripening with elastic effects. *Phys. Rev. E*, 58(4), 1998.

[82] H. Sakaguchi. Defect creation by the Eckhaus instability. *Prog. Theor. Phys.*, 85(5), 1991.

[83] I. Schmidt, R. Mueller, and D. Gross. The effect of elastic inhomogeneities on equilibrium and stability of a two particle morphology. *Mech. Mater.*, 30, 1998.

[84] C. H. Su and P. W. Voorhees. The dynamics of precipitate evolution in elastically stressed solids. - I. Inverse coarsening. *Acta Mater.*, 44(5), 1996.

[85] C. H. Su and P. W. Voorhees. The dynamics of precipitate evolution in elastically stressed solids. II - Particle alignment. *Acta Mater.*, 44(5), 1996.

[86] C. K. Sudbrack, T. D. Ziebell, R. D. Noebe, and D. N. Seidman. Effects of a tungsten addition on the morphological evolution, spatial correlations and temporal evolution of a model Ni-Al-Cr superalloy. *Acta Mater.*, 56, 2008.

[87] G. Tesauro and M. C. Cross. Climbing of dislocations in nonequilibrium patterns. *Phys. Rev. A*, 34(2), 1986.

[88] D. Texier. *Mesure et évolution des gradients de propriétés mécaniques dans le système superalliage à base de nickel MC2 revêtu MCrAlY.* PhD thesis, Université de Toulouse, 2013.

[89] E. Aeby-Gautier *et al.*

[90] S. P. Thampi, S. Ansumali, R. Adhikari, and S. Succi. Isotropic discrete Laplacian operators for lattice hydrodynamics. *J. Comp. Phys.*, 234, 2013.

[91] M. E. Thompson, C. S. Su, and P. W. Voorhees. The equilibrium shape of a misfitting precipitate. *Acta Metall. Mater.*, 42(6), 1994.

[92] K. Thornton, N. Akaiwa, and P. W. Voorhees. Large-scale simulations of Ostwald ripening in elastically stressed solids : I. Development of microstructure. *Acta Mater.*, 52, 2003.

[93] K. Thornton, N. Akaiwa, and P. W. Voorhees. Large-scale simulations of Ostwald ripening in elastically stressed solids : II. Coarsening kinetics and particle size distribution. *Acta Mater.*, 52, 2004.

[94] V. Vaithyanathan and L. Q. Chen. Coarsening of ordered intermetallic precipitates with coherency stress. *Acta Mater.*, 50, 2002.

[95] P.-L. Valdenaire. *Plasticité cristalline - Equations de transport et densités de dislocations.* PhD thesis, Université de recherche Paris Sciences et Lettres - MINES ParisTech, 2016.

[96] C. Varvenne. *Etude des effets de taille atomique sur les diagrammes de phases et les microstructures d'alliages métalliques.* PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2010.

[97] C. Varvenne, A. Finel, Y. Le Bouar, and M. Fèvre. Alloy microstructures with atomic size effects : A Monte Carlo study under the lattice statics formalism. *Phys. Rev. B*, 86(86), 2012.

[98] C. Wagner. Theorie der Alterung von Niederschlägen durch Umlösen (Ostwald-Reifung). *Z. Eletrochem.*, 65, 1961.

[99] J. C. Wang, M. Osawa, T. Yokokawa, H. Harada, and M. Enomoto. Modeling the microstructural evolution of Ni-base superalloys by phase field method combined with CALPHAD and CVM. *Comp. Mater. Sci.*, 39, 2007.

[100] Y. Wang, D. Banerjee, C. C. Su, and A. G. Khachaturyan. Field kinetic model and computer simulation of precipitation of $L1_2$ ordered intermetallics from F.C.C solid solution. *Acta Mater.*, 46(9), 1998.

[101] J. A. Warren and J. S. Langer. Prediction of dendritic spacings in a directional-solidification experiment. *Phys. Rev. E*, 47(4), 1993.

[102] J. Beau W. Webber. A bi-symmetric log transformation for wide-range data. *Meas. Sci. Technol.*, 24, 2013.

[103] F. Willot. Fourier-based schemes for computing the mechanical response of composites with accurate local fields. *C. R. Mecanique*, 343, 2015.

[104] H. Winn, Y. Tanaka, T. Shiraishi, K. Udoh, E. Miura, R. I. Hernandez, Y. Takuma, and K. Hisatsune. Coherent phase diagram of Au-Cu-Pd ternary system near and within the two-phase region of Au_3Cu and AuCu I ordered phases. *J. Alloys Compd.*, 308, 2000.

[105] Y. Xingfu, T. Sugui, W. Minggang, Z. Shu, L. Xudong, and C. Shusen. Creep behaviors and effect factors of single crystal nickel-base superalloys. *Mater. Sci. Eng., A*, 499, 2009.

[106] K. Yashiro, M. Naito, and Y. Tomita. Molecular dynamics simulation of dislocation nucleation and motion at γ/γ' interface in Ni-based superalloy. *Int. J. Mech. Sci.*, 44, 2002.

[107] H. Zapolsky. *Order, Disorder and Criticality. Chapter 4 - Kinetics of Pattern Formation : Mesoscopic and Atomistic Modelling.* World Scientific Publishing Co., 2015.

[108] X. Zhao, S. P. A. Bordas R. Duddu, and J. Qu. Effects of elastic strain energy and interfacial stress on the equilibrium morphology of misfit particles in heterogeneous solids. *J. Mech. Phys. Sol.*, 61, 2013.

[109] N. Zhou, C. Shen, M. Mills, and Y. Wang. Large-scale three dimensional phase field simulation of γ'-rafting and creep deformation. *Philos. Mag.*, 90(1-4, 7-28), 2010.

[110] J. Zhu, L.-Q. Chen, and J. Shen. Morphological evolution during phase separation and coarsening with strong inhomogeneous elasticity. *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, 9, 2001.

Résumé

Dans les alliages multiphasés, la cohérence des interfaces entre des phases en désaccord paramétrique génère des champs élastiques internes. Etant donné leur caractère à longue distance et généralement anisotrope, l'interaction de ces champs affecte fortement la cinétique des transformations de phase diffusives, et influence la forme et l'arrangement spatial des précipités cohérents. La microstructure des superalliages monocristallins à base de nickel, obtenue par précipitation de la phase γ' ordonnée $L1_2$ dans la matrice CFC γ, est un parfait exemple de système où ce genre d'évolutions survient. L'élasticité conduit à la formation d'alignements quasi-périodiques des précipités γ' cuboïdaux, séparés par de fins couloirs de matrice. La microstructure γ/γ' résultante possède cependant des défauts systématiques d'alignement des précipités, tels que des branches, des macro-dislocations et des motifs en chevrons.

Nous nous intéressons à l'origine de ces défauts de périodicité. Au moyen de calculs semi-analytiques dans l'approximation de l'élasticité homogène, nous conduisons des analyses de stabilité de l'arrangement périodique de précipités en interactions élastiques. Contrairement à la stabilité initialement attendue, les calculs ont révélé l'instabilité de la distribution périodique de précipités γ' cubiques, quelle que soit la fraction volumique considérée. Les deux principaux modes instables sont le mode longitudinal [100] et le mode transverse [110], et leur domaine d'instabilité est analysé vis-à-vis de l'anisotropie élastique et de la fraction volumique de précipités. Nous montrons que l'inhomogénéité de la constante élastique C' ne change pas ces conclusions, malgré sa forte influence sur l'évolution de la microstructure γ/γ' rapportée dans des études antérieures. Le développement des deux principales instabilités est étudié par une méthode de champ de phase classique, et en élasticité inhomogène. Des simulations à deux et trois dimensions sont réalisées pour étudier l'évolution de microstructures périodiques soumises à de légères perturbations initiales de l'arrangement des précipités. Dans le cas des modes instables, nous montrons que l'expression de l'instabilité procède essentiellement par l'évolution de la forme des précipités. Les microstructures obtenues à l'instant final présentent des motifs qui ont pu être reliés à des microstructures expérimentales. En particulier, nous montrons que le mode transverse [110] conduit à la formation de motifs en chevrons, et nous discutons l'influence de la fraction volumique de précipités et de l'inhomogénéité de C' sur sa formation. La position et la cinétique de formation des défauts de périodicité résultant du développement des instabilités sont analysées dans les simulations au moyen de paramètres topologiques issus de la phénoménologie des structures hors-équilibre. Nous utilisons ensuite une nouvelle formulation des modèles de champ de phase, intrinsèquement discrète, dans laquelle les interfaces sont résolues essentiellement avec un pas de grille sans friction de réseau et avec une invariance par rotation précise. Cette approche, appelée Sharp Phase Field Method (S-PFM), est implémentée sur une grille CFC, et avec une description des quatre variants de translation des précipités γ'. Nous montrons que la S-PFM permet la modélisation de microstructures étendues, avec un grand nombre de précipités à deux et trois dimensions, et donne accès à des informations statistiques sur la microstructure.

Nous discutons finalement la perspective de modéliser le couplage entre élasticité et microstructure à l'échelle macroscopique par une description de la dynamique des défauts de périodicité.

Mots clés: microstructure, élasticité, champ de phase, analyses de stabilité, dynamique de défauts, analyses en phases.

Abstract

In multiphase alloys, internal elastic fields often arise as a result of a coherently adjusted misfit between the lattices of coexisting phases. Given their long-range and usually anisotropic nature, the interaction of these fields is known to significantly alter the kinetics of diffusion-controlled phase transformation, as well as influence the shapes and arrangement of the misfitting precipitates. The microstructure of single-crystal nickel-base superalloys, obtained by precipitation of the $L1_2$-ordered γ' phase in the FCC γ matrix, is a perfect example where such evolutions occur. Elasticity leads to the formation of nearly periodic alignments of the cuboidal γ' precipitates, separated by narrow channels of matrix. However, the resulting γ/γ' microstructure systematically displays defects in the precipitate alignments, such as branches, macro-dislocations and chevron patterns.

We first address the question of the origin of these periodicity defects. By means of semi-analytical calculations in the homogeneous elasticity approximation, we carry out stability analyses of the periodic arrangement of elastically interacting precipitates. Although this ideal microstructure was expected to be stable, the calculations proved the periodic distribution of cubic γ' precipitates to be unstable regardless of the precipitate volume fraction. The two main unstable modes are the longitudinal [100] mode and the [110] transverse mode, and their instability range is analyzed with respect to the elastic anisotropy and to the precipitate volume fraction. The elastic inhomogeneity on the C' constant, previously reported to significantly affect the microstructure evolution in this system, is shown to leave the above conclusions unchanged. The development of the two main instabilities is then studied through a classical phase field method including inhomogeneous elasticity. Two and three dimensional calculations are performed to analyze the evolution of periodic microstructures undergoing small initial perturbations of the precipitate arrangement. For the unstable modes, we show that the instability mainly proceeds by the evolution of the precipitate shapes. The final microstructures contain patterns that could be related to experimental microstructures. In particular, we show that the [110] transverse mode leads to the formation of chevron patterns and discuss the influence of the volume fraction and elastic inhomogeneity on its formation. The position and formation kinetics of the periodicity defects resulting from the development of the instabilities are analyzed in the calculated microstructures by means of topological parameters derived from pattern formation theory. We then use a new formulation of phase field models, intrinsically discrete, in which the interfaces are resolved with essentially one grid point with no pinning on the grid and an accurate rotational invariance. This approach, known as the Sharp Phase Field Method (S-PFM), is implemented on a FCC grid and accounts for the four translational variants of the γ' precipitates. We show that the S-PFM allows for the modeling of extended microstructures, with large numbers of precipitates both in two and three dimensions, and provides access to statistical information on the microstructure.

We finally discuss the perspective of modelling the coupling between elasticity and microstructure at the macroscale by means of a description of the dynamics of periodicity defects.

Keywords: microstructure, elasticity, phase field, stability analyses, defect dynamics, phase analyses.