

MODÉLISATION STOCHASTIQUE DE LA SOLIDIFICATION EUTECTIQUE EQUIAXE

THÈSE N° 1347 (1995)

PRÉSENTÉE AU DÉPARTEMENT DES MATÉRIAUX

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES TECHNIQUES

PAR

CHRISTIAN CHARBON

Ingénieur en science des matériaux diplômé EPF
originaire de Treytorrens (VD)

acceptée sur proposition du jury:

Prof. M. Rappaz, rapporteur
Prof. J. Hilborn, corapporteur
Prof. G. Lesoult, corapporteur
Dr F. Mampaey, corapporteur

Lausanne, EPFL
1995

Recherche scientifique: la seule forme de poésie qui soit rétribuée par l'état.

J. Rostand, *Inquiétudes d'un biologiste.*

Il s'agit d'être, non pas le premier, mais unique.

J. Renard, *Journal.*

RESUME

La solidification des alliages eutectiques équiaxes a été abordée à l'aide de méthodes stochastiques. Ces méthodes permettent de relaxer l'une ou l'autre des hypothèses nécessaires à la modélisation déterministe. Cette dernière se base, notamment pour ce qui est du traitement de la rencontre des grains, sur des résultats probabilistes établis sous un certain nombre d'hypothèses (sphéricité des grains, immobilité, vitesse de croissance constante).

Les modèles stochastiques considèrent un volume de métal liquide à l'intérieur duquel germent un certain nombre de grains (en accord avec une loi de germination théorique ou empirique) et dont la croissance est dictée par une loi de croissance déterministe (théorique). L'évolution de chaque grain est suivie au cours du temps, ce qui est la différence principale par rapport aux modèles déterministes qui considèrent généralement une taille moyenne de grains. L'aspect stochastique vient principalement de la localisation aléatoire des germes dans le volume considéré.

Les méthodes stochastiques développées au cours de ce travail couplent le calcul de l'évolution de la température à celui de la germination et de la croissance des grains eutectiques. Aucun modèle n'est nécessaire pour tenir compte de la rencontre des grains, celle-ci est directement prise en compte par la nature même des modèles. Si le résultat le plus spectaculaire est une image du développement de la microstructure tout au long de la solidification, ce n'est pas le seul intérêt de ces méthodes.

L'application des méthodes stochastiques est démontrée

- pour le cas de grains qui se déplacent au cours de la solidification
- pour le cas de la solidification des fontes à graphite sphéroïdal (GS), pour laquelle la vitesse de croissance est différente pour chaque grain
- pour le cas de la solidification dans un gradient thermique, situation dans laquelle les grains peuvent s'éloigner de la forme sphérique.

Dans ces trois cas, les modèles déterministes sont impuissants à traiter le problème de manière exacte.

Dans le cas de la solidification avec mouvement des grains, il est montré que le mouvement des grains influence fortement les microstructures ainsi que les courbes de refroidissement. L'effet de la sédimentation est particulièrement important, plus que celui d'un mouvement aléatoire, homogène à l'échelle de la pièce considérée. De nombreux résultats stéréologiques originaux sont présentés pour différents types de mouvements et d'interactions.

Dans le cas de la solidification des fontes GS, il est montré que la prise en compte de la cinétique propre à chaque grain est importante pour les distributions de

taille et pour les microstructures. Par contre, l'effet sur les courbes de refroidissement et les densités de grains est faible. Il est montré que la méthode de déconvolution de Saltykov pour remonter d'une taille de grains 2D à une taille de grains 3D est à éviter, si une estimation de la distribution n'est pas nécessaire. Dans ce cas, une simple loi stéréologique basée sur une taille de grain unique est suffisante. Il est également montré que l'effet d'une coupe 2D à travers une microstructure 3D est d'atténuer très fortement les particularités des distributions 3D.

Dans le cas de la refusion laser (grains dans un gradient thermique), l'influence des paramètres du procédé que sont le gradient de température et la vitesse de balayage ainsi que celle des paramètres de germination que sont la densité de grains et la surfusion de germination est clairement mise en évidence par le modèle stochastique 2D ou 3D ainsi que par un modèle analytique. Une tentative de couplage du modèle stochastique avec une loi de germination hétérogène dérivée du modèle de Thompson et Spaepen a montré le besoin de connaître les valeurs thermodynamiques précises en fonction de la température et de la composition. Un bon accord qualitatif entre le modèle et l'expérience est tout de même atteint. Il est montré que l'asymétrie des grains n'a pas lieu uniquement pour des forts gradients thermiques et des vitesses élevées des isothermes, mais que ce phénomène peut également se rencontrer en coulée conventionnelle.

Les trois modèles stochastiques sont avant tout un outil très performant de stéréologie numérique et permettent ainsi un grand nombre d'études qui ne seraient pas réalisables à l'aide des modèles déterministes. Ils donnent accès à une image réaliste de la microstructure en cours de solidification. Si les modèles développés dans ce travail se sont essentiellement concentrés sur des échantillons de petite taille, leur extension à une taille de pièce réaliste est envisageable sans problème, de même que le couplage avec un calcul macroscopique de la diffusion de chaleur. Seules les contraintes liées au matériel informatique peuvent être un frein à de tels développements.

ABSTRACT

The solidification of eutectic alloys has been described by means of stochastic methods. These methods allow some of the hypotheses which are usually made in deterministic models to be relaxed, in particular those related to the description of grain impingement. Deterministic solidification models assume that grains are spherical, are stationary and have a unique growth rate.

Stochastic methods consider a volume of liquid metal within which a given number of grains can nucleate (according to a theoretical or empirical relationship). The growth rate being given by a deterministic relation, the evolution of each grain can be individually traced during solidification. This is the main difference with respect to deterministic models, which generally consider a mean grain radius. The stochastic aspect arises mainly from the random location of the nuclei in the volume of the melt.

The stochastic methods developed in the present work couple the heat balance of a small specimen with a calculation of the nucleation and growth of the grains. No model is required for grain impingement since it is directly accounted for by these methods. Although the most spectacular result induced by such models is an image of the evolution of the microstructure during solidification, it is not the only interest of these methods.

These stochastic methods are developed and applied to three particular cases:

- grains which move during solidification,
- nodular cast iron solidification, for which the growth rate is different for each grain,
- solidification in a thermal gradient, a situation for which the grains are no longer spherical in shape.

In these three cases, deterministic models are not able to describe the solidification correctly.

In the first case, it is shown that the movement of the grains has a strong influence on the resulting microstructure and on the cooling curve. The effect of sedimentation is more pronounced than that of a random movement, which is homogeneous at the scale of the sample. Many original stereological results are presented for different types of grain movement and interaction.

In the case of nodular cast iron, it is shown that the grain radius-dependent growth rate modifies both size distributions and microstructures, but has little effect on the cooling curve and grain density. It is shown that the method of Saltykov used to obtain volumetric grain size distributions from metallographic sections is very imprecise and thus should be avoided. In most cases, a simple stereological relationship based on a unique grain size is sufficient. It is also

shown that a 2-dimensional cut through the simulated 3-dimensional microstructure strongly smoothes any differences seen in the volumetric grain size distributions.

In the case of laser remelting, the grains are elongated in the direction of the thermal gradient. The asymmetry of the grains is studied as a function of the process parameters (temperature gradient and scanning velocity) and of the nucleation parameters (nucleation undercooling and grain density), using 2D and 3D stochastic models and an analytical 1D model. The grain asymmetry is not specific to high temperature gradients and growth rates: it can also be observed under conventional casting conditions.

These three stochastic models provide a very useful tool for computer metallography and stereology. They give a realistic picture of the grain structure during the entire solidification process. If the models developed in this work are focused on small samples, their extension to more complex geometries and thermal conditions is possible, the only limitation of such tools arising from the memory space and power of present day computers.

La dernière chose que l'on trouve en faisant un ouvrage est de savoir celle qu'il faut mettre la première.

B. Pascal, *Pensées*.

TABLE DES MATIERES

1	Introduction	1
2	Rappels théoriques	5
2.1	Germination	5
2.1.1	Germination homogène des substances pures	5
2.1.2	Germination hétérogène des substances pures	7
2.1.3	Germination des systèmes multicomposés	9
2.1.4	Germination des grains eutectiques équiaxes	10
2.1.5	Modèles de germination instantanée	12
2.2	Croissance	13
2.2.1	Croissance des eutectiques réguliers	14
2.2.2	Croissance des eutectiques irréguliers	18
2.2.3	Croissance rapide des eutectiques	19
2.2.4	Sélection des microstructures: la zone couplée	19
2.2.5	Croissance des fontes à graphite sphéroïdal	20
2.3	Rencontre	21
2.4	Thermique	25
2.5	Modèles déterministes de la solidification eutectique équiaxe	26
2.6	Caractérisation des microstructures	27
2.6.1	Analyse de microstructures réelles	27
2.6.2	Analyse de modèles de microstructures	28
2.6.3	Analyse probabiliste	28
2.6.4	Modélisation stochastique	33
3	Expériences	35
3.1	Petits échantillons trempés en cours de solidification	35
3.2	Trempe en cours de solidification dirigée (TSD)	37
3.3	Refusion par laser	39

4	Simulation	41
4.1	Méthode cellulaire	41
4.1.1	Germination et croissance des grains	42
4.1.2	Représentation de la microstructure	46
4.2	Méthode de tir	46
4.2.1	Germination et croissance des grains	47
4.2.2	Mouvement des grains	50
4.2.3	Représentation de la microstructure	53
4.3	Méthode mixte	54
4.3.1	Germination et croissance	54
4.3.2	Représentation de la microstructure	59
5	Résultats	61
5.1	Validation des méthodes numériques	61
5.2	Grains avec mouvement	63
5.2.1	Résultats expérimentaux	63
5.2.2	Résultats de la simulation	67
5.2.3	Avantages et inconvénients de la méthode de tir	81
5.2.4	Conclusion intermédiaire	81
5.3	Fontes à graphite sphéroïdal	83
5.3.1	Détermination de la surface de l'interface solide-liquide	84
5.3.2	Microstructures simulées et expérimentales	86
5.3.3	Discussion de l'influence de la vitesse propre à chaque grain	87
5.3.4	Caractérisation des microstructures	89
5.3.5	Conclusion intermédiaire	100
5.4	Grains croissant dans un gradient thermique	101
5.4.1	Résultats expérimentaux	101
5.4.2	Modèle simple basé sur une surfusion de germination constante	104
5.4.3	Modèle basé sur une loi de germination réaliste	113
5.4.4	Application du modèle pour des conditions de coulée conventionnelle	120
5.4.5	Conclusion intermédiaire	121

6 Conclusion	123
Remerciements	125
Annexe 1: Développements probabilistes	127
Annexe 2: Description de la forme des joints de grains	137
Annexe 3: Grains dans un gradient, solution analytique	143
Annexe 4: Mesures de la surface solide-liquide dans les fontes GS	149
Liste des symboles	151
Références	157
Liste des publications	163
Curriculum Vitae	165

C'est le microscopique qui est la réalité profonde, car il sous-tend le macroscopique: c'est en lui qu'il faut chercher les ultimes arcanes de la réalité qui, dans le macroscopique, se dissimulent sous l'imprécision des données sensorielles et dans la masse confuse des moyennes statistiques.

L. de Broglie, *Physique et microphysique*.

1 INTRODUCTION

Cette contribution s'inscrit dans la continuité des travaux entrepris au Laboratoire de Métallurgie Physique (LMPH), dans le domaine de la modélisation numérique de la solidification des alliages métalliques. Elle se concentre sur un type particulier d'alliages et de microstructure: les alliages binaires de microstructure équiaxe eutectique.

Les alliages eutectiques, en raison de leur bonne coulabilité et de leurs propriétés mécaniques intéressantes, ont une importance considérable en métallurgie. Deux systèmes sont particulièrement présents dans les réalisations techniques ou industrielles: Al-Si et Fe-C. De ce dernier système découlent tous les types de fontes.

Tout métal utilisé pour une application quelconque est passé, au moins lors de son élaboration, par une étape de solidification. La connaissance du déroulement de la solidification est indispensable pour maîtriser l'influence des différents paramètres du procédé sur la formation des microstructures et l'évolution des défauts. Pour décrire la solidification d'une pièce coulée d'alliage eutectique, il est nécessaire de considérer des phénomènes physiques se déroulant à quatre échelles différentes:

- pièce: remplissage du moule, convection thermique et solutale, macroségrégation, échanges thermiques par convection, conduction et radiation, etc.



Figure 1.1 Pièce de fonderie en fonte grise (Davies (1973))

- grains: arrangement des grains (rencontre), mouvement des grains, microségrégation, formation de porosité, etc.

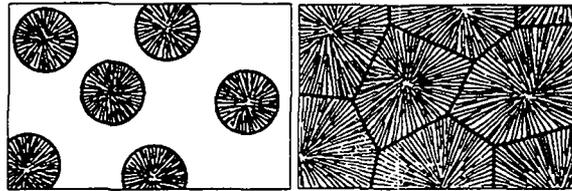


Figure 1.2 Schéma du déroulement de la solidification eutectique équiaxe (Kurz et Fisher (1989))

- lamelles: diffusion de soluté entre les lamelles, courbure, etc.



Figure 1.3 Comparaison entre modèle et expérience pour la croissance stationnaire d'un eutectique organique transparent (Jackson et Hunt (1966)).

- atomes: germination, incorporation des atomes du liquide à la phase solide, tension de surface, diffusion de soluté, enthalpie libre, etc.

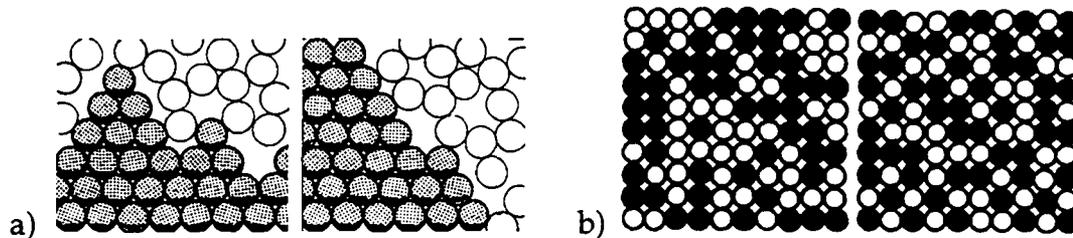


Figure 1.4 a) Représentation schématique de l'interface solide-liquide pour un métal non facetté (gauche) et pour un métal facetté (droite) (Kurz et Fisher (1989)).
b) Modèle de solution aléatoire (gauche) et de solution ordonnée à courte distance (droite) pour un liquide composé de deux types d'atomes (Porter et Easterling (1981)).

Ces quatre niveaux sont bien sûr interconnectés, et la description de la solidification se doit de les prendre en compte simultanément. Dans le présent travail, l'effort a été porté sur le deuxième niveau, celui des grains, et en particulier sur la formation et la description des microstructures. Les trois autres niveaux ont été pris en compte par l'intermédiaire de modèles préexistants. Le cas des microstructures équiaxes (germination hétérogène dans le liquide) a été préféré à celui des eutectiques colonnaires ou orientés, car le premier type de microstructures est de loin le plus fréquemment rencontré dans les alliages industriels et pose un certain nombre de problèmes intéressants quant à la description de la croissance des grains.

La solidification eutectique équiaxe peut être décomposée en trois phénomènes distincts bien que partiellement simultanés:

- la germination,
- la croissance,
- la rencontre des grains.

Ces trois étapes ont été incluses dans un modèle stochastique qui permet de mieux comprendre et d'expliquer certains résultats découlant de l'arrangement des grains, de leur rencontre ou de leur géométrie particulière. Jusqu'alors, les modèles de croissance équiaxe faisaient généralement l'hypothèse de:

- grains sphériques,
- grains croissant tous à la même vitesse pour une surfusion fixée,
- grains immobiles.

Ces trois hypothèses sont mal adaptées au cas de la solidification, où les grains peuvent s'éloigner de la forme sphérique lorsqu'ils croissent dans un gradient de température, ou croître à des vitesses différentes dans le cas des fontes à graphite sphéroïdal, ou se déplacer au cours de la solidification sous l'influence de la convection naturelle ou forcée. Les méthodes stochastiques permettent de relaxer une ou plusieurs de ces hypothèses et d'étudier ainsi leur influence sur la solidification.

Pour ce faire, une **méthode cellulaire**, dérivée des automates cellulaires, a été développée, ainsi qu'une méthode originale, dite **méthode de tir**, qui se base sur une discrétisation de l'interface solide-liquide de chaque grain. Ces méthodes ont été appliquées à trois études qui ne peuvent pas être réalisées à l'aide de modèles déterministes:

- influence du mouvement des grains sur la solidification,
- influence d'une cinétique de croissance propre à chaque grain dans les fontes à graphite sphéroïdal,
- influence d'un gradient de température sur la croissance des grains eutectiques.

Si ce travail ne présente que quelques validations expérimentales, il expose un grand nombre de résultats de simulation qui montrent que la modélisation peut être poussée à un tel point qu'elle devient un formidable outil de stéréologie numérique. En particulier, l'influence des paramètres de germination et de croissance, ou encore celle du mouvement des grains sur la microstructure finale, a été mise en évidence. Des relations entre microstructures tridimensionnelles et micrographies bidimensionnelles ont également été établies.

Chacune de nos lectures laisse une graine qui germe.

J. Renard, *Journal*, 8 mai 1901.

2 RAPPELS THEORIQUES

Dans ce chapitre, un survol des connaissances théoriques nécessaires au développement du sujet est effectué. La description de la modélisation des trois étapes de la solidification: germination, croissance et rencontre des grains est rappelée. Une part importante est consacrée à la caractérisation des microstructures par diverses méthodes théoriques et expérimentales.

2.1 Germination

Dans cette section, les théories de base de la germination des substances pures sont brièvement rappelées, ainsi que leur extension aux systèmes multicomposés. Le cas particulier du début de la solidification équiaxe des eutectiques est également évoqué. Le développement des deux premières sections se trouve dans la plupart des ouvrages consacrés à la solidification des métaux (Chalmers (1964), Flemings (1974), Perepezko (1988), Kurz et Fisher (1989)).

2.1.1 Germination homogène des substances pures

La force motrice pour la germination de la phase solide au sein du liquide est la surfusion: au-dessous de la température de fusion, la solidification du liquide résulte en un abaissement de l'enthalpie libre du système. Cependant, la création d'une interface solide-liquide, associée à la création d'un germe, cause un accroissement de l'enthalpie libre du système. Cette compétition entre gain d'énergie volumique et perte d'énergie surfacique est la base du comportement à la germination des métaux.

La variation d'enthalpie libre volumique, ΔG_v , est donnée par la relation⁽¹⁾ :

$$\Delta G_v = \frac{\Delta H_{m,f} \Delta T}{T_f V_m} \quad 2.1$$

où $\Delta H_{m,f}$ est l'enthalpie molaire de fusion, ΔT la surfusion ($= T_f - T$), T_f la température de fusion et V_m le volume molaire de la phase solidifiée. La variation d'enthalpie libre surfacique générée par la création de l'interface solide-liquide n'est rien d'autre que l'énergie de surface, σ :

$$\Delta G_s = \sigma \quad 2.2$$

(1) Les symboles utilisés dans ce travail sont définis au fur et à mesure de leur apparition. Ils sont récapitulés à la fin de cet ouvrage.

Ainsi, la création d'une particule solide de volume V et de surface S résulte en un gain d'enthalpie libre donné par:

$$\Delta G_{hom} = -\Delta G_v V + \Delta G_s S = -\frac{\Delta H_{m,f}\Delta T}{T_f V_m} V + \sigma S \quad 2.3$$

Afin de minimiser le terme de surface par rapport au terme de volume, la particule solide va prendre une forme sphérique, pour laquelle l'expression de V et S est particulièrement simple.

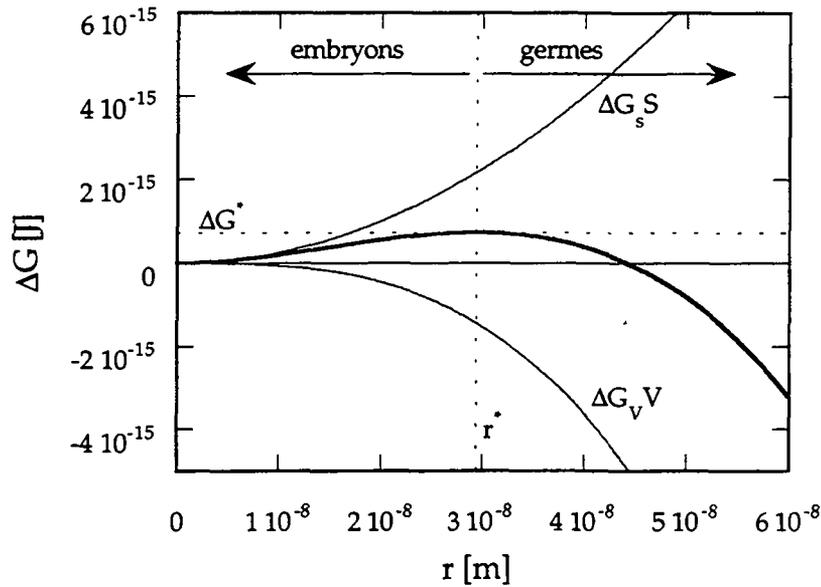


Figure 2.1 Gain d'enthalpie libre généré par la formation d'un germe solide sphérique de rayon r , pour une valeur ΔG_v de $1.37 \cdot 10^7$ [J/m³] et σ de 0.2 [J/m²]. La courbe passe par un maximum qui définit la transition entre embryon instable et germe stable.

Dans ce cas particulier, il existe un rayon critique, r^* , au-delà duquel les embryons instables deviennent des germes stables. Le rayon critique, r^* , et le gain d'enthalpie libre associé, $\Delta G(r^*)$, sont obtenus en dérivant la relation 2.3:

$$r^* = \frac{2\sigma}{\Delta G_v} = \frac{2\sigma T_f V_m}{\Delta H_{m,f}\Delta T} \quad 2.4$$

et

$$\Delta G_{hom}(r^*) = \frac{16\pi\sigma^3}{3\Delta G_v^2} = \frac{16\pi\sigma^3 T_f^2 V_m^2}{3\Delta H_{m,f}^2 \Delta T^2} \quad 2.5$$

A partir de ces considérations énergétiques, Volmer et Weber (1926) et Becker et Döring (1935) ont proposé un modèle permettant de calculer le taux de

germination de gouttelettes de liquide dans une vapeur sursaturée. Turnbull et Fisher (1949) ont étendu leur raisonnement au cas de la germination du solide dans les métaux liquides surfondus. Dans un liquide surfondu, en raison des mouvements aléatoires des atomes, des amas d'atomes de structure semblable à celle du solide existent à toute température. Comme les amas sont très dilués dans le liquide, leur concentration peut être décrite par un modèle de solution idéale:

$$C(N) = C_l \exp \left[- \frac{\Delta G_{hom}(N)}{k_B T} \right] \quad 2.6$$

où N désigne le nombre d'atomes dans l'amas, C_l le nombre d'atomes par volume unitaire de métal et k_B la constante de Boltzman. Le taux de germination est donné par le nombre d'embryons de taille critique en équilibre avec le liquide à une surfusion donnée qui deviennent surcritiques. La prise en compte du flux d'atomes du liquide atteignant les embryons de taille critique, leur permettant ainsi de devenir des germes, conduit à l'expression suivante du taux de germination:

$$I = \nu N_{S^*} C(N^*) = \frac{D_l}{a^2} \frac{4\pi r^{*2}}{a^2} C_l \exp \left[- \frac{\Delta G_{hom}(N^*)}{k_B T} \right] \quad 2.7$$

où ν est la fréquence de saut des atomes, N_{S^*} le nombre d'atomes à la surface du germe critique, a la distance interatomique et D_l le coefficient de diffusion dans le liquide. Pour les métaux typiques, cette relation se traduit par:

$$I = I_{0,hom} \exp \left[- \frac{\Delta G_{hom}(N^*)}{k_B T} \right] \cong 10^{40} \exp \left[- \frac{16\pi\sigma^3 T_f^2 V_m^2}{3k_B T \Delta H_{m,f}^2 \Delta T^2} \right] \quad 2.8$$

Dans des expériences très bien contrôlées, Perepezko et Le Beau (1982) ont obtenu des surfusions de l'ordre de quelques centaines de degrés pour la germination de l'aluminium, ce qui pourrait être attribué à la germination homogène. Cependant, dans la situation pratique d'une coulée industrielle, des surfusions de quelques degrés sont suffisantes pour engendrer la solidification d'un alliage. Ces différences peuvent s'expliquer par la théorie de la germination hétérogène.

2.1.2 Germination hétérogène des substances pures

Turnbull (1950) a développé la théorie de la germination d'un métal pur sur un substrat. Le gain d'enthalpie libre volumique est toujours donné par la relation 2.1, par contre, le volume du germe n'est plus celui d'une sphère mais celui d'une calotte sphérique:

$$V = \frac{4}{3} \pi r^3 \left(\frac{2 - 3\cos\theta + \cos^3\theta}{4} \right) \quad 2.9$$

où θ est l'angle de mouillage de l'embryon en contact avec le liquide sur le substrat (fig. 2.2).

La création de surface est associée à un changement d'enthalpie libre donné par:

$$\Delta G_s = \sigma_{s-l} A_{s-l} + (\sigma_{s-sub} - \sigma_{sub-l}) A_{s-sub} \quad 2.10$$

où les indices s , l et sub désignent le solide, le liquide et le substrat, A_{s-l} est la surface libre de la calotte en contact avec le liquide et A_{s-sub} la surface de l'interface solide-substrat. De plus, l'équilibre des tensions de surface impose que:

$$\sigma_{sub-l} = \sigma_{s-sub} + \sigma_{s-l} \cos\theta \quad 2.11$$

Par combinaison des relations 2.10 et 2.11 et expression des valeurs de A_{s-l} et A_{s-sub} en fonction de r et θ , il vient:

$$\Delta G_s = 4\pi r^2 \sigma_{s-l} \left(\frac{2 - 3\cos\theta + \cos^3\theta}{4} \right) \quad 2.12$$

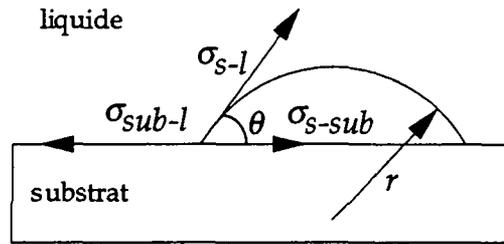


Figure 2.2 Germination hétérogène du solide sur un substrat. La germination hétérogène permet de diminuer fortement le volume du germe nécessaire pour atteindre le rayon critique r^* .

Le gain d'enthalpie libre associé à la formation d'un germe de rayon r est ainsi donné par:

$$\Delta G_{hét} = \Delta G_{hom} f(\theta) \quad \text{avec} \quad 2.13$$

$$f(\theta) = \left(\frac{2 - 3\cos\theta + \cos^3\theta}{4} \right) = \frac{(\cos\theta - 1)^2 (\cos\theta + 2)}{4} \quad 2.14$$

Pour $\theta < \pi$, la germination hétérogène permet d'abaisser le seuil d'enthalpie libre associé à la formation d'un germe de rayon r du facteur $f(\theta)$.

Le taux de germination est alors donné par:

$$I = I_{0,hét} \exp \left[- \frac{\Delta G_{hom}(N^*) f(\theta)}{k_B T} \right] \cong 10^{30} \exp \left[- \frac{16\pi \sigma^3 T_f^2 V_m^2 f(\theta)}{3k_B T \Delta H_m f^2 \Delta T^2} \right] \quad 2.15$$

L'abaissement sévère du facteur préexponentiel provient du fait que tous les atomes du liquide ne sont plus des sites de germination potentiels. Il tient compte de la concentration du liquide en sites de germination hétérogène (valeur arbitraire de la densité d'atomes à la surface des substrats sur lesquels peuvent être initiés des germes ayant la forme d'une calotte).

2.1.3 Germination des systèmes multicomposés

Dans le cas des alliages, il convient d'introduire la dépendance en composition des différentes variables thermodynamiques du problème. Thompson et Spaepen (1983) ont proposé le modèle suivant.

La composition du germe est celle qui produit le plus grand gain d'enthalpie libre volumique. L'enthalpie libre du solide est décrite par un modèle de solution diluée ou idéale tandis que celle du liquide est décrite par un modèle de solution régulière.

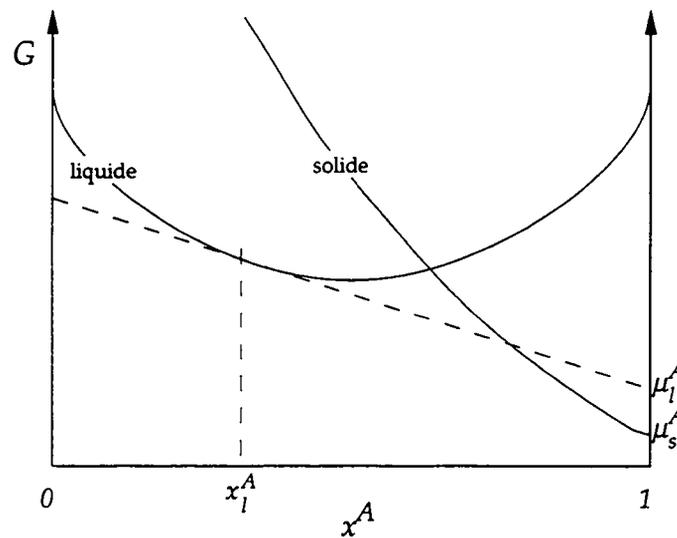


Figure 2.3 Représentation schématique des courbes d'enthalpie libre du liquide et du solide lorsque l'élément B est quasiment insoluble dans l'élément A cristallin. Le gain d'enthalpie libre molaire provoqué par la solidification de cristaux de A à partir du liquide de composition x_l^A est donné par la différence des potentiels chimiques $\mu_s^A - \mu_l^A$.

Dans le cas particulier d'un alliage pour lequel la solubilité de l'élément B en solution solide dans A est quasiment nulle, le gain d'enthalpie libre volumique causé par la solidification du métal à une surfusion $\Delta T = T_{liq} - T$, est donné par:

$$\Delta G_v = (T_{liq} - T)(\Delta S_f^A - R \ln x_l^A) / V_m \quad 2.16$$

où T_{liq} est la température du liquidus de l'alliage, ΔS_f^A l'entropie de fusion molaire de l'élément A pur, R la constante des gaz parfaits et x_l^A la composition de l'alliage en fraction molaire. Thompson et Spaepen admettent que le volume

molaire de l'alliage est donné par une simple loi de mélange. Ils utilisent un taux de germination donné par une relation équivalente à la relation 2.8:

$$I = \frac{10^{36}}{\eta} \exp \left[-\frac{16\pi}{3k_B T} \frac{\sigma^3}{\Delta G_v^2} \right] \quad 2.17$$

où η est la viscosité du liquide, donnée par la relation:

$$\eta = 10^{-3.3} \exp \left[3.34 \frac{T_{liq}}{T - T_g} \right] \quad 2.18$$

avec T_g la température de transition vitreuse estimée pour un alliage par la relation:

$$T_g = 0.25 (x_1^A T_f^A + (1 - x_1^A) T_f^B) \quad 2.19$$

où T_f désigne la température de fusion des éléments purs.

L'énergie d'interface solide-liquide est donnée par un modèle d'interface (Spaepen (1975)) qui considère que l'entropie de fusion est due essentiellement à l'entropie configurationnelle:

$$\sigma = 0.86 \frac{\Delta S_{m,f} T}{(N_a V_m^2)^{1/3}} \quad 2.20$$

où N_a est le nombre d'Avogadro. La dépendance de l'énergie d'interface avec la composition intervient dans l'évaluation de l'entropie de fusion molaire et du volume molaire qui sont tous deux estimés par une simple loi de mélange linéaire.

2.1.4 Germination des grains eutectiques équiaxes

La microstructure eutectique est caractérisée par la croissance simultanée de deux phases. Il va de soi, pour des raisons d'énergie d'interface et de courbure, que le germe ne peut être composé que d'une seule des deux phases, la croissance couplée d'un germe de quelques nm n'étant pas réaliste. Plusieurs auteurs se sont penchés sur les premières étapes de la solidification eutectique. Leurs observations portent principalement sur deux effets:

- la *germination non réciproque*: une des phases primaires est un bon inoculant pour l'eutectique alors que la seconde est sans effet,
- la *formation du halo*: la croissance eutectique se déroule en trois étapes, i) germination et croissance de la phase primaire, ii) germination de la seconde phase à partir de la surface et croissance sous forme de coquille (halo), iii) germination de l'eutectique et

croissance de celui-ci jusqu'à la fin de la solidification.

À l'aide d'un microscope à étage chauffant, Sundquist et Mondolfo (1961) ont mesuré pour plusieurs systèmes binaires la température à laquelle la solidification de l'eutectique se produit, en présence de l'une ou de l'autre phase primaire. Ils ont montré que, pour la plupart des systèmes, l'une des phases est un bon inoculant pour l'eutectique alors que l'autre est inefficace.

Sundquist *et al* (1962) ont de plus observé la formation d'un halo de la seconde phase autour de la phase primaire pour certains systèmes. Ils expliquent ce phénomène par le fait que la phase primaire apparaît au-dessus de la température à laquelle la phase secondaire germe. Aucun halo n'est formé si la surfusion de germination de la première phase est inférieure à celle de la seconde.

Mondolfo (1965) explique les différentes morphologies présentées par un même eutectique binaire par des considérations sur la germination. Il rend attentif au fait que la morphologie n'est pas propre à un système particulier mais dépend des conditions de refroidissement et d'inoculation.

Kofler (1965) a étudié la solidification de différents systèmes binaires organiques et défini le concept de zone couplée. Elle explique la formation du halo dans le cas particulier d'une trempe par des considérations basées strictement sur la zone couplée et les surfusions de croissance.

Gigliotti *et al* (1970) expliquent la présence du halo par le fait que, pour certains alliages, l'extension métastable du liquidus de la phase primaire ne se trouve pas dans la zone couplée. Plus la zone couplée est éloignée de l'extension du liquidus, plus le halo sera grand, la solidification primaire permettant de ramener la composition du liquide dans la zone couplée.

Lemaignan (1981) a étudié à l'aide d'un microscope électronique à transmission le début de la solidification eutectique d'un alliage Al-Ge. Il distingue trois étapes:

- germination de la phase primaire et croissance sous forme globulitique,
- déstabilisation du germe et croissance dendritique, enrichissement en soluté dans les zones interdendritiques,
- germination de la seconde phase et croissance de l'eutectique, l'espacement des lamelles eutectiques étant voisin de la distance entre les bras de dendrites.

Il convient de noter que Lemaignan observe un échantillon d'environ 10 μm et que la taille caractéristique des microstructures est d'environ 1 μm .

Podolinsky *et al* (1986) ont étudié la solidification de grains eutectiques d'alliages organiques. Ils ont mis le liquide surfondu en contact avec un germe d'une des phases primaires et observé le déroulement de la solidification. La germination non réciproque des grains eutectique est ainsi mise en évidence.

Le début de la solidification eutectique équiaxe est un phénomène mal compris. Les difficultés principales qui se présentent à qui veut tenter d'éclaircir le sujet sont la description de la germination des différentes phases et leur cinétique de croissance, qui est hautement non stationnaire.

2.1.5 Modèles de germination instantanée

Le modèle de germination hétérogène (éq. 2.15) montre que chaque type de site est activé dans une gamme de températures très étroite. Au-dessus d'une certaine température, les sites sont inactifs et en-dessous, la densité augmente si rapidement que tous les sites à disposition sont quasiment immédiatement activés. Si le métal liquide ne contenait qu'un seul type de sites, la densité finale de grains ne dépendrait donc pas de la vitesse de refroidissement, ce qui est contraire aux observations expérimentales. Ceci ne signifie pas que le modèle de germination hétérogène est faux mais plutôt que le liquide contient un très grand nombre de sites de germination, caractérisés par des surfusions de germination diverses. Comme il n'est pas possible de décrire par un modèle théorique les sites de germination présents dans un liquide, les scientifiques ayant tenté de modéliser de façon pragmatique la germination des alliages ont été amenés à utiliser diverses relations empiriques qui prédisent l'évolution de la densité de grains en fonction de la surfusion.

Densité imposée

La densité de grains est fixée indépendamment des conditions de refroidissement et la formation des grains est initiée à une surfusion fixée.

$$n = n_0 = \text{cst} \quad \text{dès que } \Delta T > \Delta T_n \quad 2.21$$

Ce modèle est le plus simple qui se puisse imaginer. Il a été utilisé par Kolmogorov (1937), Johnson et Mehl (1939) et Avrami (1940) (*KJMA*) pour le modèle de transformations de phases à l'état solide et par Fredriksson et Svensson (1985) pour la solidification.

Modèles basés sur la théorie de la germination hétérogène

Ce type de modèles découle directement de la théorie de la germination hétérogène. Les paramètres de l'équation 2.15 sont alors fixés arbitrairement ou ajustés sur des mesures expérimentales (Maxwell et Hellowell (1975), Hunt (1984), Stefanescu et Kanetkar (1986)).

Ces deux premiers types de modèles ne permettent pas de décrire la variation de densité de grains observée en fonction de la surfusion.

Modèles statistiques

En mesurant la densité de grains obtenue pour une même charge d'alliage à différentes vitesses de refroidissement, il est possible d'obtenir une image de la variation de densité de grains en fonction de la surfusion maximum atteinte. Oldfield (1966) utilise la relation:

$$n = A_n \Delta T^2 \quad 2.22$$

pour des alliages eutectiques Fe-C-Si, où A_n est une constante. Su *et al* (1985) modifient cette relation pour imposer une surfusion minimale, ΔT_B , à partir de laquelle la germination débute:

$$n = A_n (\Delta T^2 - \Delta T_B^2) \quad 2.23$$

Zou (1989) a utilisé une distribution de sites de germination définie par une gaussienne:

$$\frac{dn}{d(\Delta T)} = \frac{n_{max}}{\sqrt{2\pi} \Delta T_\sigma} \exp \left[-\frac{(\Delta T - \Delta T_0)^2}{2\Delta T_\sigma^2} \right] \quad 2.24$$

Cette forme de la distribution de densité de germination est destinée à décrire la population des sites de germination présents dans le liquide. Les trois paramètres n_{max} , ΔT_σ et ΔT_0 sont déterminés expérimentalement.

Ce type de modèles se contente de décrire l'évolution de la densité de grains en fonction de la surfusion mais ne découle pas d'un développement thermodynamique. Aussi, pour chaque type d'alliage, voire pour chaque coulée, il est nécessaire de réaliser quelques essais afin de pouvoir déterminer les paramètres des équations 2.22-2.24. Malgré leurs limites, ces modèles sont couramment utilisés, car ils permettent de reproduire, de manière simple, l'évolution de la densité de grains en fonction de la surfusion.

2.2 Croissance

La vitesse de solidification d'un échantillon de microstructure eutectique est dictée par le flux de chaleur qui quitte l'échantillon. A l'échelle microscopique, l'avance du front solide est déterminée par la diffusion du soluté dans le liquide, d'une phase solide à l'autre. La microstructure eutectique, en raison de son arrangement régulier de fines lamelles alternées, permet de diminuer la distance de diffusion; cet avantage se paie par une augmentation de la surface interphases et par une augmentation de la courbure. C'est la recherche d'un optimum entre distance de diffusion et courbure qui dicte la taille de la microstructure.

Dans cette section, la croissance à faible vitesse des eutectiques est tout d'abord développée pour les eutectiques réguliers et les eutectiques irréguliers. La croissance rapide est alors brièvement abordée, suivie de la croissance des fontes à graphite sphéroïdal.

2.2.1 Croissance des eutectiques réguliers

Brandt (1945) a décrit correctement la croissance lamellaire de la perlite mais son analyse souffrait d'approximations de premier ordre. Zener (1946) a présenté une analyse basée sur de simples considérations physiques. Il a proposé le critère de croissance à l'extremum. Tiller (1958) a appliqué un raisonnement similaire à la croissance eutectique. Hillert (1957) a développé le modèle de Brandt et en a présenté une analyse rigoureuse, ce qui lui permit de calculer la forme de l'interface solide-liquide en fonction des conditions de refroidissement. Jackson et Hunt (1966), en appliquant le formalisme de Hillert à la solidification eutectique, ont formulé une théorie rigoureuse qui reproduit les relations observées expérimentalement entre la surfusion, ΔT , la vitesse de croissance, v , et l'espacement interlamellaire, λ , pour de faibles nombre de Péclet⁽¹⁾.

Les étapes principales de leur développement sont données ci-après.

Le moteur de la solidification est la surfusion. Il est généralement admis que la surfusion totale du front de solidification est la somme de quatre contributions: la surfusion cinétique, ΔT_k , associée à l'attachement des atomes, la cinétique chimique, ΔT_c , associée à la diffusion de soluté, la surfusion thermique, ΔT_t , associée à la diffusion de chaleur à l'interface et la surfusion de courbure, ΔT_r , associée à la taille de la microstructure:

$$\Delta T = \Delta T_c + \Delta T_r + \Delta T_t + \Delta T_k \quad 2.25$$

La figure 2.4 donne une représentation schématique d'un diagramme d'équilibre eutectique et de la microstructure lamellaire.

Sous l'hypothèse de croissance à faible Péclet de deux phases non facettées, la surfusion cinétique peut généralement être négligée. De plus, la diffusivité thermique dans les métaux étant beaucoup plus élevée que le coefficient de diffusion chimique dans le liquide (nombre de Lewis⁽²⁾ de l'ordre de 10^4), il en

(1) Le nombre de Péclet, $P_e = \lambda v / 2D$, est le rapport entre une distance caractéristique de la microstructure et l'épaisseur de la couche de diffusion. Un faible nombre de Péclet signifie que la couche de diffusion est grande par rapport à une dimension caractéristique de la microstructure.

(2) Le nombre de Lewis, $L_e = \alpha / D$, est le rapport entre la diffusivité thermique, $\alpha = \kappa / \rho c_p$, où κ est la conductivité thermique et ρc_p la chaleur spécifique volumique, et le coefficient de diffusion chimique, D .

résulte que la surfusion thermique peut être négligée et que la surfusion du front eutectique est uniforme.

La relation 2.25 se réduit ainsi en:

$$\Delta T = \Delta T_c + \Delta T_r \quad 2.26$$

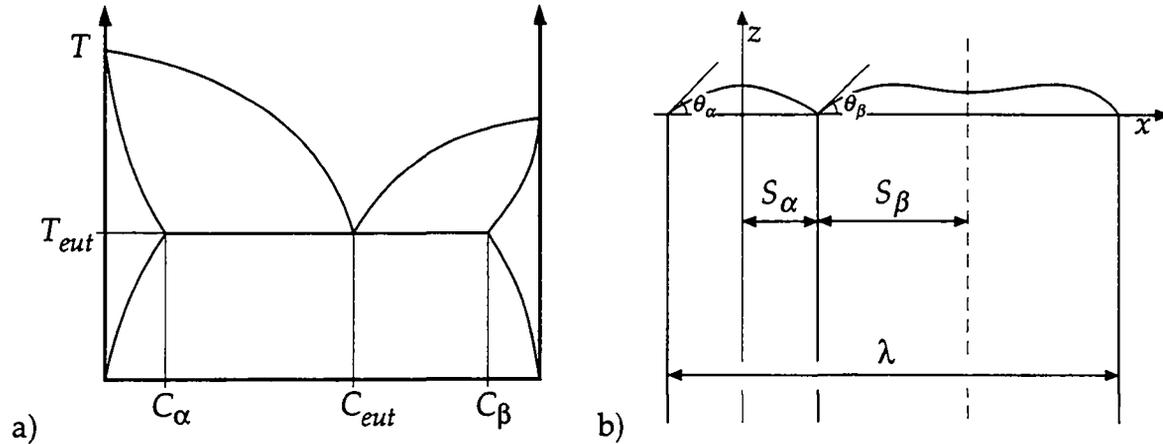


Figure 2.4 a) Diagramme d'équilibre schématisé d'un système binaire eutectique définissant les quantités T_{eut} , C_α , C_{eut} et C_β .

b) Représentation schématisée de deux lamelles eutectiques définissant les axes x et z ainsi que les quantités S_α , S_β , θ_α et θ_β .

La surfusion chimique est donnée par le diagramme de phase. Les surfusions chimiques des phases α et β sont respectivement:

$$\Delta T_c^\alpha = -m_\alpha (C_{eut} - C_\alpha^l(x)) \quad 2.27$$

$$\Delta T_c^\beta = -m_\beta (C_{eut} - C_\beta^l(x)) \quad 2.28$$

où C_{eut} est la concentration eutectique, m_α et m_β les pentes des liquidus des phases α et β et $C_i^l(x)$ la concentration du liquide à l'interface. La composition de l'interface est obtenue par la résolution de l'équation de diffusion stationnaire avec l'hypothèse que le front solide-liquide est plan et constitué d'une alternance régulière de lamelles de α et β :

$$\nabla^2 C + \frac{v}{D_l} \frac{\partial C}{\partial z} = 0 \quad 2.29$$

où v est la vitesse d'avance de l'interface, D_l le coefficient de diffusion dans le liquide et z la normale à l'interface. En prenant en compte les conditions de symétrie en $x = 0$ et $x = S_\alpha + S_\beta$, la solution de cette équation différentielle est donnée par la série de Fourier:

$$C = C_{\infty} + B_0 \exp\left[-\frac{vz}{D}\right] + \sum_{n=1}^{\infty} B_n \cos\left(\frac{n\pi x}{S_{\alpha} + S_{\beta}}\right) \exp\left[-\frac{n\pi z}{S_{\alpha} + S_{\beta}}\right] \quad 2.30$$

C_{∞} est la concentration dans le liquide loin de l'interface. La valeur des coefficients B_n est tirée de la condition de flux à l'interface:

$$D_l \left(\frac{\partial C}{\partial z}\right)_{z=0} = -\frac{v(C_{eut} - C_{\alpha})}{D} \quad \text{pour } 0 \leq x < S_{\alpha} \quad 2.31$$

$$D_l \left(\frac{\partial C}{\partial z}\right)_{z=0} = -\frac{v(C_{eut} - C_{\beta})}{D} \quad \text{pour } S_{\alpha} < x \leq S_{\alpha} + S_{\beta} \quad 2.32$$

En admettant que la concentration à l'interface, C^* , est proche de la concentration eutectique et en donnant à la dérivée sa valeur calculée à partir de l'expression 2.30, Jackson et Hunt obtiennent une relation permettant de calculer la concentration en avant du front de solidification. La valeur des concentrations à l'interface permet de calculer la concentration moyenne ainsi que la surfusion chimique moyenne par les relations 2.27 et 2.28.

La surfusion de courbure est calculée à partir de la courbure moyenne:

$$\Delta T_r^{\alpha} = \frac{\Gamma_{\alpha}}{r_{\alpha}} \quad \text{avec } r_{\alpha} = \frac{S_{\alpha}}{\sin \theta_{\alpha}} \quad 2.33$$

$$\Delta T_r^{\beta} = \frac{\Gamma_{\beta}}{r_{\beta}} \quad \text{avec } r_{\beta} = \frac{S_{\beta}}{\sin \theta_{\beta}} \quad 2.34$$

où Γ_i est le facteur de Gibbs-Thompson défini comme le rapport entre énergie de surface et entropie de fusion volumique de la phase i :

$$\Gamma_i = \frac{\sigma_i}{\Delta S_f^i} \quad 2.35$$

En exprimant l'égalité des surfusions de la phase α et de la phase β , ce qui revient à admettre que le front de solidification se trouve sur une isotherme, il vient la relation bien connue:

$$\Delta T = K_c v \lambda + \frac{K_r}{\lambda} \quad 2.36$$

Avec:

$$K_c = \frac{\bar{m}(C_\beta - C_\alpha)P'}{f(1-f)D_l} \quad 2.37$$

$$K_r = 2\bar{m} \left(\frac{\Gamma_\alpha \sin \theta_\alpha}{f m_\alpha} + \frac{\Gamma_\beta \sin \theta_\beta}{(1-f)m_\beta} \right) \quad 2.38$$

$$\bar{m} = \frac{|m_\alpha| |m_\beta|}{|m_\alpha| + |m_\beta|} \quad 2.39$$

$$P' = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^3 \pi^3} \sin^2(n\pi f) \quad 2.40$$

$$f = \frac{S_\alpha}{S_\alpha + S_\beta} \quad 2.41$$

La relation 2.36 ne permet pas de déterminer à quelle vitesse va croître un front eutectique pour une surfusion donnée. Cette ambiguïté est levée en appliquant le critère défini par Zener (1946), de croissance à l'extremum: l'espacement qui donne lieu à une croissance stable est celui qui correspond à la plus faible surfusion. Ainsi, par dérivation de l'équation 2.36 par rapport à la surfusion, il vient:

$$v = \frac{1}{4K_r K_c} \Delta T^2 \quad 2.42$$

$$\lambda^2 v = \frac{K_r}{K_c} \quad 2.43$$

Ces deux relations fondamentales résultant de la théorie de Jackson et Hunt lient les trois paramètres de la croissance eutectique: la vitesse de croissance, la surfusion du front de solidification et l'espacement interlamellaire. La relation 2.36 reste valable pour un eutectique fibreux, seules les valeurs de K_c et K_r diffèrent (Jackson et Hunt (1966)).

Magnin et Trivedi (1991) ont tenu compte du fait que les densités des phases α et β pouvaient être différentes. Leur analyse montre que les relations 2.42 et 2.43 restent valables mais que les valeurs de K_c et K_r sont modifiées.

Il convient de remarquer que la relation 2.43 contient des paramètres physiques dépendant de l'alliage mais aucun paramètre lié à la microstructure ou générant une quelconque anisotropie. Ceci permet, par la suite, de considérer les grains

eutectiques comme des sphères "monophasées", constituées de la "phase" eutectique, de ne plus avoir à considérer l'échelle atomique ou l'échelle des lamelles, et de pouvoir ainsi se concentrer sur celle des grains.

2.2.2 Croissance des eutectiques irréguliers

Les eutectiques irréguliers sont caractérisés par la présence d'une phase facettée qui montre des difficultés de branchement, en raison de son mode de croissance selon des directions préférentielles imposées par la structure atomique ou par des défauts planaires. Ainsi, ces alliages ne peuvent adapter leur espacement lamellaire de manière à satisfaire la condition de croissance à l'extremum. Il convient de noter que deux alliages eutectiques parmi les plus importants du point de vue de leurs applications industrielles font partie de cette catégorie: Al-Si et Fe-C. Expérimentalement, Toloui et Hellawell (1976) pour l'alliage aluminium-silicium ainsi que Jones et Kurz (1980) pour les fontes lamellaires blanches ou grises ont observé que les espacements mesurés en fonction de la vitesse de croissance se trouvent bien sur la courbe décrite par la relation 2.36 mais sur une gamme d'espacements compris entre une valeur minimum λ_0 et une valeur maximum λ_{br} . La première valeur est celle pour laquelle l'une de deux lamelles convergentes cesse de croître tandis que la seconde est celle pour laquelle l'une de deux lamelles divergentes se sépare en deux (branchement). Pour des lamelles linéaires, il est possible de montrer que l'espacement interlamellaire moyen, $\bar{\lambda}$, est égal à:

$$\bar{\lambda} = \frac{\lambda_0 + \lambda_{br}}{2} = \phi \lambda_0 \quad 2.44$$

où ϕ est un paramètre empirique propre à chaque alliage et supposé indépendant des conditions de coulée. Jones et Kurz (1981) montrent que le remplacement de la valeur à l'extremum λ de Jackson et Hunt par une valeur moyenne, $\bar{\lambda}$, conduit aux résultats suivants:

$$\bar{\lambda}^2 v = \phi^2 \frac{K_r}{K_c} \quad 2.45$$

$$v = \frac{\phi}{\phi^2 + 1} \frac{1}{K_r K_c} \overline{\Delta T}^2 \quad 2.46$$

Magnin *et al* (1991), reportent les valeurs suivantes de ϕ :

	Fe-C	Al-Si	Fe-Fe ₃ C
ϕ	5.4	3.2	1.8

Tableau 2.1 Valeurs du coefficient ϕ pour différents systèmes eutectiques.

2.2.3 Croissance rapide des eutectiques (modèle de *TMK*)

L'analyse de Jackson et Hunt n'est plus valable aux vitesses élevées pour deux raisons principales:

- le nombre de Péclet ne peut plus être considéré comme faible,
- la concentration du liquide à l'interface peut s'éloigner fortement de la concentration eutectique.

Trivedi *et al* (1987) ont reconduit l'analyse de Jackson et Hunt en relaxant ces deux hypothèses. Une différence fondamentale de leur résultat avec celui de Jackson et Hunt est que la série P' qui intervient dans la relation 2.37 n'est plus uniquement une fonction de la fraction volumique, f , mais également du nombre de Péclet et du coefficient de partage.

De plus, pour de fortes surfusions, il est nécessaire de prendre en compte la dépendance en température du coefficient de diffusion ainsi que le passage du diagramme d'équilibre au diagramme cinétique causé par l'effet de *solute trapping* (Boettinger et Coriell (1986)). Il n'est alors plus possible de donner une relation analytique simple entre vitesse et surfusion du front de croissance: un calcul numérique est nécessaire pour produire un diagramme $\lambda = \lambda(v)$ ou $v = v(\Delta T)$.

2.2.4 Sélection des microstructures: la zone couplée

Le modèle de Jackson et Hunt prédit une vitesse de l'eutectique quelle que soit la composition comprise entre C_α et C_β . Dans la pratique, la microstructure eutectique n'est pas observable sur tout ce domaine. La croissance couplée ne se déroule que pour un domaine limité de couples composition-température. Ce domaine est appelé zone couplée. En dehors de cette zone, la solidification se déroule par la croissance d'une des phases sous forme dendritique et de l'eutectique interdendritique. Tammann et Botschwar (1926) ont été les premiers à observer expérimentalement la zone couplée pour un alliage eutectique. Ils ont proposé que la microstructure observée est celle qui croît le plus rapidement. Ce critère peut devenir ambigu dans certaines situations. En effet, la courbe de la température en fonction de la vitesse de croissance d'une pointe de dendrite présente un maximum, aussi deux vitesses peuvent être obtenues pour une même surfusion. Afin de lever cette ambiguïté, c'est le critère de surfusion minimale proposé par Burden et Hunt (1974) qui est généralement utilisé (Kurz et Fisher (1979), Pierantoni *et al* (1992)): la microstructure qui croît à la température la plus élevée est celle qui est observée. La zone couplée peut être calculée, pour un alliage donné, à partir des modèles de croissance dendritique et eutectique. Ces considérations sont valables pour une croissance stationnaire, où la vitesse de croissance et le gradient thermique sont constants. Dans le cas d'une

solidification équiaxe, les problèmes de germination des différentes phases et de non stationnarité de la croissance compliquent le problème.

Pour les alliages où l'une des phases montre une croissance hautement anisotrope, la zone couplée est asymétrique et penche du côté de la phase qui éprouve de la difficulté à croître. Il est alors possible d'observer la croissance couplée de l'eutectique à des compositions très éloignées de la composition eutectique: c'est notamment le cas de l'alliage Al-Si, qui sera utilisé par la suite pour la refusion par laser.

2.2.5 Croissance des fontes à graphite sphéroïdal

Les fontes sont des alliages fer-carbone de composition proche de l'eutectique. Dans les fontes blanches, le carbone est présent sous forme de carbures, Fe_3C , alors que dans les fontes grises il est présent sous forme de graphite. Ce dernier peut se trouver sous forme lamellaire, vermiculaire ou sphéroïdale. Cette dernière forme, découverte en 1947, est particulièrement intéressante pour ses qualités de ductilité (on parle également de fonte ductile). Actuellement, alors que les tonnages de fonte produite diminuent, celui de la fonte à graphite sphéroïdal (GS) reste constant (Elliott (1988)). Ceci est dû à la bonne coulabilité de cet alliage ainsi qu'à ses intéressantes propriétés mécaniques.

Il est généralement admis que, après une phase mal connue de croissance primaire de dendrites d'austénite et de nodules isolés de graphite, la majeure partie de la solidification des fontes GS a lieu par la croissance de grains constitués d'une couche d'austénite entourant un nodule de graphite (Lacaze et Lesoult (1994)). Tous les modèles considèrent que la vitesse d'avance de l'interface austénite-liquide est principalement déterminée par la diffusion du carbone du liquide vers le nodule de graphite, à travers la couche d'austénite. Ils supposent que le grain est isotherme, que le liquide est de composition uniforme et que les concentrations aux interfaces sont données par le diagramme d'équilibre.

Les modèles de Wetterfall *et al* (1972), de Owadano *et al* (1977) et de Su *et al* (1985) utilisent un profil de diffusion quasi-stationnaire dans l'austénite et se basent sur le bilan de soluté à l'interface pour donner une expression de la vitesse de croissance du grain. Le modèle de Rappaz *et al* (1989) considère de plus la conservation de masse à l'échelle du grain en prenant en compte les différentes densités du liquide, du graphite et de l'austénite. Ces auteurs montrent, par un calcul de différences finies non stationnaire, que l'hypothèse du profil quasi-stationnaire est raisonnable.

Pour la modélisation de la solidification des fontes GS, le résultat principal de ces modèles est la relation entre vitesse de croissance et surfusion. Castro (1991), en couplant les modèles de Owadano et de Wetterfall et en admettant que le rapport

entre le rayon du grain, r^γ , et celui du nodule de graphite, r^{g^*} , est constant et égal à 2.4, a montré que:

$$\frac{dr^\gamma}{dt} = K \frac{\Delta T}{r^\gamma} \quad 2.47$$

où K est une constante qui est fonction des propriétés physiques du système fer-carbone et prend la valeur numérique suivante:

$$K = 2.87 \cdot 10^{-13} \text{ [m}^2\text{s}^{-1}\text{K}^{-1}\text{]} \quad 2.48$$

2.3 Rencontre

Les grains qui germent dans le liquide ne peuvent pas croître librement sous forme de sphères jusqu'à la fin de la solidification. Tôt ou tard, ils sont bloqués par la rencontre avec leurs voisins. Deux variables permettent de décrire la manière dont les grains se rencontrent: le facteur de rencontre, ψ , et la surface de l'interface solide-liquide normalisée, s_{s-l} .

Le facteur de rencontre, ψ , est défini par rapport à la microstructure étendue (Johnson-Mehl (1939)), c'est à dire la microstructure imaginaire qui serait obtenue si les grains pouvaient croître sans se rencontrer. Le volume transformé dans la microstructure étendue est simplement donné par la somme des volumes des sphères. Le facteur de rencontre est défini comme le rapport entre l'incrément de fraction de solide réelle, df_s , et l'incrément de fraction de solide étendue, $df_{s,\text{ét}}$, ou, de manière équivalente, comme le rapport entre la surface réelle de l'interface solide-liquide, S_{s-l} , et la somme des surfaces qu'auraient les grains s'ils n'avaient rencontré aucun voisin, $S_{\text{ét}}$:

$$\psi = \frac{df_s}{df_{s,\text{ét}}} = \frac{S_{s-l}}{S_{\text{ét}}} \quad 2.49$$

La surface de l'interface solide-liquide normalisée, s_{s-l} , est définie de manière à rendre cette quantité indépendante de la densité de grain, n , et du volume de l'échantillon considéré, V :

$$s_{s-l} = \frac{S_{s-l}}{(36\pi n)^{1/3} V} \quad 2.50$$

Ce facteur de normalisation est égal à la surface totale de N_g grains d'un rayon \bar{r} défini par:

$$\frac{4}{3}\pi\bar{r}^3 = \frac{1}{n} = \frac{V}{N_g} \quad 2.51$$

La relation la plus fréquemment utilisée en simulation de la solidification eutectique équiaxe est celle obtenue par Kolmogorov (1937), Johnson-Mehl (1939) et Avrami (1940) (*KJMA*) pour les transformations à l'état solide, soit:

$$\psi = (1 - V_V) \quad 2.52$$

où $V_V^{(1)}$ est la fraction volumique de phase transformée. Elle a été dérivée par un raisonnement probabiliste sous les hypothèses de grains immobiles, distribués aléatoirement dans le volume, et croissant tous à la même vitesse. Cette hypothèse est clairement inadéquate dans le cas de la solidification des métaux au cours de laquelle les grains peuvent se déplacer dans le liquide. Elle est par contre bien adaptée à la modélisation des transformations de phases à l'état solide.

Hillert (1959) a modifié la relation de *KJMA* pour prendre en compte l'effet de l'agglomération ou de l'arrangement des grains:

$$\psi = (1 - V_V)^q \quad 2.53$$

où q est plus petit que 1 si les grains ont tendance à s'ordonner et plus grand que 1 si les grains ont tendance à s'agglomérer.

A partir de mesures expérimentales, Speich et Fisher (1966) ont dérivé une relation empirique pour décrire l'évolution de la surface entre phase transformée et phase non transformée:

$$S_V = k_{SF} V_V (1 - V_V) \quad 2.54$$

Cahn (1967) a utilisé une relation similaire:

$$S_V = k_C V_V^{2/3} (1 - V_V)^{2/3} \quad 2.55$$

Rath (1982) a suggéré que $S_V(V_V)$, ne devrait pas être symétrique par rapport à $V_V = \frac{1}{2}$ parce que les germes initiaux sont sphériques alors que les dernières zones à transformer entre les grains ont des formes complexes. Il a utilisé la relation:

$$S_V = k_R V_V^p (1 - V_V)^q \quad 2.56$$

où les deux exposants p et q sont différents mais appartiennent à l'intervalle $[0,1]$. Vandermeer *et al* (1991) définissent le concept de chemin microstructural. La surface solide-liquide peut être décrite par une relation à deux paramètres qui sont fonction des conditions de germination et croissance:

(1) La variable V_V , désignant la fraction transformée, est préférée ici à la fraction de solide, f_s , car les relations qui suivent ont avant tout été développées pour les transformations de phases à l'état solide.

$$S_V = k_V(1 - V_V) \left(\ln \left[\frac{1}{1 - V_V} \right] \right)^q \quad 2.57$$

Pour $k_V = 1$ et $q = \frac{2}{3}$, l'expression 2.57 n'est rien d'autre que la surface solide-liquide normalisée prédite par le modèle de *KJMA* pour une germination instantanée.

Pour la modélisation de la solidification des fontes GS, Su *et al* (1985) utilisent le modèle de Aizawa (1978) qui suppose que les grains ne se rencontrent qu'à partir d'une fraction de solide égale à 0.5 et utilisent le facteur de rencontre suivant:

$$\psi(f_s) = 1 \quad \text{si } f_s \leq 0.5 \quad 2.58a$$

et

$$\psi(f_s) = \left(\frac{1 - f_s}{0.5} \right)^2 \quad \text{si } f_s > 0.5 \quad 2.58b$$

La relation de Speich and Fisher a été complétée par Ni *et al* (1990) et Bradley (1993) pour donner l'expression suivante de $\psi(f_s)$:

$$\psi(f_s) = 1 \quad \text{si } f_s \leq f_s^{renc} \quad 2.59a$$

et

$$\psi(f_s) = \frac{f_s}{f_s^{renc}} \left(\frac{1 - f_s}{1 - f_s^{renc}} \right) \left(\frac{1 - f_s^{renc}}{f_s^{renc}} \right) \quad \text{si } f_s > f_s^{renc} \quad 2.59b$$

f_s^{renc} est la fraction volumique à laquelle la rencontre commence. Bien que cette relation donne une variation continue depuis $\Psi = 1$ au début de la rencontre jusqu'à $\Psi = 0$ en fin de solidification, elle n'est basée sur aucun modèle physique ou géométrique. Finalement, des techniques numériques simples ont été développées par Price (1987) pour étudier la rencontre de sphères, d'ellipsoïdes et de bipyramides réparties sur un réseau tétragonal. Cet auteur a étudié l'évolution de la surface entre matériaux transformé et non transformé ainsi que son influence sur la vitesse de transformation.

Zou (1988) a supposé que les grains peuvent se déplacer au cours de la solidification, au moins jusqu'à une certaine fraction de solide et, de ce fait, peuvent s'arranger plus ou moins régulièrement. Il a étudié la rencontre de grains sphériques germés sur un réseau régulier cubique simple (*cs*) ou cubique à faces centrées (*cfc*). Il a obtenu des relations exactes pour l'évolution de $\psi(f_s)$ et $s_{s-l}(f_s)$. Mampay (1991) a utilisé une méthode de Monte-Carlo pour modéliser la

rencontre de sphères et d'ellipsoïdes de diverses excentricités. Il a calculé la surface, S_{s-l} , pour un grain germé aléatoirement dans une boîte cubique, entourée de ses 26 premiers, deuxièmes et troisièmes voisins, dans chacun desquels un grain était aléatoirement germé. Bien que Mampaey moyennât plusieurs milliers de configurations de grains pour calculer une courbe moyenne, $S_{s-l}(f_s)$, sa méthode impose un certain arrangement des grains en n'autorisant la présence que d'un seul grain par cube. Pour cette raison, sa courbe se trouve entre celles prédites par le modèle de *KJMA*, basé sur une germination aléatoire dans le volume, et le calcul de Zou pour l'arrangement *cs* des grains. Plus récemment, Mampaey et Xu (1994) ont étudié, par la simulation et par l'expérience, la relation entre la surface solide-liquide et la fraction de solide lorsque la surface de mesure ne comprend que quelques grains. Leurs résultats confirment indirectement la relation d'Avrami.

Aucun des modèles développés jusqu'à présent, si ce n'est celui de Hillert, ne prend en compte le fait que les grains peuvent s'agglomérer ou s'arranger au cours de la solidification ou sédimenter.

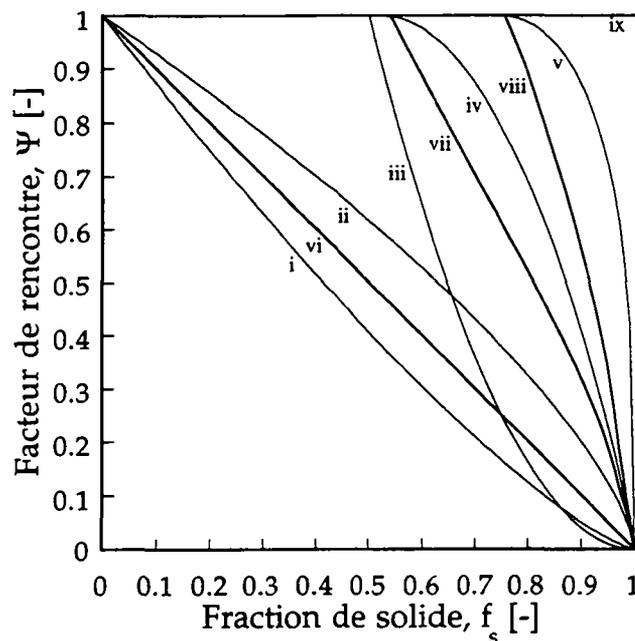


Figure 2.5 Facteur de rencontre en fonction de la fraction solide pour différents modèles: i) Hillert ($q = 1.3$), ii) Hillert ($q = 0.7$), iii) Aizawa, iv) Ni et al ($f_s^{enc} = 0.52$), v) Ni et al ($f_s^{enc} = 0.74$), vi) *KJMA*, vii) *cs*, viii) *cfc*, ix) sans rencontre

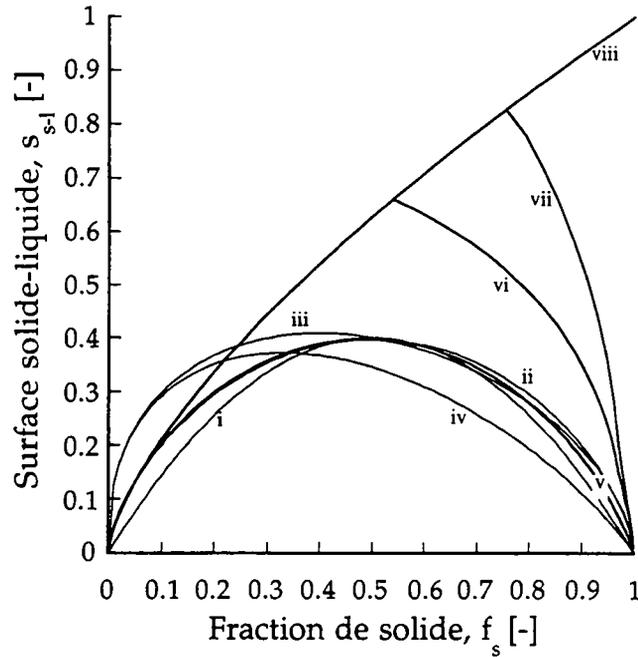


Figure 2.6 Surface solide-liquide normalisée pour différents modèles: i) Speich et Fisher ($k_{SF} = 1.6$), ii) Cahn ($k_C = 1$), iii) Rath ($k_R = 0.8$, $p = 0.4$, $q = 0.6$), iv) Vandermeer et al ($k_V = 0.8$, $q = 0.4$), v) KJMA, vi) cs, vii) cfc, viii) sans rencontre.

2.4 Thermique

Le passage de l'état liquide à l'état solide est causé par l'extraction de chaleur du métal vers l'extérieur. Pour l'ensemble du domaine solide et liquide, l'évolution de la température est décrite par l'équation de la chaleur:

$$\text{div}(\kappa \text{grad} T) = \rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} - L \frac{\partial f_s}{\partial t} \quad 2.60$$

où κ est la conductibilité thermique, ρc_p la chaleur spécifique volumique et L la chaleur latente de fusion volumique. Pour le cas d'un échantillon caractérisé par un petit nombre de Biot⁽¹⁾, l'équation de la chaleur se réduit en:

$$\frac{dH}{dt} = \dot{H} = Q \frac{S}{V} = \rho c_p \frac{dT}{dt} - L \frac{df_s}{dt} \quad 2.61$$

où H est l'enthalpie volumique, Q le flux de chaleur, S la surface de l'échantillon et V son volume.

L'effet d'un flux de chaleur négatif (chaleur soutirée) est soit une diminution de la température soit une augmentation de la fraction de solide. Dans le cas d'une

⁽¹⁾ Le nombre de Biot, $B_i = Lh/\kappa$ est le produit d'une dimension caractéristique de l'échantillon, L , et du coefficient de transfert, h , divisé par la conductibilité thermique, κ . Un nombre de Biot inférieur à 0.1 assure que la différence maximale de température entre deux points de l'échantillon soit inférieure à 5% de l'écart de température entre l'échantillon et le milieu ambiant.

solidification avec recalescence (hors équilibre), l'augmentation de fraction de solide peut être accompagnée d'une augmentation de température.

2.5 Modèles déterministes de la solidification eutectique équiaxe

Le but des modèles déterministes est de coupler l'équation de la chaleur aux modèles de germination, de croissance et de rencontre des grains afin de reproduire les courbes de refroidissement expérimentales et de prédire les paramètres microstructuraux que sont la taille des grains et l'espacement interlamellaire.

La première étape est de résoudre, pour un échantillon de température uniforme, le bilan thermique (éq. 2.61) en décrivant l'évolution de la fraction de solide à l'aide des modèles de germination, croissance et rencontre décrits dans les sections précédentes.

Oldfield (1966) a décrit correctement la marche à suivre. Rappaz (1989) a repris d'une manière plus rigoureuse le cheminement d'Oldfield et montré que l'évolution de la fraction de solide est prédite par la relation:

$$\frac{df_s}{dt} = n(t)4\pi\bar{r}^2(t)v(t)\psi(t) \quad 2.62$$

où $n(t)$ est la densité de grains à l'instant t :

$$n(t) = n(\Delta T(t)) = \int_0^{\Delta T(t)} \frac{dn}{d(\Delta T')} d(\Delta T') \quad 2.63$$

$dn/d(\Delta T)$ est la distribution des sites de germination en fonction de la surfusion, généralement donnée par l'une des relations décrites à la section 2.1, $v(t)$ est la vitesse de croissance de l'interface des grains (donnée par exemple par le modèle de Jackson et Hunt (section 2.2)), $\Psi(t)$ est le facteur de rencontre des grains (section 2.3). Enfin, \bar{r}^2 est le moment d'ordre 2 des grains, c'est à dire:

$$\bar{r}^2 = \frac{\int_0^t \dot{n}(\tau)[r(\tau,t)]^2 d\tau}{\int_0^t \dot{n}(\tau) d\tau} \quad 2.64$$

Le rayon, $r(\tau, t)$, d'un grain germé au temps τ et observé au temps t est l'intégrale de la cinétique de croissance:

$$r(\tau, t) = \int_{\tau}^t v(u) du \quad 2.65$$

La formulation du terme de variation de la fraction de solide (éq. 2.62) peut aisément être implantée dans un calcul macroscopique de la diffusion de chaleur (Zou (1988), Stefanescu (1987), Alexandre *et al* (1991), Castro (1991)).

2.6 Caractérisation des microstructures

Si la simulation permet généralement de prédire le volume moyen des grains (voire des distributions), cette valeur est difficilement mesurable expérimentalement. En effet, les coupes métallographiques procurent une section aléatoire de la microstructure et le passage de la taille de grain mesurée sur une coupe bidimensionnelle à la taille de grain volumique ne peut se faire directement pour une microstructure quelconque. De plus, il peut être utile de connaître d'autres paramètres que la taille moyenne tels que: distribution de taille, surface des grains, nombre de faces des grains, etc.

Parmi les nombreux travaux concentrés sur l'empilement de formes géométriques permettant de remplir l'espace entrepris par des mathématiciens, biologistes ou métallurgistes, ne sont cités ici que ceux qui décrivent une méthode originale ou qui seront utilisés dans la suite de ce travail. Les principales analyses peuvent être groupées en quatre catégories:

- analyse de microstructures réelles,
- analyse de modèles de microstructures,
- analyse probabiliste,
- analyse stochastique.

2.6.1 Analyse de microstructures réelles

Elle peut s'effectuer de plusieurs manières:

- Séparation des grains par dissolution préférentielle aux joints de grains: Desh (1919), laiton décomposé par Hg; Rhines et Patterson (1982), aluminium décomposé par Ga; Matsuura *et al* (1994), acier inoxydable décomposé par $\text{CuSO}_4 + \text{H}_2\text{SO}_4$.
- Reconstitution des grains tridimensionnels à partir d'une succession d'images bidimensionnelles (*serial sectionning*): de Hoff et Guo (1985), fer pur; Núñez et Domingo (1988), acier et zinc; Okazaki et Conrad (1972), titane.

- Radiographie stéréologique: Williams et Smith (1952) alliage aluminium-étain.

Ces trois méthodes permettent de mesurer les distributions de taille tridimensionnelles ainsi que le nombre de faces, d'arêtes et de sommets de chaque grain. Toutes trois exigent un travail expérimental fastidieux. Pour cette raison, les résultats présentés sont généralement établis sur un nombre de grains restreint. Les distributions de taille comportent alors un nombre peu élevé de classes ou de grains par classe. De plus, chaque analyse est propre à un échantillon particulier. Le fait de changer un paramètre tel que la composition de l'alliage ou les conditions de recristallisation ou de solidification nécessite une nouvelle mesure.

2.6.2 Analyse de modèles de microstructure

L'analyse des modèles de microstructure est peu répandue. Deux méthodes ont été utilisées:

- Compression de billes plastiques: Marvin (1939), billes de plomb; Bernal (1959) boules de plasticine.
- Modèle tridimensionnel: Wlodawer (1967, 1972) établit un modèle tridimensionnel simple de la microstructure de solidification par un empilement régulier de dodécaèdres. Il découpe ensuite le modèle selon des plans aléatoires et détermine la densité surfacique de grains pour finalement obtenir la relation:

$$N_V = 0.475 (N_A)^{3/2} \quad 2.66$$

où N_V désigne le nombre de grains par volume unitaire et N_A le nombre de grains par surface unitaire.

2.6.3 Analyse probabiliste

L'analyse probabiliste est la voie la plus prolifique en résultats exacts. Elle recourt cependant à un certain nombre d'hypothèses simplificatrices concernant la germination et la croissance afin de rendre l'analyse mathématique possible. Deux cas particuliers sont généralement considérés:

- Germination instantanée, caractérisée par une densité de germe n_0 .
- Germination à taux constant, caractérisée par un taux de germination I_0 .

La croissance est dictée par une vitesse d'avance de l'interface isotrope constante, v . L'analyse probabiliste considère généralement un échantillon de taille infinie et une germination aléatoire dans l'espace.

Du modèle de *KJMA* résulte, en sus du facteur de rencontre des grains déjà mentionné, une expression de la fraction transformée:

$$V_V = 1 - \exp[-\beta t^q] \quad 2.67$$

	β	q
Germination instantanée	$\frac{4}{3}\pi n_0 v^3$	3
Germination à taux constant	$\frac{1}{3}\pi I_0 v^3$	4

Tableau 2.2 Paramètres de la courbe sigmoïde obtenue par *KJMA* pour l'évolution de la fraction transformée en fonction du temps.

Meijering (1953) a calculé les valeurs moyennes de certains paramètres microstructuraux pour ces deux modèles.

	Germination instantanée	Germination à taux cst
Nombre de faces	15.54	> 13.28
Nombre d'arêtes	40.61	> 33.84
Nombre de sommets	27.07	22.56
Surface	$5.821b^2$	$5.143b^2$
Longueur d'arêtes	$17.5b$	$14.71b$
Surface dans une coupe	$0.686b^2$	$< 0.816b^2$

Tableau 2.3 Résultats obtenus par Meijering par une analyse probabiliste pour le cas d'une germination instantanée et d'une germination à taux constant. Le paramètre b est défini de la manière suivante: $b^3 = (N_V)^{-1}$.

La dernière ligne du tableau permet de déterminer la relation entre densité de grains volumique et densité de grains dans une coupe bidimensionnelle pour le cas d'une germination instantanée:

$$N_V = 0.568 (N_A)^{3/2} \quad 2.68$$

Meijering donne également l'expression de la densité de grains finale pour une germination à taux constant, I_0 , et une vitesse d'avance de l'interface d'interphase constante, v :

$$N_V = \left(\frac{3}{\pi}\right)^{1/4} \Gamma\left(\frac{5}{4}\right) \left(\frac{I_0}{v}\right)^{3/4} \quad 2.69$$

où Γ désigne la fonction gamma:

$$\Gamma(x) = \int_0^{\infty} u^{x-1} e^{-u} du \quad 2.70$$

Gilbert (1962) a calculé de plus la variance des tailles de grains en fonction de la densité de grains tridimensionnelle pour des coupes mono-, bi- et tridimensionnelles.

	Germination instantanée	Germination à taux cst
Mono	0.159 b^2	
Bi	0.228 b^4	
Tri	0.180 b^6	1.136 b^6

Tableau 2.4 Variance des distributions de tailles obtenues par Gilbert. Les termes mono, bi et tri expriment le fait que la microstructure tridimensionnelle est soit coupée par une droite ou un plan, soit considérée dans son entier.

Markworth (1984) a exprimé le taux de grains isolés (rapport entre le nombre de grains isolés et le nombre final de grains), ϕ_0 , ainsi que la fraction volumique de grains isolés, f_0 , en fonction de la fraction de solide pour le cas de la germination instantanée:

$$\phi_0 = (1 - f_s)^8 \quad 2.71$$

$$f_0 = - (1 - f_s)^8 \ln [1 - f_s] \quad 2.72$$

Lorenz (1987) a donné une analyse du taux de grains isolés pour le cas de la germination instantanée ainsi que pour celui du taux de germination constant. Dans ce dernier cas, il n'est pas possible de donner une solution analytique. Le système suivant doit être résolu numériquement.

$$\phi_0 = \frac{1}{\Gamma(\frac{5}{4})} \int_0^{\mu_0} \exp [-(\mu + \mu_0)^4 + 2\mu^4] d\mu \quad 2.73$$

$$f_0 = 4 \int_0^{\mu_0} \mu^3 \exp [-(\mu + \mu_0)^4 + 2\mu^4] d\mu \quad 2.74$$

$$f_s = 1 - \exp [-\mu_0^4] \quad 2.75$$

Les quantités adimensionnelles μ et μ_0 sont définies de la manière suivante:

$$\mu = \left(\frac{\pi I_0}{3 v} \right)^{1/4} vt \quad 2.76$$

$$\mu_0 = \left(\frac{\pi I_0}{3 v} \right)^{1/4} vt_0 \quad 2.77$$

où I_0 est le taux de germination, v la vitesse constante de l'interface d'interphase, r le rayon et t le temps. La germination débute en $t = 0$ et l'observation a lieu en $t = t_0$, Γ désigne la fonction gamma.

Núñez et Domingo (1988) donnent une liste des relations entre N_V et N_A obtenues en supposant que la microstructure est composée d'un empilement de formes géométriques simples remplissant l'espace:

$N_V = C N_A^{3/2}$	C
sphère	0.724
cube	0.544
octaèdre	0.538
tétraèdre	0.393
dodécaèdre	0.668
octaèdre tronqué	0.647

Tableau 2.5 Relation entre densités de grains volumique et surfacique sous l'hypothèse que les grains sont décrits par une forme géométrique simple.

Enfin, la plupart des résultats rassemblés dans les ouvrages de stéréologie (Underwood (1970)) sont basés sur une analyse probabiliste. Seuls deux résultats qui vont être utilisés par la suite sont cités ici.

La mesure de la fraction volumique d'une phase répartie aléatoirement dans le volume peut être effectuée de quatre manières:

$$f = V_V = A_A = L_L = P_P \quad 2.78$$

La fraction volumique est égale à la fraction volumique sur un volume test, à la fraction surfacique sur une surface test, à la fraction linéique sur une ligne test ou à la fraction du nombre de points aléatoires qui tombent dans cette phase.

La surface d'interphase par volume unitaire, S_V , est liée directement au nombre d'intersections par unité de longueur de ligne test, N_L :

$$S_V = 2N_L \quad 2.79$$

Pour le cas des fontes GS, une fonction intéressante est la relation entre la densité de nodules observés sur une coupe bidimensionnelle et la densité volumique de grains. Une méthode fréquemment utilisée est celle de Saltykov (1967). Elle consiste à admettre que le plus gros diamètre observé sur la coupe est celui du plus gros nodule présent. En divisant ce diamètre en un certain nombre de classes discrètes et en admettant que les rayons des nodules sont également donnés par une fonction à valeurs discrètes, il est possible de déterminer la fraction de plus gros nodules présents et de soustraire leurs contributions aux classes de plus petits rayons. En poursuivant cette procédure, il est aisé de déterminer la fraction de nodules de chaque classe.

Divers chercheurs, en appliquant la méthode de Saltykov, ont obtenu une corrélation entre densité volumique de grains, N_V , et densité surfacique de nodules, N_A^* :

$$N_V = 2.38N_A^{*1.6} \quad \text{Saltykov (1967)} \quad 2.80$$

$$N_V = 10.6N_A^{*1.35} \quad \text{Noguchi et Nagaoka (1985)} \quad 2.81$$

$$N_V = 3.46N_A^{*3/2} \quad \text{Castro (1991)} \quad 2.82$$

En exprimant le fait que la fraction volumique de graphite, f_{gr} , est égale à la fraction surfacique, Owadano *et al* (1973) ont obtenu la relation:

$$N_V = \sqrt{\frac{\pi}{6f_{gr}}} (\alpha N_A^*)^{3/2} \quad 2.83$$

où α est un paramètre compris entre 1 et 1.4 qui tient compte de la distribution de taille des nodules. Pour $f_{gr} = 0.1$ et $\alpha = 1.2$, cette relation se réduit à:

$$N_V = 3.01N_A^{*3/2} \quad 2.84$$

Sous l'hypothèse de grains et de nodules sphériques de tailles uniformes avec un rapport entre rayon du grain et rayon du nodule égal à 2.4, il vient, par un raisonnement probabiliste (Richoz (1988)):

$$N_V = 2.690N_A^{*3/2} \quad 2.85$$

Ce résultat est équivalent à celui d'Owadano, pour $\alpha = 1$ et $f_{gr} = 1/(2.4)^3$.

2.6.4 Modélisation stochastique

Afin de lever les hypothèses nécessaires aux méthodes probabilistes, de nombreux modèles stochastiques ont été développés au cours des vingt dernières années. L'apparition d'ordinateurs de plus en plus rapides et dotés d'énormes capacités de mémoire permet d'améliorer la finesse des modèles et de traiter des cas de plus en plus complexes.

La plupart des modèles développés en métallurgie sont basés sur un automate cellulaire ou une méthode de Monte-Carlo et sont destinés à étudier la recristallisation. L'échantillon est divisé en un grand nombre de cellules élémentaires. Une orientation cristallographique aléatoire est choisie pour chaque cellule. Dans une procédure en pas de temps, un certain nombre de cellules sont tirées au sort. Leur orientation est modifiée en fonction de l'orientation de leurs voisines, par des considérations d'énergie d'interface. Ces modèles permettent de calculer les distributions de taille de grains, l'évolution du rayon moyen, le nombre de faces, de sommets et d'arêtes de chaque grain (Anderson *et al* (1989), Righetti *et al* (1989), Hesselbarth et Göbel (1991)). Ces modèles souffrent cependant d'un manque de bases physiques. Le temps de transformation, par exemple, n'est donné que dans une échelle propre à la simulation et n'est pas directement relié aux mécanismes microscopiques de la recristallisation.

D'autres modèles sont basés sur un algorithme de type germination-croissance et permettent d'étudier la fraction transformée au cours du temps ainsi que la microstructure en cours de transformation (Mahin *et al* (1980), Lorenz (1989)).

La plupart des travaux considèrent en premier lieu les hypothèses de germination instantanée ou à taux constant avec une localisation aléatoire des nouveaux germes ainsi qu'une vitesse de croissance constante. Ensuite, l'influence de divers paramètres est mise en évidence. Hanson (1979), Saertre *et al* (1986), Marthinsen *et al* (1989), Furu *et al* (1990) utilisent le modèle de Mahin pour montrer l'influence d'une germination des grains recristallisés localisée sur des endroits particuliers d'une microstructure primaire, d'un taux de germination croissant ou décroissant, d'une microstructure partiellement recristallisée ou d'une vitesse décroissant avec le temps. Ces complications sont destinées à obtenir un bon accord avec les mesures expérimentales qui ne peuvent pas toujours être reproduites par le modèle de *KJMA*.

La part des travaux consacrés à la solidification dendritique ne cesse d'augmenter. Souvent ces modèles ne permettent de reproduire que qualitativement les microstructures obtenues en coulée (Spittle et Brown (1989), Brown et Spittle (1991), Zhu et Smith (1992)). Rappaz et Gandin (1993) ont été les premiers à introduire dans un automate cellulaire des relations décrivant correctement la

germination et la croissance de grains dendritiques. Les modèles développés permettent de reproduire correctement la sélection des dendrites en fonction de leur orientation par rapport au flux de chaleur, de déterminer la surfusion maximum atteinte par le liquide au fond d'un coin rentrant, de reproduire la transition colonnaire-équiaxe. De plus, récemment, ces auteurs ont couplé l'automate cellulaire à un calcul par éléments finis de la diffusion de chaleur (Gandin et Rappaz (1994)).

On se persuade mieux, pour l'ordinaire, par les raisons qu'on a soi-même trouvées, que par celles qui sont venues dans l'esprit des autres.

B. Pascal, *Pensées*.

3 EXPERIENCES

Trois types d'expériences ont été réalisées:

- la trempe en cours de solidification de petits échantillons,
- la trempe en cours de solidification dirigée (TSD),
- la refusion par laser.

Les deux premiers types sont destinés à étudier le déroulement de la solidification ainsi que l'évolution de la surface de l'interface solide-liquide au cours de la solidification. Le troisième type est destiné à l'observation de grains croissant dans un gradient thermique et à l'étude de l'influence des paramètres du procédé sur la microstructure.

3.1 Petits échantillons trempés en cours de solidification

Le but de cette expérience est de réaliser des petits échantillons de thermique uniforme et de microstructure équiaxe. La trempe en cours de solidification permet de changer de manière brusque l'espacement interlamellaire, et de faire apparaître un contraste entre le solide et le liquide au moment de la trempe.

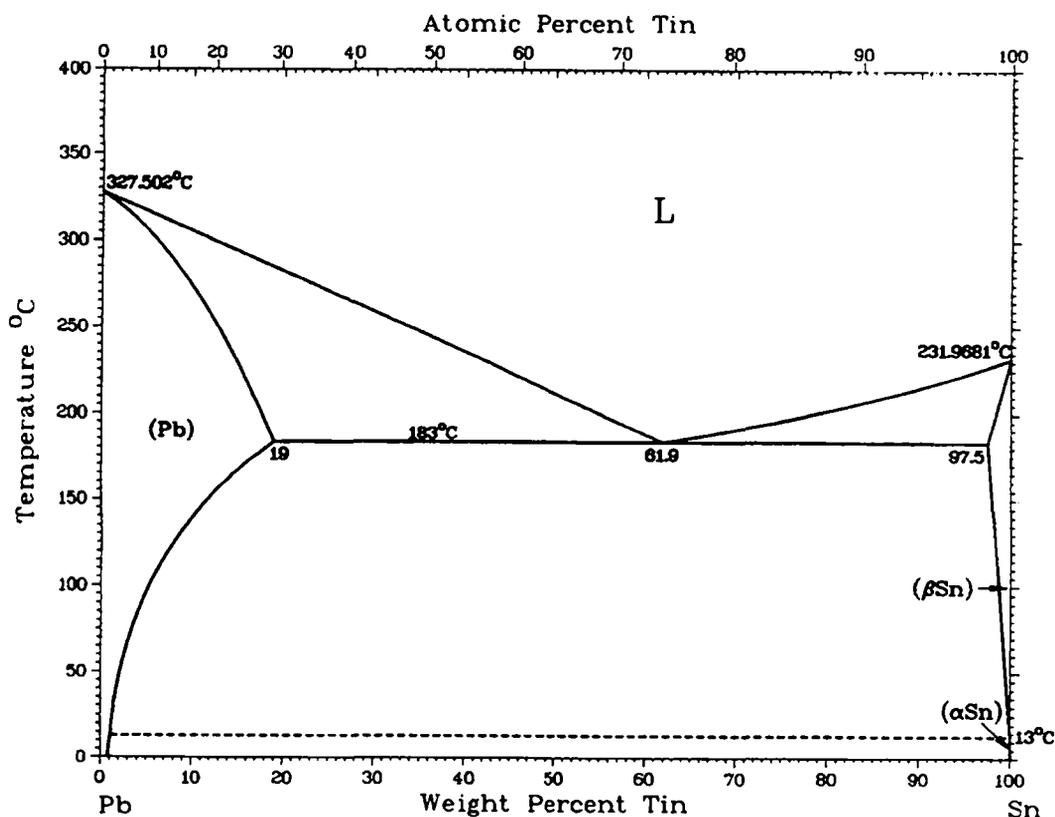


Figure 3.1 Diagramme d'équilibre Pb-Sn (Massalski (1986)).

L'alliage eutectique de Pb-Sn a été choisi en raison de son bas point de fusion et de sa passivité face à l'air ambiant.

Un petit dispositif a été réalisé, qui permet de chauffer le métal, de le brasser, d'enregistrer la température et de tremper. Le brassage est nécessaire pour éviter la flottaison ou la sédimentation des cristaux plus légers ou plus lourds que le liquide suivant que le germe initial est formé d'étain ou de plomb. Si la masse de métal en fusion est la même pour chaque essai, la longueur du plateau eutectique est constante car le flux de chaleur du métal vers l'extérieur est semblable pour chaque essai. Le point courant dans le déroulement de la solidification est donné par la fraction du plateau eutectique atteinte. Plusieurs trempes ont ainsi été réalisées pour différentes fractions de solide. Une charge d'alliage de base a été coulée à partir de Pb 99.99% et de Sn 99.9%, à la composition eutectique. Cette charge a ensuite été découpée en cylindres de 80.0 g, qui ont servi à l'essai proprement dit. Une fois trempés, les lingots ont été sciés par le milieu, puis polis au papier SiC et à la pâte diamant, jusqu'à une granulométrie finale de 1 μm . Les échantillons ont ensuite été attaqués au Nital pendant 10 s à la température ambiante.

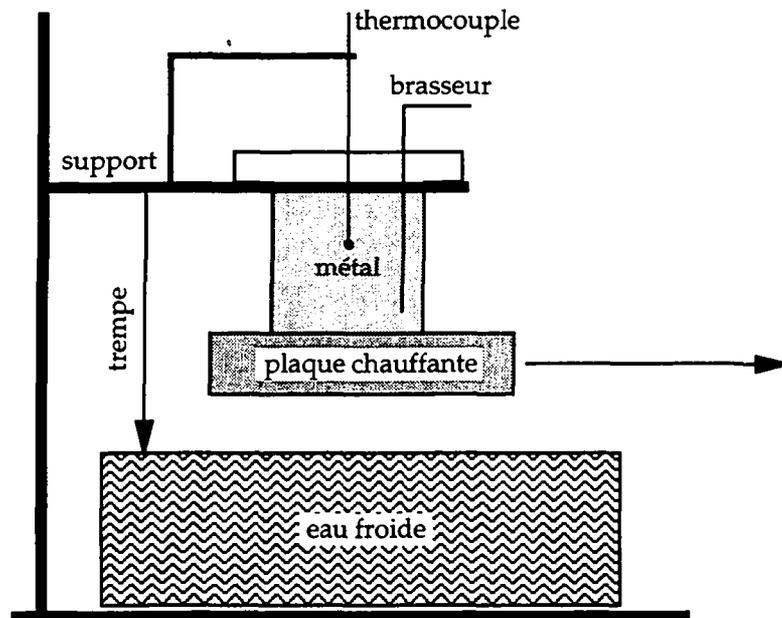


Figure 3.2 Schéma de principe du dispositif de trempe. Le métal est tout d'abord fondu à l'aide de la plaque chauffante. Dès que le métal est liquide, il est brassé par l'intermédiaire d'un fil de fer pur immergé dans le métal et qui tourne à une vitesse de 200 tours/min près des parois du creuset. La plaque est retirée pour permettre le refroidissement du métal fondu. Lorsque la fraction de solide souhaitée est atteinte, le support est abaissé et l'échantillon se trouve immergé dans l'eau.

Pour chaque échantillon, une série de photographies de la surface ont été assemblées, de manière à couvrir une surface de 10 x 10 mm. La fraction de solide a été déterminée par comptage de points, et la surface solide-liquide par comptage du nombre d'intersections sur des lignes-test aléatoires. La densité de grains surfacique, N_A , a été déterminée par comptage sur une surface test. Une relation est nécessaire pour lier la densité de grains surfacique à la densité volumique en cours de solidification. En supposant que la microstructure peut être représentée par un grain sphérique moyen, il est possible de montrer (Underwood (1970)) que:

$$N_V = \sqrt{\frac{\pi}{6f_s}} N_A^{3/2} \quad 3.1$$

La surface solide-liquide est directement donnée par la relation 2.79. La surface solide-liquide est ensuite normalisée de la manière suivante:

$$s_{s-l} = \frac{S_V}{(36\pi N_V)^{1/3}} \quad 3.2$$

3.2 Trempe en cours de solidification dirigée (TSD)

L'avantage de la TSD par rapport à la trempe de petits échantillons est qu'il est possible d'obtenir une image du déroulement complet de la solidification avec un seul échantillon. Ceci garantit que les conditions de germination ainsi que la composition de l'alliage sont les mêmes pour tout l'échantillon.

Le principe de l'expérience est de tirer un barreau de métal à travers un four à une vitesse constante, v_T . Entre le centre du four et ses extrémités, il s'établit un gradient de température. Ainsi, le métal qui est à l'état liquide au centre du four est amené vers des températures de plus en plus basses. Dès que le métal est en surfusion, la germination peut commencer, suivie de la croissance. A partir d'une certaine position du barreau, tout le métal est solide. Tout le processus de la solidification, de la germination aux transformations de phases à l'état solide, est donc présent dans un seul barreau. Le fait de plonger le barreau dans l'eau froide en cours d'expérience permet de conserver une image de la microstructure au moment de la trempe. Ce type d'expérience a été utilisé pour la solidification de fontes à graphite sphéroïdal.

Elément	C	Si	Mn	Cu	Mg
% pds	3.65	2.47	0.044	0.22	0.050

Tableau 3.1 Composition de la fonte GS utilisée pour l'essai de TSD.

Les barreaux analysés ont été réalisés par Selig (1994), dans le cadre de sa thèse de doctorat, à l'école des Mines de Nancy. La composition de l'alliage est donnée au tableau 3.1.

Deux barreaux ont été analysés, qui se distinguent par la vitesse de tirage. Le premier a été tiré à 2 mm/min et le second à 18 mm/min.

Un thermocouple est placé dans le barreau et se déplace avec lui lors du tirage, donnant ainsi une indication sur le déroulement de la transformation. La figure 3.4 est l'enregistrement des températures mesurées dans les deux barreaux, $T(z)$, ainsi que leur interprétation en courbes de refroidissement, $T(t)$. A partir des courbes de refroidissement, il est possible de déterminer le gradient en chaque point du barreau ainsi que la vitesse de refroidissement.

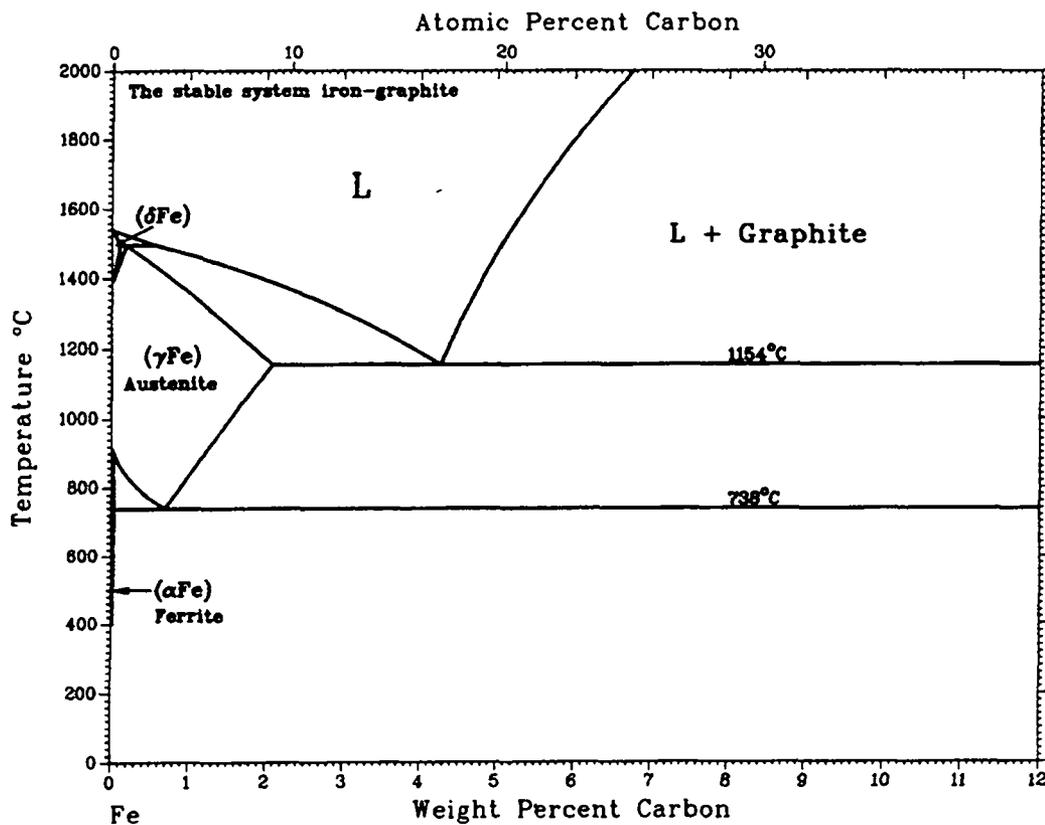


Figure 3.3 Diagramme d'équilibre Fe-C (Massalski (1986)).

La dimension des barreaux est de 500 mm de longueur et 5 mm de diamètre. Après la trempe, les barreaux sont sectionnés en segments d'environ 8 cm et polis sur la tranche, puis attaqués afin de permettre de repérer les différentes zones de transformations de phase. Une fois que la zone de solidification a été repérée, le segment correspondant est désenrobé et la partie concernant la solidification est découpée en fines tranches à l'aide d'une scie de 100 μm d'épaisseur. Les tranches sont alors à nouveau enrobées et polies au papier SiC puis à la pâte de diamant jusqu'à une granulométrie de 6 μm . Les tranches sont ensuite attaquées pour

permettre de visualiser la microstructure. Le liquide trempé est principalement constitué de lédéburite, tandis que l'austénite est transformée en martensite. L'attaque chimique choisie est du Nital, qui révèle en noir le liquide trempé.

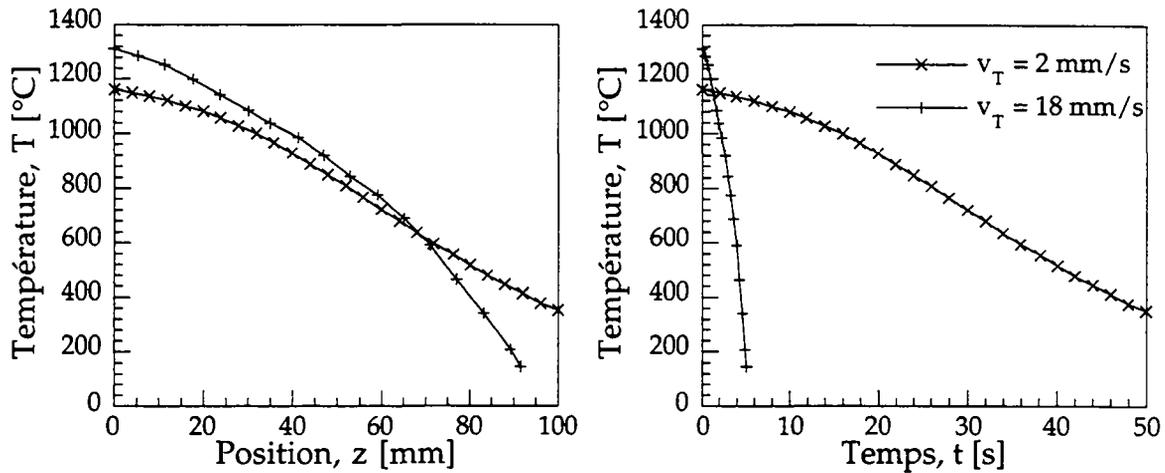


Figure 3.4 Température en fonction de la position et température au cours du temps pour les deux barreaux de TSD.

La densité de grains volumique finale est calculée à partir de la mesure de la densité de nodules bidimensionnelle par la relation 2.85. La surface de l'interface solide-liquide est normalisée, comme précédemment, suivant l'expression 3.2.

3.3 Refusion par laser

Les travaux entrepris par Pierantoni, Stoll et Gremaud sur les alliages Al-Si, au Centre de Traitement des Matériaux par Laser (CTML) ont été complétés par une série d'essais. Le principe de ces essais est de refondre un alliage d'Al-Si à l'aide d'un laser CO₂ de haute puissance (1800 W nominal, longueur d'onde $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$). Une description détaillée du dispositif se trouve dans les thèses de Gremaud (1990) ou de Zimmermann (1990). Les paramètres variés au cours de ces essais ont été la composition nominale de l'alliage et la vitesse de balayage du laser. Quatre compositions hypereutectiques ont été coulées: 17%, 20%, 23% et 26% poids de silicium et des traces à trois vitesses de balayage distinctes ont été réalisées: 0.01 m/s, 0.1 m/s et 0.5 m/s.

La première étape du processus expérimental est la préparation de l'alliage. Les composants élémentaires sont du raffinal Al 99.99 % (Si 10 ppm, Fe 9 ppm, Cu 10 ppm, Mg 3 ppm) et du silicium provenant de l'industrie électronique, dont la pureté est supérieure à 99.999 %. Les charges de chaque alliage ont été fondues dans un four à induction, dans un creuset en alumine, sous un vide de l'ordre de 10^{-5} Torr. Le métal liquide a été coulé dans un moule parallélépipédique en cuivre dont les dimensions intérieures sont 12 mm x 50 mm x 95 mm. La masse importante du moule permet d'assurer un refroidissement rapide et une certaine

finesse et régularité de la microstructure. Le lingot a ensuite été usiné, par fraisage et sciage, pour produire des barreaux de 8 x 8 x 40 mm.

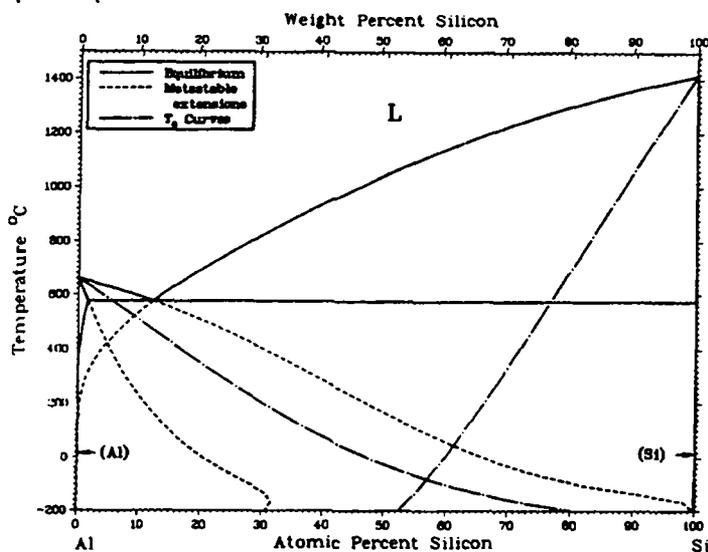


Figure 3.5 Diagramme d'équilibre Al-Si (Murray et McAlister (1984)).

La face du barreau destinée au traitement laser a été polie au papier SiC 220 puis 320. Des prétraces laser, par quatre passages successifs légèrement décalés, ont été réalisées afin de diminuer la taille de la microstructure et d'homogénéiser les compositions. Avant la trace proprement dite, deux passages de prétraces ont été réalisés, dans le même sens que la trace et le relief provoqué par les prétraces a été gommé au papier SiC 1000.

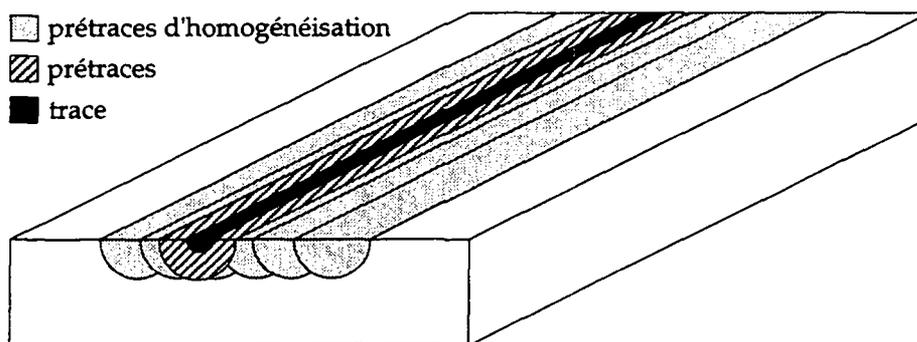


Figure 3.6 Représentation schématique d'un barreau et des positions des prétraces d'homogénéisation, des prétraces et de la trace proprement dite

Sur un barreau, représentant une composition, les trois traces à 0.01, 0.1 et 0.5 m/s sont effectuées parallèlement. Le barreau est alors coupé en deux, de manière à fournir une coupe vue de dessus (simple polissage de la surface de la trace) et une coupe transversale (polissage de la coupe). Les traces ont été attaquées au réactif de Keller pendant 10-30 s à température ambiante. Elles ont été observées au microscope optique puis au microscope électronique à balayage (MEB).

... le monde des chiffres et des formes géométriques n'existe pas en dehors du cerveau qui le crée: mais ce monde, une fois créé par le savant, lui échappe, obéit à des lois qu'il n'est pas au pouvoir du savant de modifier, de sorte que cet univers né de l'homme rejoint un absolu dont l'homme lui-même dépend.

A. Gide, *L'école des femmes*.

4 SIMULATION

Ce chapitre regroupe la description des trois méthodes utilisées pour la simulation de la solidification équiaxe eutectique. La première méthode, **méthode cellulaire**, est basée sur la subdivision du volume en un grand nombre de cellules et va être appliquée au cas de la solidification des fontes GS; la modélisation d'une grande population de grains va permettre d'étudier l'effet de la cinétique de croissance propre à chaque grain (par la dépendance en rayon de la vitesse de croissance, relation 2.47) sur les microstructures. Elle va également être appliquée, à titre de comparaison, au modèle *KJMA*. La deuxième méthode, **méthode de tir**, est basée sur la subdivision de la surface des grains en un grand nombre de facettes élémentaires; elle va permettre d'étudier l'influence du mouvement des grains et de différents types d'interactions sur la solidification et sur les microstructures. La troisième méthode, **méthode mixte**, est un mélange des deux précédentes: le volume est divisé en un grand nombre de cellules, et la surface des grains est décrite par un ensemble de facettes. Elle va être appliquée à la croissance de grains dans un gradient thermique. Chacune de ces méthodes numérique permet de relaxer l'une ou l'autre des hypothèses du modèle de *KJMA*. Pour l'application de la première, les grains ne croîtront pas tous à la même vitesse; pour celle de la deuxième, les grains ne seront pas immobiles; pour celle de la troisième, ils n'auront pas tous la même forme et ne seront pas caractérisés par une vitesse de croissance constante sur toute leur interface.

4.1 Méthode cellulaire (Charbon et Rappaz (1993))

Le principe de base de la méthode cellulaire est de discrétiser le volume de métal considéré en un grand nombre de cubes élémentaires de petite taille par rapport à la taille du système: les cellules. A partir de lois déterministes de germination et de croissance, il est possible de suivre l'évolution de la solidification en repérant à quel moment les cellules, liquides au départ, passent à l'état solide, par germination ou par l'avance de l'interface solide-liquide des grains. La méthode appliquée au cas de petits échantillons d'alliages eutectiques de thermique uniforme est décrite dans les paragraphes qui suivent.

4.1.1 Germination et croissance des grains

L'échantillon considéré est un petit cube de côté l , divisé en un grand nombre, N_{tot} , de cellules cubiques de côté $\delta l = lN_{tot}^{-1/3}$. Pour éviter l'effet de bord associé aux frontières du domaine (diminution locale de la fraction de solide), des conditions périodiques sont appliquées sur les six faces du cube: une cellule située sur une face du cube a comme voisin la cellule correspondante sur la face opposée. Si cette façon de faire permet d'éliminer l'effet de bord, elle introduit de l'ordre en imposant une périodicité au système. Pour autant que le nombre de grains pris en compte soit suffisant, cet effet est imperceptible.

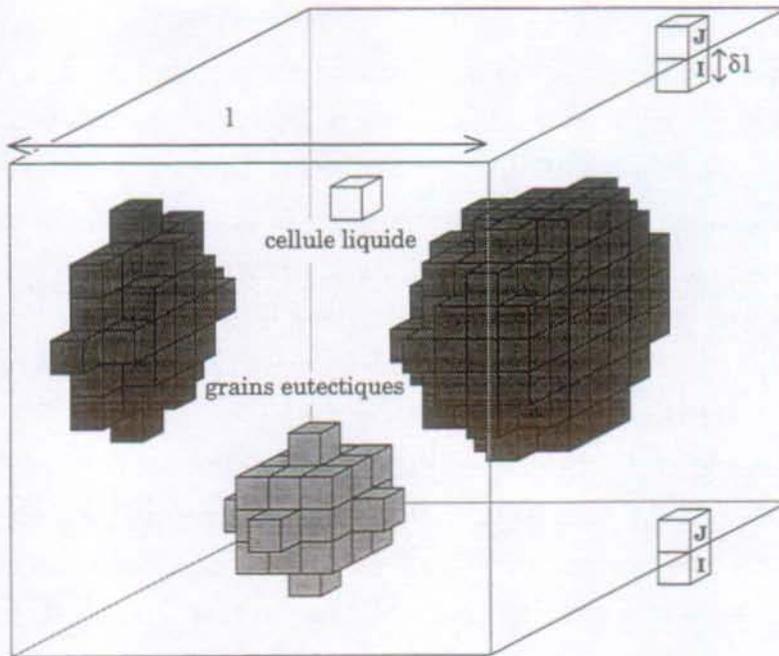


Figure 4.1 Représentation schématique du volume modélisé et des conditions périodiques. La cellule J sur la face inférieure a comme voisine la cellule I sur la face supérieure. La partie d'un grain coupée par la face droite du cube réapparaît par la face gauche.

Au début du calcul en pas de temps, la température est initialisée à une valeur supérieure à celle de la température eutectique. Chaque cellule est caractérisée par un indice d'état qui vaut 0 si la cellule est liquide et 1 si elle est solide. Si le flux de chaleur qui quitte l'échantillon, Q^t , est connu, la température au pas de temps suivant, $T^{t+\delta t}$, est donnée par:

$$T^{t+\delta t} = T^t + \frac{\frac{S}{V} Q^t \delta t + L \delta f_s^t}{\rho c_p} \quad 4.1$$

Pour autant que les valeurs de la chaleur latente et de la chaleur spécifique soient connues, la seule quantité indéterminée est l'incrément de fraction de solide volumique, δf_s^t . Il est donné par le nombre de cellules qui sont passées à l'état

solide durant le pas de temps δt , que ce soit par la germination de nouveaux grains ou par la croissance des grains préexistants. Ces deux contributions sont détaillées ci-après.

Germination

Si la distribution des sites de germination est connue (section 2.1), $dn/d(\Delta T)$, il est possible de calculer la probabilité qu'une cellule devienne un germe durant un pas de temps. Le nombre de germes créés pendant un pas de temps est donné par: $[n(\Delta T^t) - n(\Delta T^{t-\delta t})]l^3$ (décalage en arrière d'un pas de temps), où $n(\Delta T)$ est la densité de germes, donc de grains, devenus actifs jusqu'à la surfusion ΔT . La probabilité qu'une cellule devienne un germe, p_n , est définie par:

$$p_n = \frac{[n(\Delta T^t) - n(\Delta T^{t-\delta t})]l^3}{N_{tot}} = [n(\Delta T^t) - n(\Delta T^{t-\delta t})]\delta l^3 \quad 4.2$$

Pour bien décrire la germination, il convient que p_n soit bien plus petit que 1. Dans le cas contraire, le réseau cellulaire est trop grossier pour décrire la finesse de la structure des grains. Dans une boucle sur toutes les cellules liquides, un nombre aléatoire, ξ , est choisi par l'ordinateur dans l'intervalle $[0,1[$. Si $\xi \leq p_n$, la cellule considérée "germe", pour autant qu'elle soit encore liquide à cet instant. Dans ce cas, le nombre de grains est incrémenté de 1 et l'indice d'état de la cellule est posé égal à 1. Si $\xi > p_n$, rien ne se passe. Cette procédure prend automatiquement en compte l'extinction des sites de germination par la croissance du solide, car p_n est définie à partir du nombre total de cellules et non pas à partir du nombre de cellules liquides résiduelles. Le nombre de cellules, et donc de grains, δN_g^t , qui ont germé dans l'intervalle $[t-\delta t, t]$, est stocké.

Croissance

Le rayon de chaque grain est mis à jour à chaque pas de temps à l'aide de l'une des relations 2.42 ou 2.47, suivant que l'alliage considéré est un eutectique "normal" ou une fonte GS:

$$r_j^{t+\delta t} = r_j^t + v(\Delta T^t)\delta t \quad 4.3$$

$$r_{\gamma,j}^{t+\delta t} = r_{\gamma,j}^t + v(\Delta T^t, r_j^t)\delta t \quad 4.4$$

Une boucle sur toutes les cellules liquides en contact avec au moins une cellule solide est effectuée. Si une cellule m est encore liquide et se trouve à une distance $d_{mj} \leq r_j^{t+\delta t}$ du centre d'un grain j , elle est capturée, et son indice d'état devient égal à 1. Le nombre total de cellules, δN_c^t , capturées par la croissance de tous les grains

pendant δt est stocké. A l'issue des boucles de germination et de croissance, l'incrément de fraction de solide qui apparaît dans la relation 4.1 est donné par le rapport entre le nombre de cellules solidifiées durant le pas de temps, que ce soit par germination ou par croissance, et le nombre total de cellules:

$$\delta f_s^t = \frac{\delta N_g^t + \delta N_c^t}{N_{tot}^t} \quad 4.5$$

Comme le montre la relation 4.5, cette méthode ne requiert aucun modèle de rencontre des grains: cette dernière est directement prise en compte par la lutte que se livrent les grains pour capturer les cellules encore liquides.

Le modèle ne permet pas uniquement de calculer la courbe de refroidissement, il produit également une description précise de l'évolution de la microstructure, donnant ainsi accès à tous les paramètres stéréologiques. En particulier, le volume des grains, V_j , et donc la distribution de taille des grains, peut être aisément calculé à partir du nombre, N_j , de cellules qui appartiennent au grain j :

$$V_j = N_j \delta l^3 \quad 4.6$$

Les deux paramètres importants de la solidification que sont la surface solide-liquide, S_{s-l} , et le facteur de rencontre, Ψ , peuvent également être déterminés. Comme Mampaey (1991) l'a montré, il existe plusieurs manières de calculer ces valeurs à partir d'un modèle stochastique. La surface étendue des grains, $S_{ét}^t$, est donnée par :

$$S_{ét}^t = \sum_{j=1}^{N_g^t} 4\pi(r_j^t)^2 \quad 4.7$$

où N_g^t est le nombre de grains au temps t et r_j^t leur rayon. Le volume étendu correspondant, $V_{ét}^t$, est calculé par l'approximation numérique plutôt que par la relation analytique exacte:

$$V_{ét}^t = \delta l^3 \sum_{j=1}^{N_g^t} N_{ét,j}^t \quad 4.8$$

où $N_{ét,j}^t$ est le nombre de cellules contenues dans une sphère de rayon r_j^t . Cette méthode a l'avantage de produire le même type d'erreurs que celles commises

sur le calcul du volume effectif des grains. Le calcul de S_{s-l}^t et Ψ^t peut être effectué selon l'une des deux procédures suivantes pour un eutectique régulier ou irrégulier (à l'exclusion de la fonte GS pour laquelle la première méthode ne peut pas s'appliquer car la vitesse est fonction du rayon):

Méthode A

$$S_{s-l}^t = \frac{\delta f_s^t}{\delta r^t} l^3 \quad 4.9$$

$$\Psi^t = \frac{S_{s-l}^t}{S_{ét}^t} \quad 4.10$$

où $\delta r^t = v(\Delta T^t)\delta t$

Méthode B

$$\delta f_{s,ét}^t = \frac{\delta V_{ét}^t}{l^3} \quad 4.11$$

$$\Psi^t = \frac{\delta f_s^t}{\delta f_{s,ét}^t} \quad 4.12$$

$$S_{s-l}^t = S_{ét}^t \Psi^t \quad 4.13$$

Comme Mampaey l'a montré, les deux méthodes conduisent au même résultat moyen ($S_{s-l}^t = S_{s-l}^t(f_s^t)$) ou ($\Psi^t = \Psi^t(f_s^t)$) mais la seconde atténue le bruit car elle prend en compte au numérateur comme au dénominateur le fait que les grains sphériques sont représentés par un ensemble de petits cubes. C'est cette méthode qui sera utilisée par la suite.

Fontes à graphite sphéroïdal: croissance du nodule

L'évolution du rayon du nodule est basée sur l'application du bilan volumique de carbone. A l'équilibre et à la température eutectique, la règle des leviers donne une fraction massique de graphite, f_{gr}^m , égale à 2.29%. Pour une densité du graphite de 2.2 et de l'austénite de 7.0, la fraction volumique de graphite est égale à:

$$f_{gr} = \frac{f_{gr}^m}{f_{gr}^m + f_{\gamma}^m \frac{\rho_{gr}}{\rho_{\gamma}}} = \frac{1}{14.2} \quad 4.14$$

A chaque pas de temps, le volume des grains est donné par la relation 4.6. Le rayon du nodule de chaque grain, $r_{gr,j}^t$, est calculé de manière que la relation suivante soit satisfaite:

$$\frac{\frac{4}{3}\pi (r_{gr,j}^t)^3}{V_j^t} = \frac{1}{14.2} \quad 4.15$$

Toutes les cellules encore austénitiques qui tombent à l'intérieur de la sphère de rayon $r_{gr,j}^t$ et appartiennent au grain j sont transformées en graphite. Le centre du nodule est confondu avec le centre du grain tout au long de la solidification. Si deux grains de fonte GS germent proches l'un de l'autre, la procédure développée ici peut amener un nodule à rencontrer le joint de grain. Le volume de graphite est alors biaisé. Il a été vérifié que cet effet est négligeable (Berthod (1993)).

4.1.2 Représentation de la microstructure

Les méthodes cellulaires permettent de représenter très facilement l'évolution de la microstructure dans un plan perpendiculaire à l'un des axes x , y ou z . Pour ce faire, la seule information nécessaire est le temps auquel chaque cellule a été capturée et le numéro du grain auquel elle appartient. Une double boucle est effectuée sur chaque pas de temps et sur chaque cellule du plan pour déterminer si la cellule est solide au pas de temps en question. Si c'est le cas, un carré d'une couleur différente de celle du fond de l'écran est dessiné à la position correspondant à celle de la cellule. Les joints de grains sont obtenus en traçant un segment d'une autre couleur sur les côtés des carrés qui séparent deux carrés appartenant à des grains différents.

Pour les fontes GS, une information supplémentaire est nécessaire: le temps auquel chaque cellule est transformée en graphite. Ce temps est laissé égal à zéro pour les cellules qui n'appartiennent pas à un nodule en fin de solidification.

4.2 Méthode de tir (Charbon *et al* (1994))

Le principe de base de la méthode de tir est de suivre directement l'évolution de l'interface solide-liquide des grains en divisant la surface de chaque grain en un grand nombre de surfaces élémentaires. La somme des surfaces élémentaires en contact avec le liquide est la surface de l'interface solide-liquide. La méthode de

tir sera appliquée uniquement aux eutectiques "normaux". Elle n'a pas été adaptée au cas des fontes GS.

4.2.1 Germination et croissance des grains

Un échantillon cubique, de côté $l + 2\delta l$ est considéré, dont la température est uniforme et le taux d'extraction de chaleur connu. Au départ de la simulation, la température est plus élevée que la température eutectique. Comme pour la méthode cellulaire, le bilan thermique est résolu dans une procédure en pas de temps. Dès que l'alliage est en surfusion, la densité de germes est calculée en accord avec la relation 2.24. Le nombre de grains, δN_g^t , germés au cours d'un pas de temps, δt , est donné par:

$$\delta N_g^t = (l + 2\delta l)^3 [n(\Delta T^t) - n(\Delta T^t - dt)] \quad 4.16$$

La position de chaque nouveau germe est choisie au hasard dans le cube de côté $(l + 2\delta l)$ par trois coordonnées aléatoires (x, y, z) . Si un nouveau germe est localisé à l'intérieur d'un grain solide déjà formé, il n'est pas pris en compte. Ceci veut dire que l'extinction des sites de germination par la croissance du solide est à nouveau prise en compte par ce modèle. Contrairement à la méthode cellulaire, la méthode de tir nécessite une boucle pour tester si un nouveau germe tombe à l'intérieur de l'enveloppe d'un grain préexistant.

Pendant le même pas de temps, tous les grains formés auparavant croissent à une vitesse donnée par la relation 2.42. Comme le champ thermique est uniforme, tous les grains croissent à la même vitesse et l'incrément de rayon est donné par:

$$\delta r_i^t = \delta r t = v(\Delta T^t) \delta t = A(\Delta T^t)^2 \delta t \quad 4.17$$

L'incrément de volume solide durant un pas de temps est donné par le produit de la surface solide-liquide et de l'incrément de rayon.

Pour calculer la surface solide-liquide, une méthode similaire à celle développée par Gilgien (1991) pour calculer les facteurs de vue en radiation axisymétrique est utilisée. La surface de chaque grain est divisée en un pavage régulier de N_{dir} surfaces élémentaires ou facettes (fig. 4.4). Chaque facette est caractérisée par une direction de tir, issue du centre du grain et pointant vers son centre, et par un angle solide, $\delta\Omega$. Pour obtenir un pavage régulier, la procédure suivante a été adoptée.

Le nombre de facettes sur un méridien, $N_{mé}$, est fixé, ce qui définit la hauteur des facettes, $\delta\theta$:

$$\delta\theta = \frac{2\pi}{N_{mé}} \quad 4.18$$

Le pavage est ensuite construit comme un igloo, couche par couche. Pour des raisons de symétrie, il convient que $N_{mé}$ soit un multiple de 4. En effet, l'hémisphère est pavée par $N_{mé}/4$ couches de directions de tir.

Les directions de tir appartenant à une même couche sont caractérisées par une même latitude θ_j :

$$\theta_j = \left(\frac{2j-1}{2}\right) \delta\theta \quad \text{pour } j \text{ allant de } 1 \text{ à } N_{mé}/4 \quad 4.19$$

Le périmètre, l_j , du cercle de latitude θ_j sur la sphère unitaire est égal à:

$$l_j = 2\pi \cos(\theta_j) \quad 4.20$$

Le nombre de directions de tir sur chaque parallèle, $N_{pa,j}$, est fixé par l'entier qui donne une distance entre les directions aussi proche que possible de $\delta\theta$:

$$N_{pa,j} \approx \frac{l_j}{\delta\theta} \quad 4.21$$

Les longitudes des différentes directions sur chaque parallèle sont alors données par les angles $\varphi_{j,k}$ suivants:

$$\varphi_{j,k} = (k-1) \delta\varphi_j \quad \text{pour } k \text{ allant de } 1 \text{ à } N_{pa,j} \quad 4.22$$

où

$$\delta\varphi_j = \frac{2\pi}{N_{pa,j}} \quad 4.23$$

L'angle solide attribué à chaque direction, $\delta\Omega_{j,k}$, est donné par la portion de segment sphérique propre à chaque direction et caractérisé par les angles $\delta\theta$ et $\delta\varphi_j$:

$$\delta\Omega_{j,k} = \delta\varphi_j \sin(j\delta\theta) \quad 4.24$$

Le pavage de la sphère est complété par l'hémisphère symétrique. Le nombre final de directions de tirs, N_{dir} , n'est pas connu à priori mais est donné par la somme:

$$N_{dir} = 2 \sum_{i=1}^{N_{mé}/4} N_{pa,i} \quad 4.25$$

Pour la suite, les directions de tir de chaque grain sont numérotées avec un seul indice, j , allant de 1 à N_{dir} . Une facette, j , est caractérisée par une direction (θ_j, ψ_j) , qui définit son centre et un angle solide, $\delta\Omega_j$, qui est la portion de la surface de la sphère unité attribuée à cette direction.

L'état, k_{ij} , de chaque élément de surface j , pour chaque grain, i , est défini de la manière suivante: si la facette est toujours en contact avec le liquide, son index est égal à 1. Il est posé égal à 0 si le centre de la facette tombe à l'intérieur d'un autre grain.

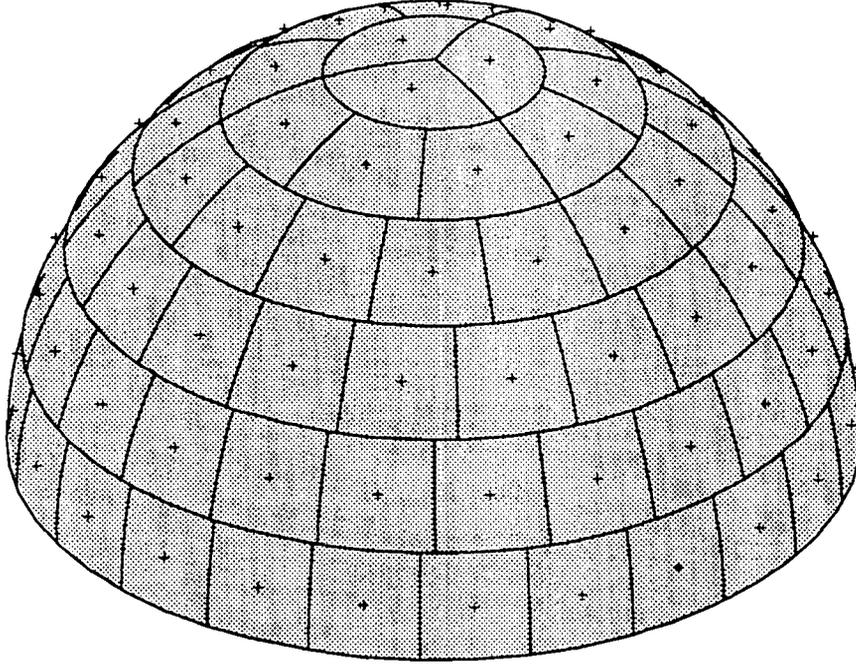


Figure 4.2 Pavage d'un hémisphère par des facettes d'angle solide le plus uniforme possible. Les points indiquent l'intersection de la sphère et des directions de tir.

Comme la taille finie de l'échantillon considéré fausse les résultats du calcul de la fraction de solide, la germination et la croissance des grains sont calculées dans le cube de côté $(l + 2\delta l)$, mais l'évolution de la fraction de solide est calculée uniquement dans le plus petit cube concentrique de côté l . Les éléments de surface qui tombent à l'extérieur de ce petit cube ont leur indice k_{ij} égal à 0. Cette méthode est préférée aux conditions périodiques parce qu'elle demande beaucoup moins de temps de calcul et qu'elle est mieux adaptée au mouvement des grains.

La connaissance des indices, k_{ij} , de chaque direction de tir, j , pour chaque grain, i , permet de calculer directement la surface de l'interface solide-liquide, S_{s-l}^t . Elle est donnée par la somme de toutes les facettes qui sont en contact avec le liquide et à l'intérieur du petit cube :

$$S_{s-l}^t = \sum_{i=1}^{N_g^t} (r_i^t)^2 \sum_{j=1}^{N_{dir}} \delta\Omega_j k_{ij}^t \quad 4.26$$

A partir de la surface de l'interface solide-liquide et de l'incrément de rayon, $\delta r^t = A(\Delta T^t)^2 \delta t$, il est possible de calculer l'incrément de fraction de solide:

$$\delta f_s^t = \frac{S_{s-l}^t \delta r^t}{l^3} \quad 4.27$$

et la nouvelle température par l'intermédiaire du bilan thermique (éq. 4.1).
Le facteur de rencontre des grains est directement donné par:

$$\psi^t = \frac{S_{s-l}^t}{S_{ét}^t} = \frac{S_{s-l}^t}{\sum_{i=1}^{N_g^t} 4\pi(r_i^t)^2} \quad 4.28$$

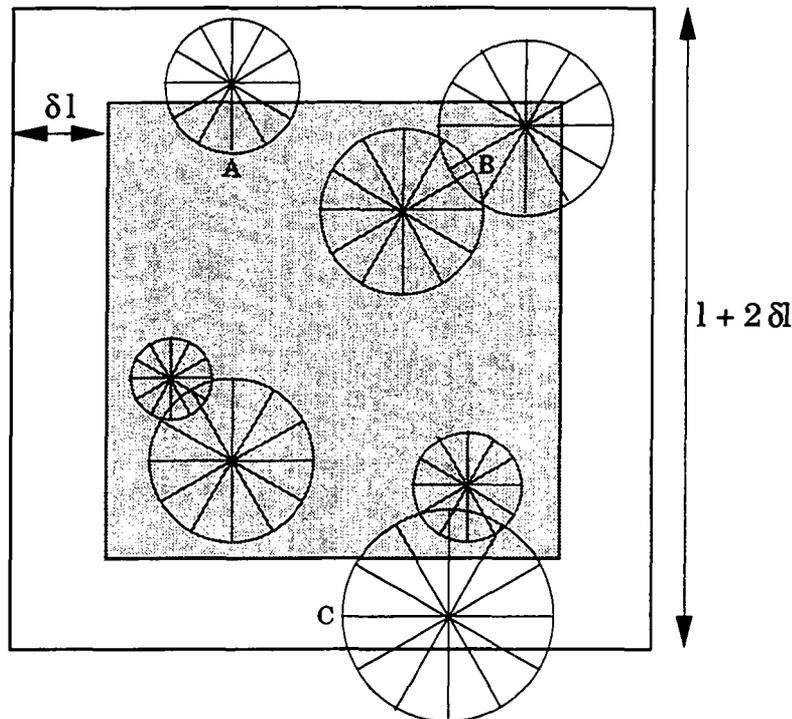


Figure 4.3 La germination est autorisée dans un cube de côté $l + 2\delta l$. L'évolution de la surface de l'interface solide-liquide est donnée par la somme des facettes de type A, qui sont à la fois en contact avec le liquide et à l'intérieur du cube de côté l (zone ombrée). Les facettes qui sont à l'intérieur d'un grain (B) ou à l'extérieur du cube de côté l (C) ne sont pas prises en compte (cas simplifié d'une solidification bidimensionnelle).

4.2.2 Mouvement des grains

Avec la méthode de tir, un grain i est complètement décrit par la position de son centre, son rayon et l'état de chacune de ses facettes. Imposer un mouvement au grain revient simplement à changer les coordonnées de son centre: le rayon et

l'état des facettes ne sont pas affectés. Seules des translations de grains seront considérées ici.

Lorsque deux grains viennent en contact à cause du mouvement, ils forment un amas par croissance. Les amas ne peuvent se séparer ultérieurement et le nombre de grains compris dans un amas ne peut qu'augmenter. Le nombre d'amas dans l'échantillon croît au début de la solidification à cause de la germination (chaque grain isolé est considéré comme un amas) puis décroît pour atteindre 1 en fin de solidification lorsque tous les grains sont connectés. Tous les grains d'un même amas se déplacent à la même vitesse. Un bilan de masse est utilisé pour tenir compte du fait que, en raison du mouvement, des grains entrent dans le cube de côté l , ou le quittent, et modifient la fraction de solide.

En principe, le modèle permet d'introduire n'importe quel type de mouvement de translation. La vitesse de chaque amas pourrait ainsi être fonction de toute variable du système: position, température, fraction de solide, temps, rayon, etc. Le présent travail s'est limité à l'étude de deux types de mouvements: **translation aléatoire** des amas avec différents types d'interaction et **sédimentation**. A chaque pas de temps, un mouvement des grains est imposé selon l'un des schémas décrits ci-après.

Translation aléatoire

L'amplitude du mouvement est donnée par une vitesse maximale constante, v_{mot} , multipliée par le pas de temps, δt , et un nombre aléatoire, ξ , appartenant à l'intervalle $[0, 1[$. La direction du mouvement de chaque grain est choisie aléatoirement parmi les N_{dir} directions utilisées pour le pavage des grains. L'amplitude et la direction définissent un vecteur de déplacement T . Deux types d'interactions sont définies pour cette situation. Elles sont illustrées à la figure 4.4 pour le même vecteur, T :

- i) *Interaction attractive*. Le vecteur de translation, T , étant choisi aléatoirement, le grain ou l'amas n'est déplacé de ce vecteur que s'il ne rencontre pas d'autre grain ou amas pendant le mouvement. Si une collision est détectée, il est déplacé dans la direction T jusqu'au premier point de contact. Comme ces grains croissent pendant ce même pas de temps, ils vont appartenir au même amas.

Cette interaction imite le mouvement aléatoire des grains lorsque les forces de cisaillement dans le liquide sont faibles: les grains se déplacent aléatoirement les uns par rapport aux autres, les collisions sont nombreuses, et le temps de contact est suffisant pour que les grains se lient par croissance.

- ii) *Interaction répulsive*. Après que le vecteur T a été choisi pour un grain ou un amas donné, une distance d'interaction est choisie, qui

est égale à αT , où α est une constante supérieure ou égale à 1. Si aucune collision n'est détectée pendant la translation αT , le grain ou amas est déplacé de T . Si une collision est détectée, le mouvement $-\alpha T$ est tenté. Si aucune collision n'est détectée pendant le mouvement $-\alpha T$, le grain ou amas est déplacé de $-T$. En cas de collision, il est placé en position médiane, entre les deux points de contact. L'interaction répulsive est définie comme faible pour $\alpha = 1$ et forte pour $\alpha = 2$.

L'interaction répulsive peut se produire dans des procédés où il existe des fortes contraintes de cisaillement causées par un gradient de vitesse élevé (par exemple brassage électromagnétique du liquide): dans ce cas, les grains se déplacent aléatoirement les uns par rapport aux autres et les collisions sont très nombreuses mais le temps de contact est trop court pour que les grains puissent se lier par croissance.

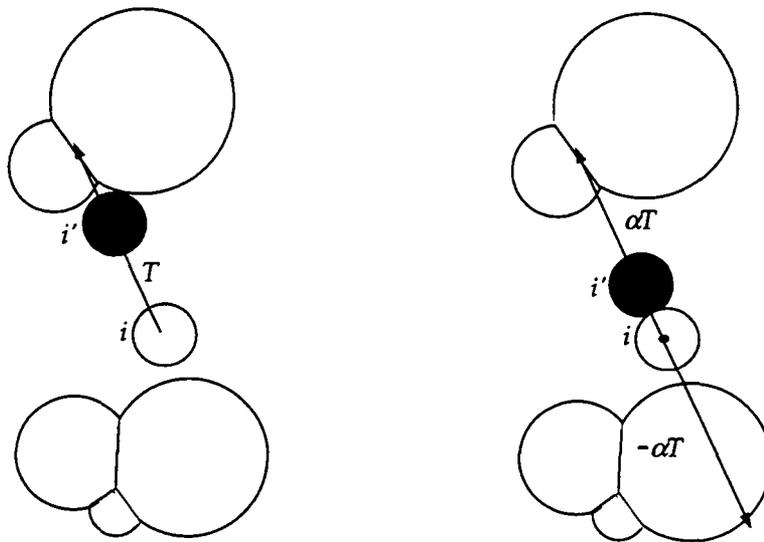


Figure 4.4 Le grain i est déplacé en i' par la translation T . Le cas de gauche représente l'interaction attractive et celui de droite l'interaction faiblement répulsive ($\alpha=1$).

Sédimentation

Pour chaque grain ou amas, un vecteur T est choisi aléatoirement dans le plan (x,y) . La composante verticale est donnée par la vitesse limite de chute, v_{st} , prédite par Stokes (1851) :

$$\delta z_i = v_{st,i} \delta t = \frac{2}{9} \frac{(\rho_l - \rho_s)}{\eta_l} g r_i^2 \delta t = C_{st} r_i^2 \delta t \quad 4.29$$

et est ajoutée à T . ρ_l et ρ_s sont les densités du liquide et du solide, g la gravité et η_l la viscosité dynamique du métal liquide. L'amplitude du mouvement vertical,

δz_i , pendant un pas de temps est différente pour chaque grain et est proportionnelle au carré du rayon du grain, r_i . Pour les amas, r_i est pris comme le rayon de la sphère équivalente de volume égal à celui de l'amas.

Les grains ou amas sont stoppés lorsqu'ils rencontrent le fond du creuset ou lorsqu'ils touchent un grain ou un amas qui est déjà stoppé. Cette interaction est similaire à l'interaction attractive définie ci-dessus.

4.2.3 Représentation de la microstructure

Pour dessiner la microstructure, une méthode récursive similaire à celle décrite par Mahin *et al* (1980) est utilisée.

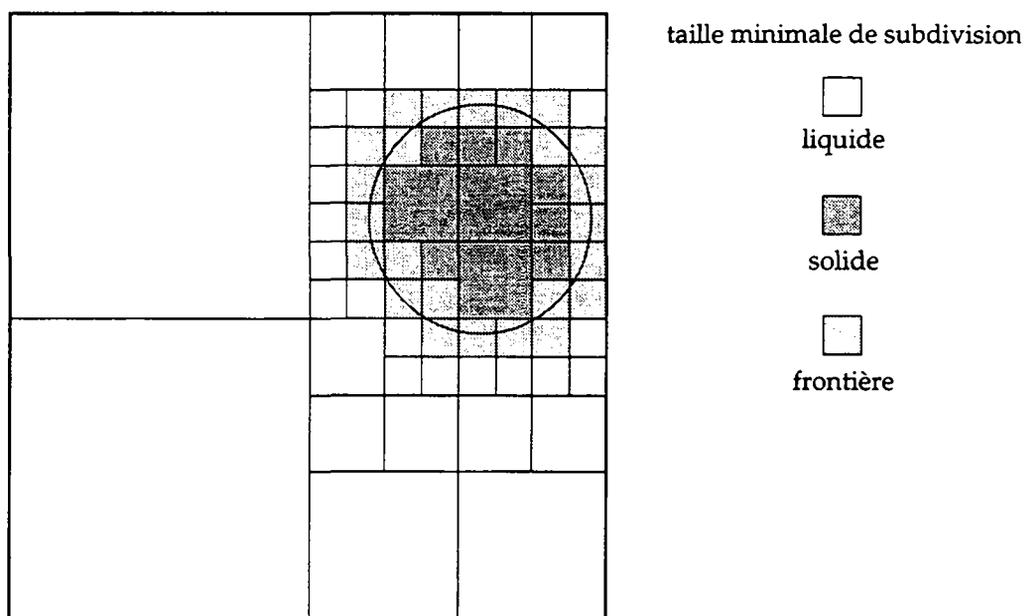


Figure 4.5 Application de la méthode récursive au cas simple du dessin d'un cercle. Le carré de base est divisé en quatre carrés. Tant que l'un des carrés n'est pas entièrement dans le liquide ou dans un seul grain, la division est poursuivie. Elle est stoppée lorsqu'une taille minimale est atteinte. Les carrés sont remplis d'une couleur dépendant de leur état.

Le principe est de choisir un plan d'observation perpendiculaire à l'un des axes x , y ou z et un instant d'observation. L'intersection de ce plan avec l'échantillon cubique est un carré. Ce carré est divisé en quatre carrés égaux. Chacune de ces parties est caractérisée par l'un des états suivants:

- entièrement dans le liquide,
- entièrement dans un seul grain,
- frontière entre des grains,
- frontière entre des grains et le liquide.

Si une partie n'appartient pas à l'une des deux premières catégories, elle est divisée en quatre et chacune des nouvelles subdivisions est également

caractérisée. Cette procédure récursive est interrompue lorsqu'une taille minimale prédéfinie de subdivision est atteinte.

La représentation de la microstructure est obtenue en attribuant une couleur caractéristique à chacun des quatre états définis ci-dessus. Cette méthode a l'avantage d'offrir une résolution de dessin indépendante du calcul de germination-croissance. Une image très précise de la microstructure est obtenue lorsque la taille minimale de subdivision est faible, mais une évolution dans le temps peut être visualisée rapidement avec une résolution moindre.

4.3 Méthode mixte (Rappaz *et al* (1994))

Une méthode mixte a été développée pour décrire la solidification des grains eutectiques dans un gradient thermique. Dans ce cas précis, les grains ne sont plus sphériques car leur interface n'est plus isotherme. Dès lors, il n'est plus possible de décrire par une relation simple la position de l'interface solide-liquide. La méthode mixte utilise une méthode de tir pour décrire la position de l'interface et une méthode cellulaire pour le calcul de la fraction de solide et de l'évolution de la microstructure. Le problème a été abordé par une simulation bidimensionnelle (2D) et par une simulation tridimensionnelle (3D). Ces deux méthodes sont décrites en parallèle dans les paragraphes qui suivent.

4.3.1 Germination et croissance

L'échantillon considéré est soit un rectangle de côtés l_x, l_z (2D), soit un parallélépipède de côtés l_x, l_y et l_z (3D), divisé en un grand nombre, N_{tot} , de cellules carrées ou cubiques.

La situation thermique utilisée dans cette section est très simple: le champ de température est monodimensionnel, la température est une fonction linéaire de z et de t . Ce champ de température est donc caractérisé par un gradient constant, G , et une vitesse d'avance des isothermes constante, v_T :

$$T(x, y, z, t) = T_{eut} - G(v_T t - z) \quad 4.30$$

Cette thermique est destinée à reproduire la situation d'un traitement de refusion laser en régime stationnaire ou une croissance de type Bridgman. L'hypothèse de gradient constant à l'échelle des grains est légitime pour autant que la chaleur latente libérée par la solidification soit évacuée rapidement (surfusion thermique beaucoup plus faible que la différence de température à l'échelle du grain).

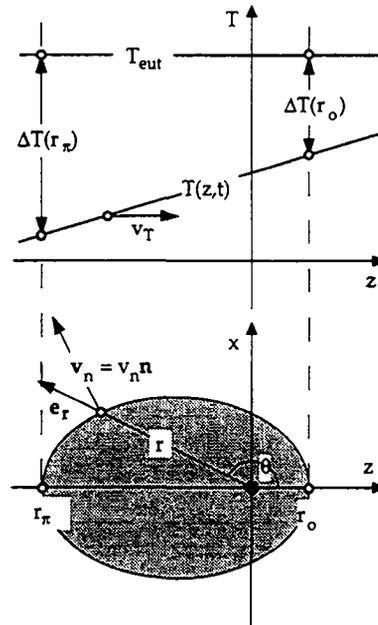


Figure 4.6 Représentation schématique d'un grain et du profil de température considéré.

Germination

La germination est abordée de deux manières fondamentalement différentes:

- *Germination instantanée* décrite par une surfusion unique de germination, ΔT_n , et une densité de grains, n_0 .

Avant le calcul en pas de temps de la germination et de la croissance des grains, N_g cellules sont choisies aléatoirement et deviennent des sites possibles de germination, où N_g est donné par:

$$N_g = n_0 A_{tot} \text{ (2D)} \text{ ou } N_g = n_0 V_{tot} \text{ (3D)} \quad 4.31$$

avec A_{tot} la surface totale de l'échantillon, ($= l_x l_z$), en 2D, et V_{tot} son volume total en 3D, ($= l_x l_y l_z$).

Si, au cours du calcul, ces cellules sont encore liquides lorsqu'elles sont atteintes par l'isotherme ($T_{eut} - \Delta T_n$), elles donnent naissance à un nouveau grain.

- *Germination homogène* prédite par le modèle de Thompson et Spaepen.

Afin d'éviter le passage par une relation stéréologique incertaine pour convertir la densité de grains tridimensionnelle en son équivalent en deux dimensions, cette méthode ne sera appliquée qu'au modèle 3D.

La relation 2.17 prédit le taux de germination en fonction de la surfusion. Son intégration au cours du temps permet de calculer la densité de grains:

$$n(t) = \int_{t_0}^t I dt \quad 4.32$$

La vitesse de refroidissement constante permet d'effectuer le changement de variable $t \rightarrow T$ de la manière suivante:

$$dt = \frac{1}{\dot{T}} dT \quad 4.33$$

avec \dot{T} la vitesse de refroidissement égale au produit du gradient de température et de la vitesse d'avance des isothermes (G et v_T sont pris positifs):

$$\dot{T} = -Gv_T \quad 4.34$$

Ainsi, la densité de grains est prédite en fonction de la température par la relation:

$$n(T) = \frac{1}{\dot{T}^{T_{liq}}} \int^T I dT \quad 4.35$$

L'introduction de cette relation dans le modèle stochastique pose quelques problèmes. En effet, il n'est pas possible, comme dans le cas précédent, de placer aléatoirement dans le liquide tous les germes potentiels, car, en germination homogène, tous les atomes sont potentiellement des germes. Il est donc nécessaire de fixer une température minimale, T_{min} , qui sera la borne inférieure au calcul du taux de germination. Ceci revient à dire que l'on souhaite placer dans le liquide seulement les germes qui sont susceptibles d'être activés au cours de la solidification. Pour que la situation réelle soit bien représentée, il faut que T_{min} soit inférieure à la température la plus froide atteinte par une cellule liquide.

Un autre problème, numérique, vient du fait que le taux de germination est une fonction exponentielle du carré de la surfusion. Il convient donc de pouvoir varier la longueur des intervalles de surfusion considérés pour l'intégration numérique de l'équation 4.35, de manière à décrire précisément le domaine de germination effectif. Pour contourner ce problème, l'intervalle de température $[T_{min}, T_{liq}]$ est divisé en un grand nombre de pas de température, δT_i . L'intégrale 4.35 est évaluée numériquement sur chaque intervalle afin de prédire l'incrément de densité de grains, δn_i , produit par ce pas de température. A partir de cet incrément, un nombre de germes $N_{g,i}$, où $N_{g,i} = \delta n_i V_{tot}$, sont choisis aléatoirement parmi les N_{tot} cellules. La surfusion de germination attribuée à chaque germe est choisie aléatoirement dans l'intervalle de température δT_i . Si la cellule contient déjà un germe de plus faible surfusion, c'est cette plus faible surfusion qui est conservée. Ceci revient à considérer que si deux germes sont

suffisamment proches pour être situés dans une même cellule, seul celui qui est caractérisé par la plus faible surfusion de germination va donner naissance à un grain. Les intervalles de température sont fixés par une progression géométrique qui permet, malgré l'augmentation exponentielle du taux de germination, de conserver un incrément du nombre de grains à peu près constant pour chaque δT_i .

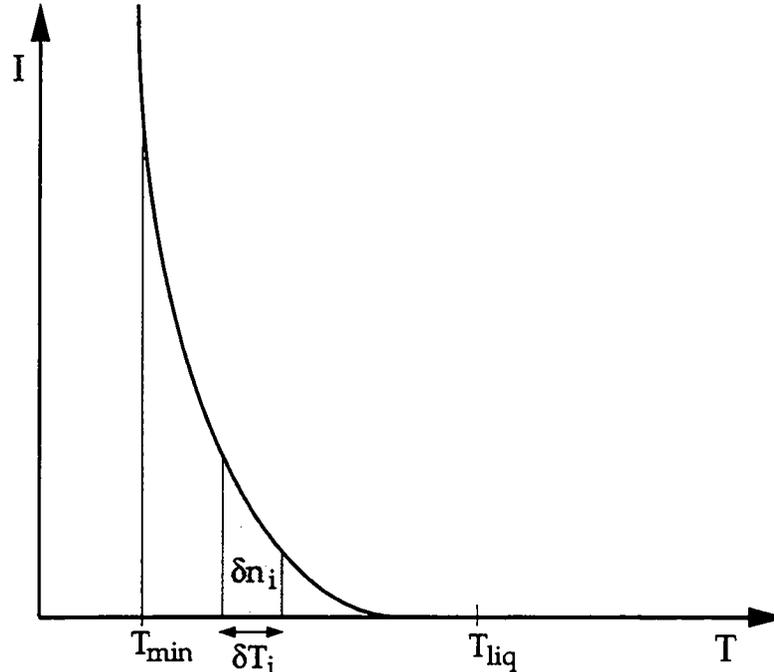


Figure 4.7 Une fois la température arbitraire T_{min} choisie, le taux de germination est intégré numériquement sur l'intervalle $[T_{min}, T_{liq}]$. Pour chaque intervalle de température, δT_i , l'incrément de densité de grains, δn_i , est ainsi obtenu.

A la fin du calcul en pas de temps, il est vérifié que la température la plus froide atteinte par une cellule encore liquide est supérieure à T_{min} . Dans le cas contraire, un nouveau calcul est effectué avec une valeur inférieure de T_{min} .

Croissance

En tout point de l'interface, la vitesse normale est connue. Elle est donnée soit par une relation du type 2.42:

$$v_n = A\Delta T^2 \quad 4.36$$

où ΔT désigne la surfusion locale de l'interface, soit par la résolution du système défini par le modèle *TMK* (section 2.2.3).

Afin de décrire l'évolution de l'interface solide-liquide de chaque grain, le problème est formulé en coordonnées sphériques (r, θ, φ) , où r est la coordonnée radiale et θ l'angle entre r et la direction z (voir fig. 4.6). En raison de la thermique simplifiée considérée ici, le problème est indépendant de l'angle

azimutal, φ . La forme de l'interface est donc décrite par une fonction $r(\theta, t)$ et la vitesse radiale de croissance est définie par:

$$v_r = \left[\frac{\partial r}{\partial t} \right]_{\theta} \quad 4.37$$

Cette vitesse est liée à la vitesse normale par l'angle entre les directions e_r et n , où e_r est le vecteur radial unitaire et n la normale unitaire à l'interface qui pointe dans le liquide:

$$v_r = \left[\frac{\partial r}{\partial t} \right]_{\theta} = \frac{v_n}{e_r \cdot n} = v_n \sqrt{1 + \left[\frac{r'}{r} \right]^2} \quad 4.38$$

avec

$$r' = \left[\frac{\partial r}{\partial \theta} \right]_t \quad 4.39$$

Une solution analytique de l'évolution du rayon au cours du temps a été développée pour les deux valeurs particulières de θ : 0 et π , pour lesquelles r' est nulle, et pour une cinétique donnée par une relation de type Jackson et Hunt. Le développement en est donné à l'annexe 3. Pour un angle θ quelconque, il n'est pas possible de calculer analytiquement l'évolution de r , il est donc nécessaire d'adopter une procédure numérique pour prédire l'évolution du contour des grains. Une méthode similaire à celle de Ito et Fuller (1993) est utilisée. N_{dir} directions θ_k sont réparties régulièrement (avec un espacement constant, $\delta\theta = 2\pi/N_{dir}$). Ces directions sont issues du centre du grain et pointent vers le liquide. La position de l'interface solide-liquide est calculée par l'intégration dans une boucle en pas de temps de la relation 4.38. Les valeurs r_k et r'_k , sont tirées explicitement du pas de temps précédent et r'_k est évalué par son expression en différences finies:

$$r'_k{}^t = \frac{r_{k+1}^t - r_{k-1}^t}{2\delta\theta} \quad 4.40$$

$$r_k^{t+\delta t} = r_k^t + v_{r,k} \delta t = r_k^t + v_{n,k} \sqrt{1 + \left[\frac{r'_k{}^t}{r_k^t} \right]^2} \delta t \quad 4.41$$

La surfusion locale à chaque extrémité des directions k est calculée afin de déterminer la vitesse de croissance normale locale, $v_{n,k}$.

A partir des rayons au nouveau pas de temps, il est possible de déterminer quelles sont les cellules capturées par l'avance de l'interface solide-liquide.

Procédure de capture en 2D: Toutes les cellules encore liquides comprises dans le triangle défini par le centre du grain, C_i , et deux directions consécutives, $r_{k,i}$ et $r_{k+1,i}$, sont capturées.

Procédure de capture en 3D: En raison de la symétrie du problème, la procédure est similaire à celle utilisée en 2D. La différence est que toutes les cellules qui se trouvent à l'intérieur de la figure géométrique définie par la rotation du triangle $C_i r_{k,i} r_{k+1,i}$ autour de l'axe parallèle à l'axe z et passant par C_i sont capturées.

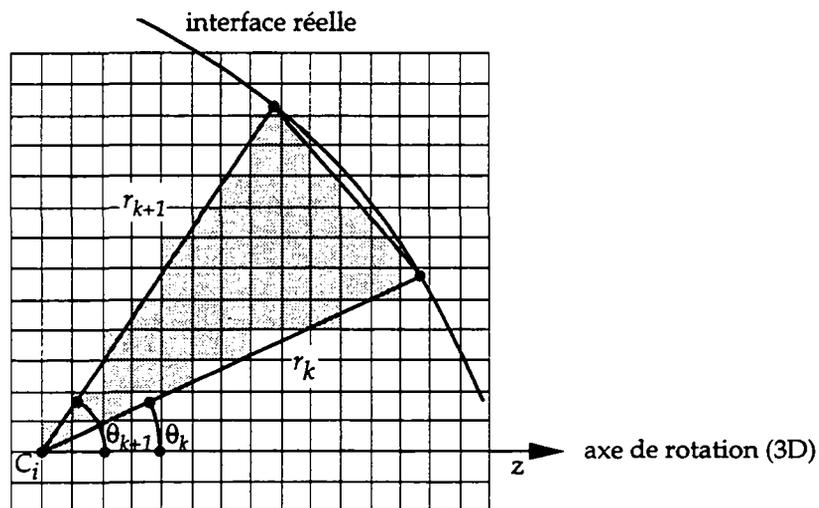


Figure 4.8 Procédure de capture des cellules. Toutes les cellules qui se trouvent à l'intérieur du triangle défini par le centre du grain, C_i , et deux directions de tir consécutives, r_k et r_{k+1} , sont capturées (2D). Ces cellules sont dessinées en grisé.

4.3.2 Représentation de la microstructure

La méthode utilisée pour obtenir une image de la microstructure est la même que celle définie pour la méthode cellulaire.

Penser c'est chercher des clairières dans une forêt.

J. Renard, *Journal*, 29 mars 1894.

5 RESULTATS

Les résultats expérimentaux et simulés sont présentés dans ce chapitre. Tout d'abord, les modèles numériques sont confrontés aux prédictions théoriques. Ensuite, les résultats obtenus pour la trempe de petits échantillons sont présentés avec la simulation de la solidification avec mouvement des grains. Dans une troisième partie, les résultats tant expérimentaux que simulés obtenus pour les fontes GS sont exposés. Pour finir, les résultats de refusion laser sont présentés en même temps que la croissance des grains dans un gradient thermique.

5.1 Validation des méthodes numériques

Un calcul a été réalisé avec la méthode cellulaire et un autre avec la méthode de tir, pour une germination instantanée et des grains immobiles, afin de permettre la comparaison avec les prédictions théoriques de *KJMA*, Meijering ou Gilbert. Pour les deux calculs, 1000 grains ont été placés simultanément dans un cube de 5 mm de côté; ils croissent tous à la même vitesse.

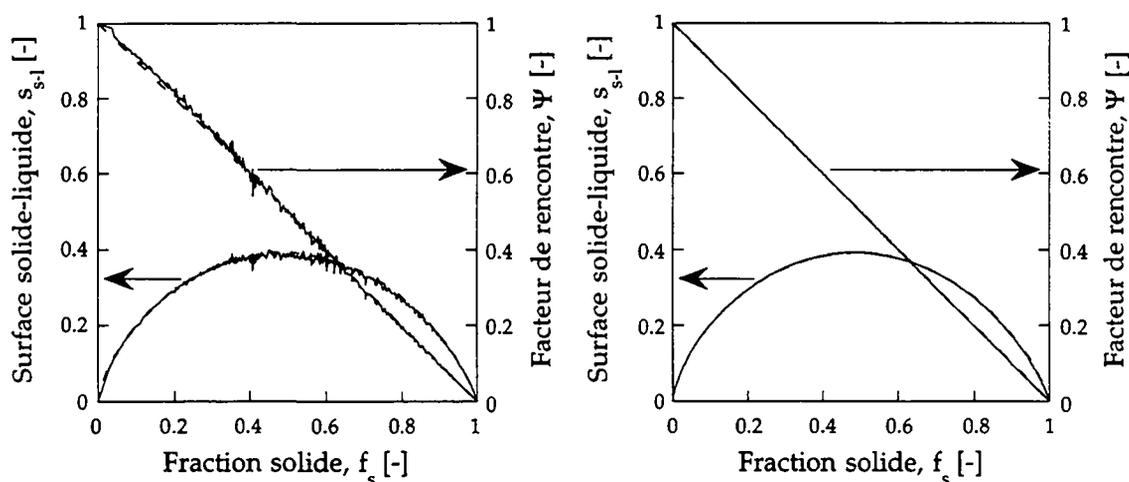


Figure 5.1 Comparaison des surfaces solide-liquide et des facteurs de rencontre prédits par le modèle *KJMA* (en traitillé) avec les résultats de la méthode cellulaire (gauche) et de la méthode de tir (droite).

La figure 5.1 montre la comparaison des facteurs de rencontre des grains et des surfaces solide-liquide normalisées en fonction de la fraction de solide. Dans les deux cas, les courbes prédites par les méthodes numériques sont quasiment superposées à celles du modèle théorique. Les courbes obtenues avec la méthode cellulaire sont caractérisées par des oscillations, qui sont la conséquence de la

nature discrète des cellules. La méthode de tir produit des courbes beaucoup plus lisses, car le calcul de l'augmentation de volume des grains de la microstructure étendue est exact et continu, seuls les éléments de surface capturés par la rencontre disparaissent de manière discrète.

Les distributions des volumes et du nombre de faces des grains ont également été calculées. Meijering prédit une valeur moyenne du nombre de voisins égale à 15.54 et Gilbert une variance de la distribution des volumes égale à $2.81 \cdot 10^{-21} \text{ m}^6$, pour ce cas. Ces valeurs sont très proches de celles obtenues par la simulation, qui sont respectivement de 15.4 et $2.74 \cdot 10^{-21} \text{ m}^6$.

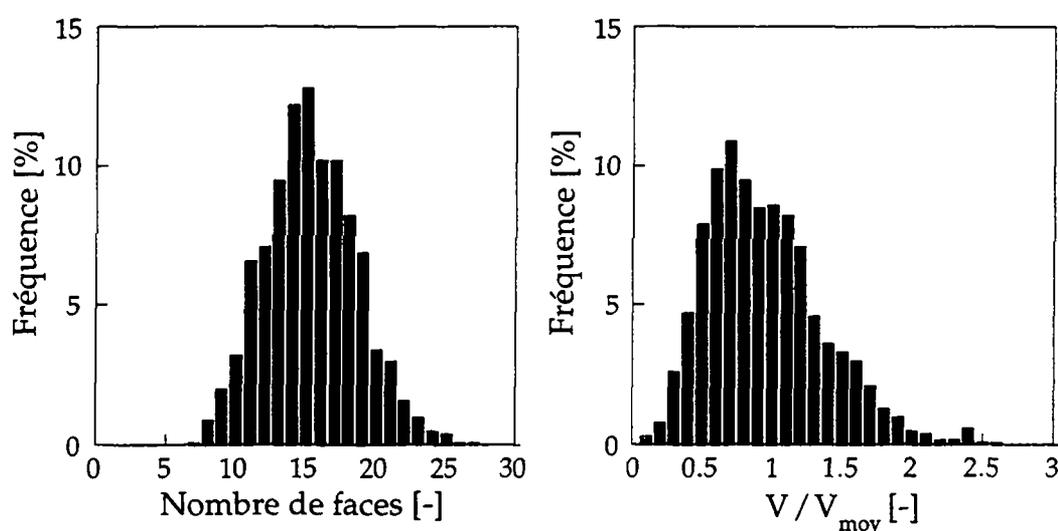


Figure 5.2 Distributions du nombre de faces (de voisins) et du volume normalisé des grains obtenues par la méthode cellulaire dans le cas d'une germination instantanée et d'une croissance à vitesse constante.

Ces trois comparaisons montrent que les deux méthodes numériques choisies décrivent correctement le processus de germination et de croissance des grains. L'intérêt principal de ces méthodes est qu'elles permettent de libérer une ou plusieurs des hypothèses indispensables à l'obtention des résultats analytiques. Dans un premier temps seront reportés les résultats obtenus lorsque les grains ont la possibilité de se déplacer mais sont sphériques et croissent tous à la même vitesse (grains eutectiques en thermique uniforme avec mouvement).

5.2 Grains avec mouvement

Dans cette section est étudiée l'influence d'un mouvement aléatoire ou d'un mouvement de sédimentation sur la microstructure, les courbes de refroidissement et divers paramètres stéréologiques. L'alliage considéré est un eutectique "normal".

5.2.1 Résultats expérimentaux

Les résultats de ce sous-chapitre sont tous obtenus par la trempe en cours de solidification d'un alliage eutectique de Pb-Sn brassé mécaniquement.

Déroulement qualitatif de la solidification

Le premier type de résultats qui sont obtenus est une analyse qualitative du déroulement de la solidification, qui met en évidence la rencontre des grains et la formation des amas. La figure 5.3 présente la micrographie d'un échantillon de Pb-Sn de composition eutectique trempé à environ 30% de fraction de solide.



Figure 5.3 Microstructure obtenue par la trempe d'un petit échantillon de Pb-Sn eutectique en cours de solidification (100x). L'interface solide-liquide des grains isolés est circulaire. Le globule primaire est visible au centre de certains grains. Une dendrite de la phase primaire (l'étain pour ce système, en clair sur les photographies) peut donner naissance à plusieurs grains.

Il est bien visible que les grains isolés sont proches de la forme sphérique. La formation d'un amas est également illustrée à la figure 5.4, bien que la fraction

volumique de solide soit encore très faible ($f_s = 30\%$). Il n'est donc pas possible, comme le font certains auteurs, de dissocier les étapes de germination, de croissance et de rencontre des grains. Ces trois étapes sont, au moins partiellement, simultanées. La portion d'interface solide-liquide d'un grain qui entre en contact avec un autre grain cesse immédiatement de croître, tandis que le reste de l'interface continue son avance dans le liquide.

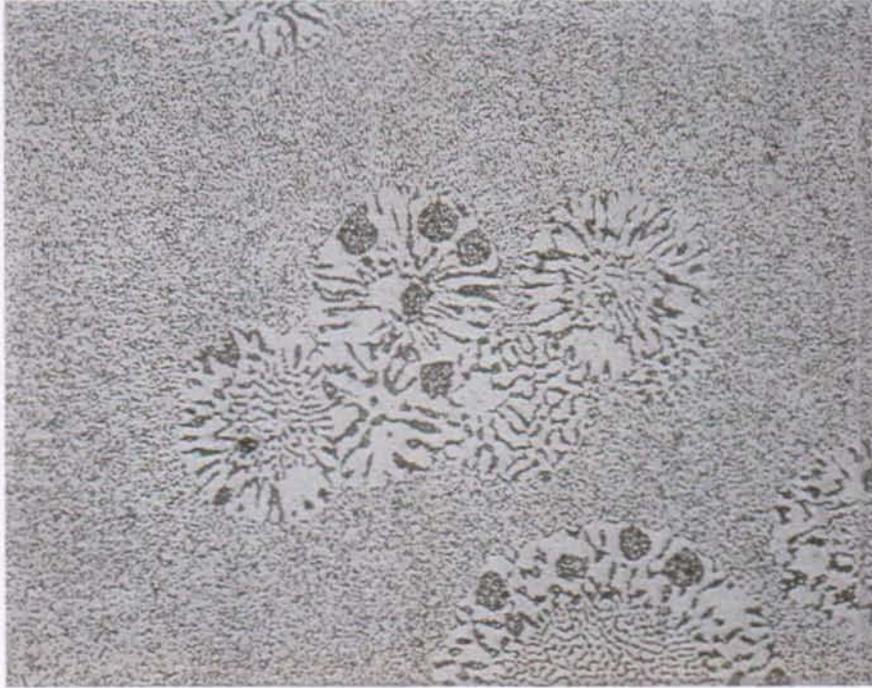


Figure 5.4 Amas formé par cinq grains (200x). Les grains restent sphériques, même aux jonctions triples grain 1-grain 2-liquide.

Aux joints de grains, aucune modification de l'espacement interlamellaire n'est détectable. Ceci signifie que la rencontre des couches de diffusion de deux grains est sans effet sur la microstructure, au moins pour les conditions de cet essai. Les joints de grains sont des hyperboles, comme le montre la figure 5.5 et le développement théorique de l'annexe 2. La forme des joints de grains pourrait permettre de remonter aux instants de germination des grains. Il faudrait pour cela que la solidification se déroule à surfusion constante, et que, pour chaque grain, la croissance de la phase primaire qui précède la croissance couplée eutectique soit négligeable ou parfaitement décrite. De plus, pour que la méthode soit précise, les interfaces entre les grains ainsi que la position des centres de germination devraient être connues pour un grand nombre de grains.

Cet ensemble de conditions rend la réalisation pratique d'une telle démarche peu réaliste. Elle pourrait s'appliquer avec plus de facilité au cas de la recristallisation de verres métalliques. Dans ce cas, la germination est immédiatement suivie de la croissance du cristal et la recristallisation peut se dérouler à température

imposée. Il ne resterait plus qu'à réaliser une série de coupes à travers un échantillon pour remonter à la forme tridimensionnelle des joints de grains et, par là, aux instants de germination.

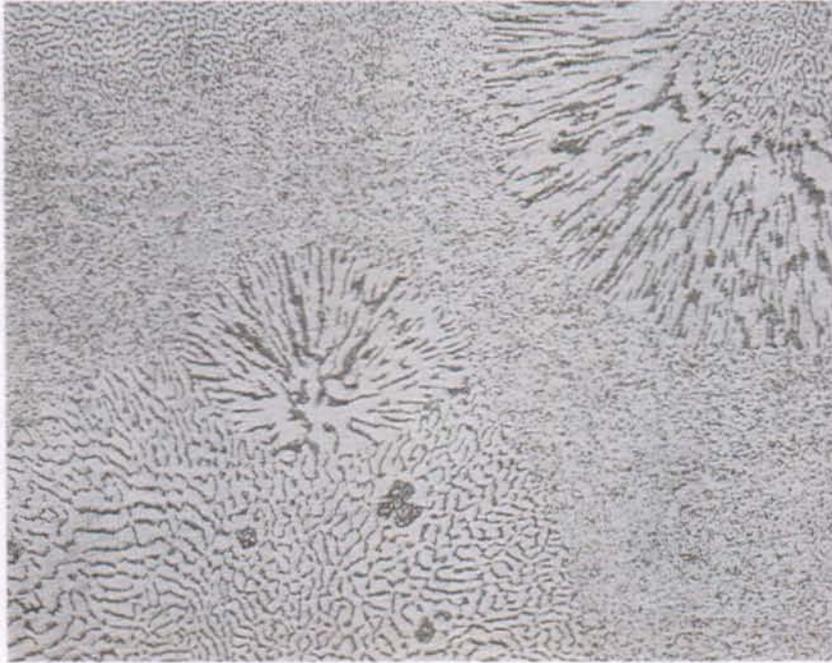


Figure 5.5 Joint de grain hyperbolique (200x).

De la figure 5.3, il apparaît que la solidification eutectique équiaxe est précédée de la croissance d'une phase primaire sous forme de globule (ici l'étain, en clair sur les photographies). Dans certains cas, la phase primaire se développe sous forme de dendrites, une dendrite pouvant donner naissance à plusieurs grains eutectiques.

Evolution de la surface solide-liquide

Sur six échantillons trempés à différentes fractions de solide, la surface solide-liquide et la densité de grains ont été mesurées. Des mesures de la densité de grains à différentes fractions de solide, il apparaît que le procédé est peu reproductible, du moins du point de vue de la germination: la densité de grains varie d'un facteur 50! Ceci est dû à l'absence d'un inoculant pour cet alliage, qui rend la germination très dépendante des fluctuations expérimentales (brassage, interaction brasseur-thermocouple, etc.). D'autre part, il a été montré par Elliott (1983, p. 85) qu'une composition légèrement hypoeutectique favorise grandement la croissance équiaxe aux dépens de la croissance colonnaire. Il est donc possible que de légères différences de composition moyenne entre les différents échantillons soient à l'origine de ces grandes différences de densité de grains.

f_s	S_V [m^{-1}]	N_V [m^{-3}]	s_{s-l} [-]
0.13	2475	$2.3 \cdot 10^{10}$	0.15
0.36	9166	$1.1 \cdot 10^{11}$	0.33
0.52	4043	$3.9 \cdot 10^9$	0.43
0.55	3771	$2.2 \cdot 10^9$	0.34
0.62	8560	$7.4 \cdot 10^{10}$	0.49
0.86	2263	$8.1 \cdot 10^9$	0.19

Tableau 5.1 Mesure de la surface solide-liquide et de la densité de grains à différentes fractions de solide sur des échantillons de Pb-Sn eutectique trempés en cours de solidification.

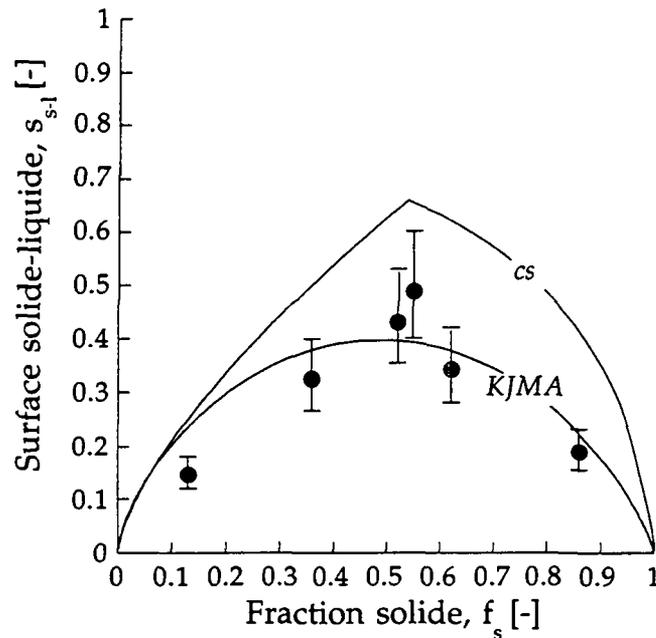


Figure 5.6 Mesures expérimentales de la surface solide-liquide normalisée avec estimation des erreurs de mesure comparées aux résultats des modèles *KJMA* et empilement cubique simple.

L'erreur sur les mesures de la surface solide-liquide normalisée, s_{s-l} , a été considérée comme la somme de deux contributions. La première vient de la mesure de la densité surfacique de grains. En effet, sur une image à faible grossissement, il est parfois malaisé de distinguer les joints de grains. N_V est donc soumise à une erreur importante, estimée à 20%. La seconde vient de la mesure de l'aire de l'interface solide-liquide. La frontière entre le solide et le liquide est beaucoup mieux marquée que les joints de grains, l'erreur sur S_V est donc estimée à 10%. L'erreur sur l'estimation de la fraction de solide est négligée. Les barres d'erreur reportées sur le graphique 5.6 correspondent aux minima et maxima obtenus en cumulant les deux erreurs. Ces barres d'erreurs sont très

importantes et rendent difficile la comparaison avec les résultats théoriques. Néanmoins, il faut remarquer que la plupart des points se trouvent en-dessous de la courbe de *KJMA*. Ceci tend à montrer que l'interaction, dans ce cas, est plutôt de type attractif. Ceci paraît conforme au dispositif expérimental qui, par le brassage, multiplie les contacts entre les grains. Les grains ont tendance à se coller les uns aux autres davantage que dans le cas d'une germination aléatoire et croissance immobile. D'autre part, dès qu'un amas se fixe aux parois du creuset ou au thermocouple, il agit comme un filet pour les autres grains et amas et les bloque.

5.2.2 Résultats de la simulation

La simulation n'a pas été réalisée pour l'alliage Pb-Sn de la partie expérimentale. C'est la fonte grise utilisée par Zou (1988) pour sa thèse de doctorat qui a fourni les données thermophysiques. Cet alliage a été choisi parce que Zou a déterminé les paramètres de germination et de croissance. Il est ainsi possible de disposer de valeurs réalistes. Cependant, le but des calculs qui suivent est de décrire qualitativement l'influence du mouvement des grains sur la solidification plutôt que de coller exactement à une situation pratique.

Température eutectique	T_e	=	1154	°C
Chaleur latente	L	=	$1.44 \cdot 10^9$	Jm ⁻³
Chaleur spécifique	ρc_p	=	$6.37 \cdot 10^6$	Jm ⁻³ K ⁻¹
Constante de Jackson et Hunt	A	=	$4 \cdot 10^{-8}$	mK ⁻² s ⁻¹
Paramètres des lois de germination	n_{max}	=	$6 \cdot 10^{10}$	m ⁻³
	ΔT_n	=	19.5	°C
	ΔT_σ	=	5	°C
	I_0	=	$7.4 \cdot 10^6$	m ⁻³ s ⁻¹
Constante de la loi de Stokes	C_{st}	=	200	m ⁻¹ s ⁻¹
Rapport surface/volume	S/V	=	500	m ⁻¹
Flux de chaleur	Q	=	-3000	Wm ⁻²

Tableau 5.2 Liste des paramètres thermo-physiques utilisés pour la simulation de la solidification eutectique avec mouvement des grains.

Six calculs ont été réalisés afin de mettre en évidence l'influence sur différentes variables du mouvement des grains pendant la solidification. Les paramètres utilisés pour ces différents cas sont rassemblés dans le tableau 5.3.

Le cas A est celui d'un mouvement aléatoire avec interaction attractive, le cas B celui de grains immobiles, le cas C celui d'un mouvement aléatoire avec interaction faiblement répulsive et le cas D celui d'un mouvement aléatoire avec une interaction fortement répulsive. Pour ces quatre cas, la germination est

donnée par une loi gaussienne (voir tableau 5.2) et la cinétique de croissance est reprise du travail de Zou. Les cas E et F représentent le cas de la sédimentation. Le mouvement des grains est aléatoire dans le plan xy , perpendiculaire à la gravité et suit la loi de Stokes dans la direction de chute selon l'axe z . L'interaction est de type attractif: les grains sont collés les uns aux autres au fond du creuset par la chute. La germination est décrite pour le cas E par la même distribution gaussienne que celle des cas A à D et pour le cas F par un taux de germination constant, I_0 , choisi de manière à produire une densité de grains finale égale à celle générée par la loi gaussienne.

Cas	A	B	C	D	E	F
mouvement	aléatoire	aucun	aléatoire		sédimentation	
interaction	attractive	aucune	faiblement répulsive ($\alpha = 1$)	fortement répulsive ($\alpha = 2$)	attractive	attractive
germination	gaussienne					taux cst
$l_x/\delta l_x$ [mm]	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	4 / 0.5	4 / 0.5
$l_y/\delta l_y$ [mm]	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	4 / 0.5	4 / 0.5
$l_z/\delta l_z$ [mm]	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	6 / 0.6	8 / 1	8 / 1
v_{mot} [$\mu\text{m/s}$]	40	0	40	40	3	3
N_{pdt}	1500	1500	1500	1500	1500	1500
N_{dir}	412	412	412	412	412	412
δt [s]	1	1	1	1	1	1

Tableau 5.3 Valeurs des différents paramètres utilisés pour les calculs de la solidification eutectique équiaxe avec mouvement des grains. Les paramètres $l_x/\delta l_x$, $l_y/\delta l_y$, $l_z/\delta l_z$ se réfèrent à la figure 4.3, N_{pdt} est le nombre de pas de temps et δt le pas de temps.

Translation aléatoire

Microstructures

Les coupes bidimensionnelles des microstructures tridimensionnelles simulées sont représentées à la figure 5.7 pour différentes fractions de solide. La comparaison des microstructures finales permet de constater une évolution de la régularité des microstructures depuis le cas A jusqu'au cas D. Les grains de la microstructure D sont visiblement plus réguliers en taille et en nombre de faces que ceux de la microstructure A.

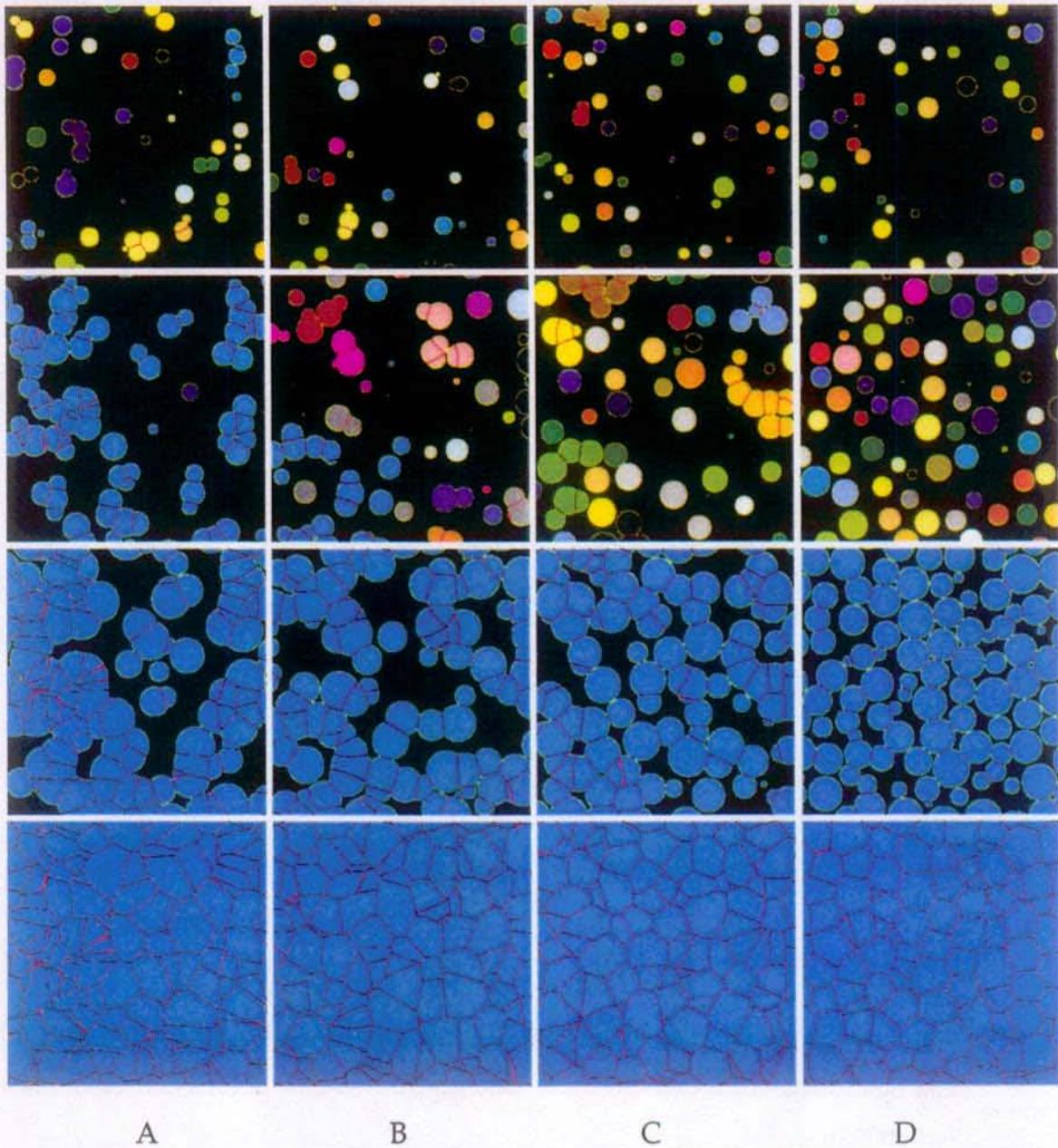


Figure 5.7 Coupes bidimensionnelles à travers les microstructures tridimensionnelles simulées pour les cas A-D, aux fractions de solide $f_s = 0.1, 0.3, 0.7$ et 1 . Tous les grains d'une même couleur appartiennent au même amas en 3D.

Le nombre de grains isolés est également une fonction de l'interaction. Plus l'interaction est répulsive, plus le nombre de grains isolés est élevé. Ceci se vérifie sur les microstructures à 30 % de fraction de solide, où tous les grains de la microstructure D sont encore libres alors que ceux des autres cas ont souvent au moins un voisin. Cet effet est mis en évidence sur la figure 5.8, où la fraction de grains isolés, N_{isol}/N_g^{tot} , a été représentée en fonction de la fraction de solide. Les résultats des calculs A à D sont comparés avec les prédictions théoriques du modèle de *KJMA* (i), de l'empilement cubique simple (*cs*) (ii), de l'empilement cubique à faces centrées (*cfc*) (iii) et du cas sans rencontre (iv). Il est à noter que,

dans le cas de l'interaction fortement répulsive, les grains restent isolés jusqu'à une fraction de solide d'environ 0.58. Ce résultat est proche de celui de Vivès (1992), qui a mesuré, au cours d'une expérience de brassage électromagnétique d'un alliage d'aluminium de microstructure globulitique, que le mouvement du liquide est brusquement stoppé à une fraction de solide proche de 0.6. Ce point correspond à l'instant où tous les grains sont en contact et forment un squelette cohérent qui bloque leur mouvement.

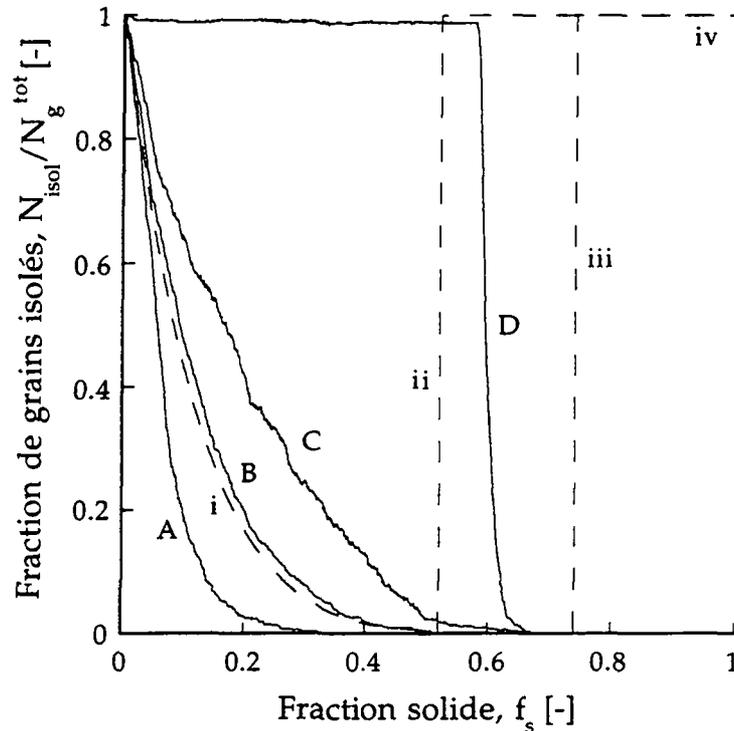


Figure 5.8 Fraction de grains isolés en fonction de la fraction de solide pour les cas A-D, comparée aux prédictions du modèle *KJMA* (i), empilement *cs* (ii), empilement *cfc* (iii) et sans rencontre (iv).

Le cas B, grains immobiles, est très proche du modèle de *KJMA*; ceci n'est pas surprenant et montre que la germination non instantanée n'a que peu d'effet sur la fraction de grains isolés. Le taux de grains isolés à une fraction de solide de 0.2 n'est que d'environ 20% pour ce cas-là, et tous les grains sont liés à une fraction solide proche de 0.5. Ceci montre que la division de la solidification en plusieurs étapes:

1. germination,
2. croissance sans rencontre,
3. croissance avec rencontre,

définie par certains auteurs (Rappaz (1989), Ni *et al* (1990), Walker et Bradley (1993)), ne peut se concevoir que si les grains ont la possibilité de se réarranger au cours de la solidification. Dans le cas de grains immobiles et répartis

aléatoirement dans l'espace, la rencontre des grains commence dès la germination. La solidification est donc, dès le début, un phénomène couplé de germination-croissance-rencontre. Il faut cependant reconnaître que, sur une courbe $f_s = f_s(t)$, l'effet de la rencontre des grains n'est sensible qu'à partir d'une fraction solide voisine de 30 %. La différence entre la fraction de solide de la microstructure étendue et celle de la microstructure réelle est alors voisine de 0.05 en valeur absolue.

La figure 5.9 montre les distributions de volume des grains obtenues en fin de solidification pour les cas A à D. La tendance annoncée par l'observation des microstructures simulées trouve sa confirmation ici: plus l'interaction est répulsive, plus les distributions sont étroites, donc plus les microstructures sont régulières. Ceci montre également que les distributions de volume sont dictées plus par la rencontre des grains que par leur instant de germination, en tout cas pour la loi de germination choisie ici.

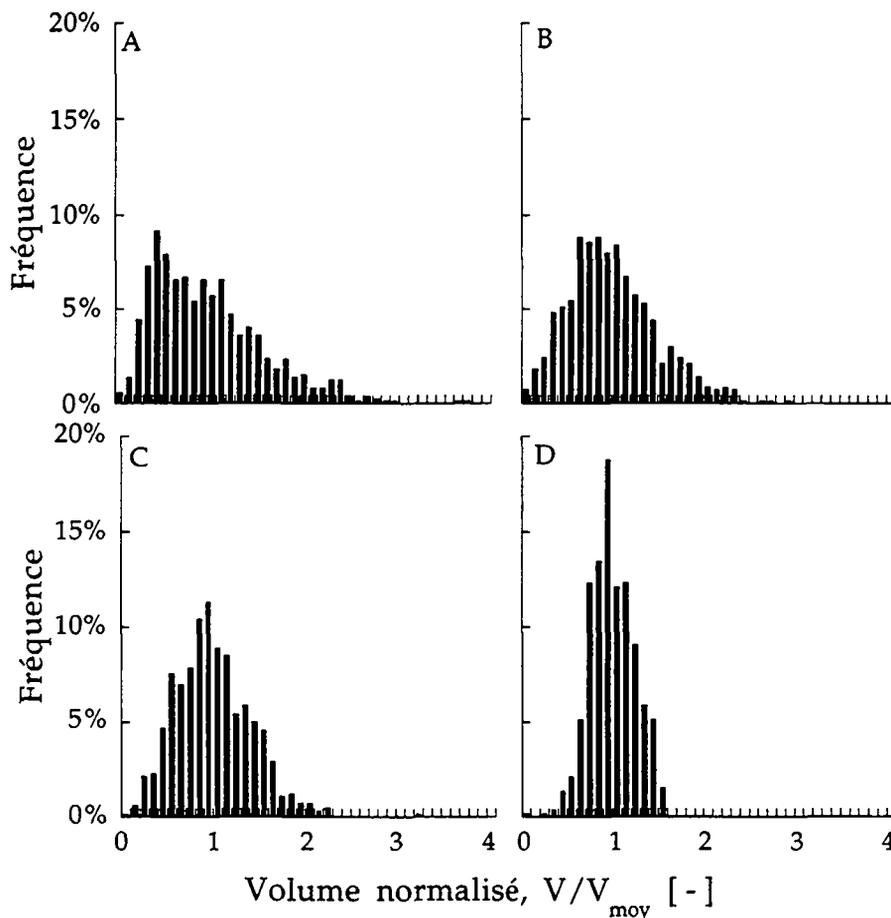


Figure 5.9 Distributions finales des volumes des grains des cas A-D.

Surfaces solide-liquide, facteur de rencontre

Les surfaces solide-liquide ainsi que les facteurs de rencontre calculés pour les cas A à D sont tracés à la figure 5.10. Ils sont également mis en parallèle avec les résultats des modèles théoriques des cas (i)-(iv). La surface solide-liquide normalisée ainsi que le facteur de rencontre sont fortement dépendants du mouvement des grains. Le cas B, sans mouvement, est à nouveau très proche du modèle de *KJMA*.

Le cas de l'interaction faiblement répulsive se situe entre le cas de *KJMA* et l'empilement *cs* alors que le cas de l'interaction fortement répulsive est entre l'empilement *cs* et l'empilement *cf*. A l'opposé, la courbe de l'interaction attractive se situe entre l'axe horizontal et le modèle de *KJMA*. L'axe horizontal représente la limite inférieure et la courbe pour l'arrangement *cf* la limite supérieure du domaine possible pour les courbes de surface solide-liquide ou de facteur de rencontre. Une courbe pourrait se superposer à l'axe horizontal dans le cas où les grains s'aggloméreraient immédiatement après la germination en un point précis.

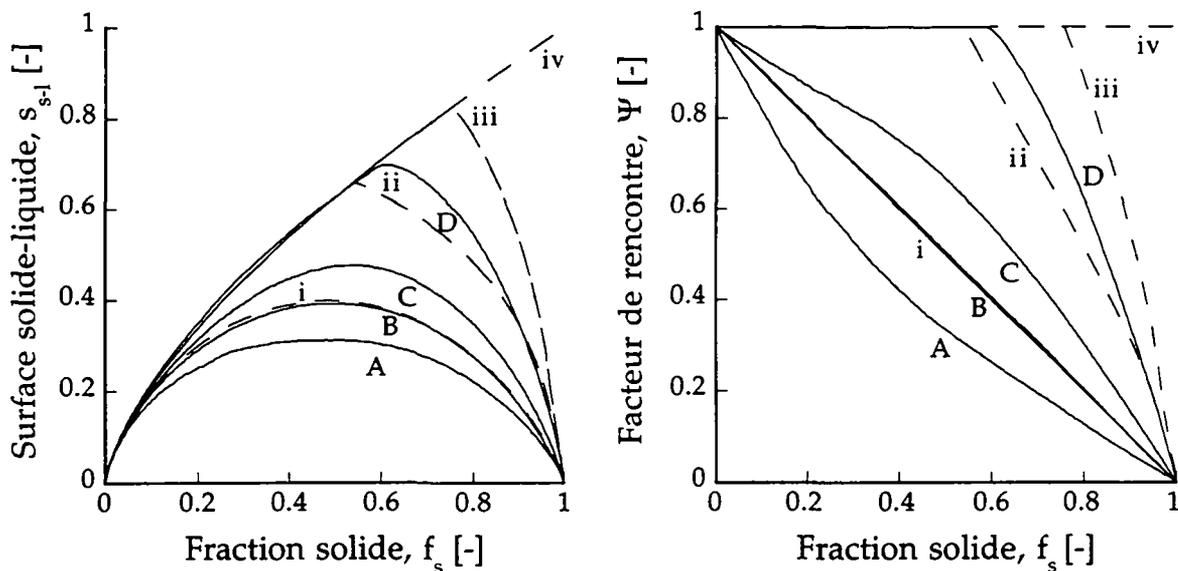


Figure 5.10 Evolution de la surface solide-liquide normalisée et du facteur de rencontre des grains pour les quatre cas A-D. Les courbes (i)-(iv) correspondent au modèle de *KJMA*, à l'empilement *cs*, à l'empilement *cf*, et au cas sans rencontre.

La relation simple de Hillert (éq. 2.53), $\Psi = (1 - f_s)^q$, ne permet pas de décrire le changement de pente brusque observé sur la courbe D. Même les courbes A et C ne peuvent être décrites précisément par une telle relation.

Courbes de refroidissement

Les surfusions sont directement liées à l'évolution de la surface solide-liquide. En effet, pour une solidification eutectique réalisée sous des conditions de flux constant, il est aisé de montrer que le terme $\rho c_p dT/dt$ du bilan thermique (éq. 2.61) est faible comparé au terme df_s/dt . Il en résulte que le terme df_s/dt est à peu près constant. Or df_s/dt est proportionnel au produit de la surface solide-liquide et de la vitesse de croissance, qui est elle-même proportionnelle au carré de la surfusion. Ainsi, une diminution de la surface de contact solide-liquide provoque une augmentation de la surfusion. Cet effet est confirmé par la figure 5.11 qui met en évidence une augmentation de la surfusion à mesure que l'interaction devient plus attractive, donc que la surface solide-liquide diminue.

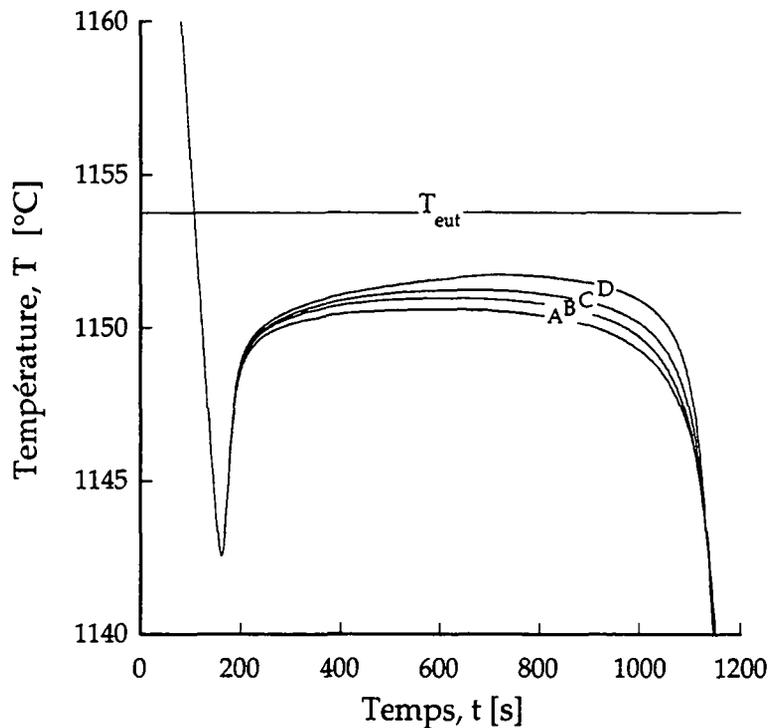


Figure 5.11 Courbes de refroidissement simulées pour les cas A-D.

Des différences de surfusion influencent directement la microstructure. L'espacement interlamellaire est, par exemple, une fonction de la surfusion: $\lambda = B/\Delta T$. Pour certains alliages, la limite élastique est liée à l'espacement interlamellaire (Thompson *et al* (1973)). Il est même imaginable qu'une surfusion plus élevée puisse induire une transformation de phase, transition fonte grise - fonte blanche par exemple, en fin de solidification. Il convient de noter que, pour un flux plus élevé (en valeur absolue) que le flux imposé ici, la surfusion augmente et les différences observées entre les différents cas A-D s'accroissent.

Relation entre densité de grains surfacique, N_A , et densité de grains volumique, N_V , en fonction de la fraction de solide, f_s .

La densité de grains surfacique a été déterminée par une moyenne sur 10 plans parallèles et équidistants. Ce calcul a été effectué pour 10 fractions de solide comprises entre 0.1 et 1, pour les quatre cas A-D ainsi que pour un cas supplémentaire: germination instantanée, sans mouvement des grains. Pour toutes les fractions de solide, le facteur C de la relation:

$$N_V = CN_A^{3/2}$$

a été calculé (voir section 2.6).

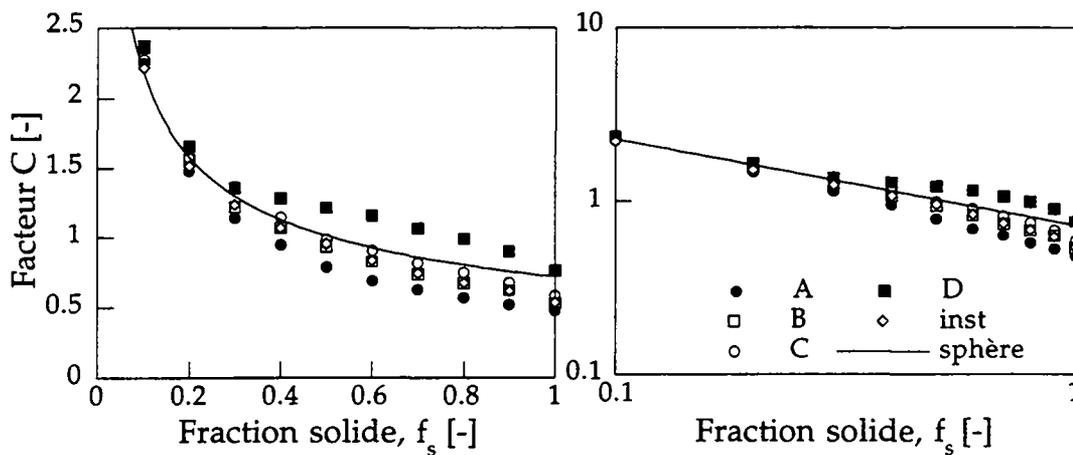


Figure 5.12 Evolution du facteur C en fonction de la fraction de solide pour les quatre cas A-D, pour un cas de germination instantanée sans mouvement (inst) et pour le cas théorique d'une sphère. Le graphique de droite est le même que celui de gauche, avec des échelles logarithmiques.

Les points résultant de la simulation sont confrontés au cas stéréologique qui considère un grain moyen sphérique:

$$N_V = \sqrt{\frac{\pi}{6f_s}} N_A^{3/2} \quad 5.1$$

Les courbes $C = C(f_s)$ sont fortement influencées par le mouvement des grains. Plus l'interaction est répulsive, plus C est élevé. Ceci signifie que plus la microstructure est désordonnée, plus le nombre de grains par unité de surface, à densité volumique fixée, est élevé. Il est également intéressant de constater que, même pour le cas sans mouvement, C n'est pas une fonction linéaire de $f_s^{-1/2}$. Cette dépendance n'est exacte que dans le cas où la sphéricité des grains est indépendante de la fraction de solide. Ceci est vrai dans le cas stéréologique, tableau 2.4, mais pas dans le cas d'une microstructure de solidification. Au tout

début de la solidification, le pourcentage de grains sphériques est élevé, mais il diminue rapidement au cours de la solidification. En fin de solidification, les grains sont des polyèdres à volume et nombre de faces très dispersés. Le tableau 5.4 donne les valeurs du coefficient C en fin de solidification pour les cas étudiés. La différence entre le cas A et le cas D est de plus de 50%. Le cas D donne un résultat très proche du modèle stéréologique basé sur une sphère moyenne ($C = 0.724$), ce qui est dû au fait que les grains sont parfaitement sphériques jusqu'à près de 60% de fraction de solide (début de la rencontre) et que la distribution de taille est peu dispersée en fin de solidification. Le résultat obtenu pour une germination instantanée est très proche du résultat théorique de Meijering et très proche du cas B.

cas	A	B	C	D	inst	Meijering	sphère
C	0.481	0.535	0.586	0.762	0.537	0.568	0.724

Tableau 5.4 Valeur en fin de solidification du coefficient C de la relation $N_V = CN_A^{3/2}$, pour les cas A-D, pour un essai de germination instantanée sans mouvement, résultat théorique obtenu par Meijering (éq. 2.68) dans cette même situation et résultat stéréologique pour des grains sphériques.

De la détermination expérimentale du type d'interaction

La mesure expérimentale de la surface solide-liquide est aisée mais soumise à une grande erreur expérimentale, comme l'a montré la section 5.2.1. Une autre quantité qui est facilement mesurable, mais moins sujette aux incertitudes, est la fraction de grains isolés dans une coupe bidimensionnelle à travers la microstructure tridimensionnelle. Ce taux, tx_{isol} , est donné pour la situation de *KJMA* par le système 5.2-5.4 (voir annexe 1):

$$tx_{isol} = \frac{1}{r} \int_0^r \exp[-nV_{out}] dh \tag{5.2}$$

$$V_{out} = 2\pi (\sqrt{r^2 - h^2} [\frac{1}{3}h^2 + \frac{2}{3}r^2] + hr^2[\pi - \arccos(\frac{h}{r})]) \tag{5.3}$$

$$f_s = 1 - \exp[-n\frac{4}{3}\pi r^3] \tag{5.4}$$

où n désigne la densité de grains, r le rayon des grains et h la distance entre le centre d'un grain et le plan de coupe.

La figure 5.13 représente la courbe théorique produite par la résolution du système d'équations 5.2-5.4 ainsi que les valeurs mesurées pour les cas A-D. La mesure a été réalisée sur 10 plans parallèles et équidistants.

Il apparaît de la figure 5.13 que le taux de grains isolés est très fortement dépendant du type d'interaction. Ainsi, à 30% de fraction de solide, le taux de grains isolés est de 12% pour l'interaction attractive, de 42% pour le modèle de *KJMA*, de 100% pour l'interaction fortement répulsive. Pour autant que la germination puisse être considérée comme instantanée, et que tous les grains croissent à la même vitesse, un test simple pour déterminer le type d'interaction est de mesurer le taux de grains isolés à une fraction de solide voisine de 30%. Un taux de grains isolés supérieur à 42% indique une interaction répulsive alors qu'un taux de grains isolés inférieur indique une interaction attractive.

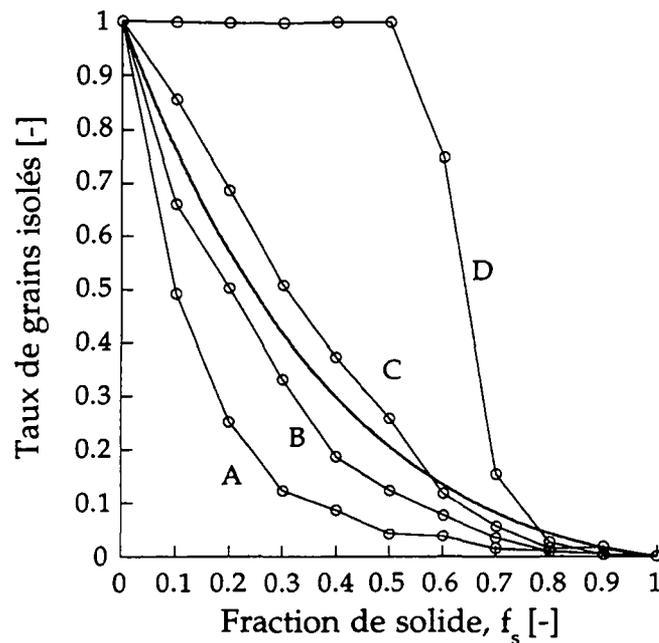


Figure 5.13 Taux de grains isolés sur une coupe bidimensionnelle à travers la microstructure tridimensionnelle. Les résultats obtenus pour les quatre cas A-D sont comparés au résultat théorique de la situation *KJMA* (en gras).

Cette méthode a l'avantage de ne nécessiter aucune conversion pour passer d'une mesure 2D à une valeur 3D et ne fait aucune hypothèse sur la forme finale des grains. De plus, elle est beaucoup plus simple que la méthode proposée par Gokhale (1984), qui passe par la détermination de la fraction transformée, V_V , de la surface de l'interface solide-liquide par volume unitaire, S_V , et de la longueur de ligne triple solide-solide-liquide par volume unitaire, L_V :

$$L_V > \frac{\pi}{8} \frac{S_V^2}{1 - V_V} \quad \Rightarrow \quad \text{interaction attractive} \quad 5.5a$$

$$L_V < \frac{\pi}{8} \frac{S_V^2}{1 - V_V} \quad \Rightarrow \quad \text{interaction répulsive} \quad 5.5b$$

La méthode de Gokhale présente l'avantage de s'appliquer à un échantillon complètement transformé, alors que la méthode basée sur le taux de grains isolés nécessite la trempe de l'échantillon à une fraction de solide voisine de 30 %.

Sédimentation

Pour la sédimentation, le terme C_{st} de la relation 4.29 a été choisi arbitrairement, de manière à produire un temps de chute voisin du temps de solidification. A part la loi de germination pour le cas F, tous les paramètres thermo-physiques sont les mêmes que pour les simulations A-D. Le creuset n'est plus un cube, comme dans le cas du mouvement aléatoire, mais un parallélépipède à base carrée. La grande arête du parallélépipède est parallèle à la direction de chute des grains.

Microstructures

Les micrographies simulées à différentes fractions de solide pour les cas E et F sont représentées à la figure 5.14. Il s'agit de coupes parallèles à la direction de chute. Dans le cas E, la germination est stoppée après 1 % de fraction de solide. Les grains continuent alors à se développer tout en chutant, jusqu'à ce qu'ils soient bloqués par le fond du creuset. A une fraction solide de 0.7, la partie supérieure du lingot est exempte de grains. Cette zone, nettoyée de ses germes par la sédimentation, n'est solidifiée que par la croissance vers le haut des grains tombés, qui développent ainsi une zone d'aspect colonnaire. L'effet de la disparition des germes par la sédimentation a été observé expérimentalement par Weinberg (1984) et par Ohno (1987) dans les cas respectifs de dendrites d'étain et d'aluminium.

Le cas F, caractérisé par un taux de germination constant, produit une microstructure très différente. Des grains germent continûment dans le liquide résiduel, amenant une densité de grain uniforme sur tout l'échantillon. Comme les instants de germination de deux grains voisins peuvent être très différents, les interfaces sont très incurvées (annexe 2). Dans une coupe, un grain peut même apparaître encapsulé dans un autre. Cette situation se produit lorsqu'un plan de coupe sectionne l'hyperboloïde de révolution du joint de grain très près de son sommet.

La figure 5.15 montre l'évolution de la microstructure finale, du pied de l'échantillon à la surface. Dans le cas d'une germination quasiment instantanée (E), la densité décroît du pied vers le haut de l'échantillon alors qu'elle est à peu près constante dans le cas de la germination à taux constant (F).

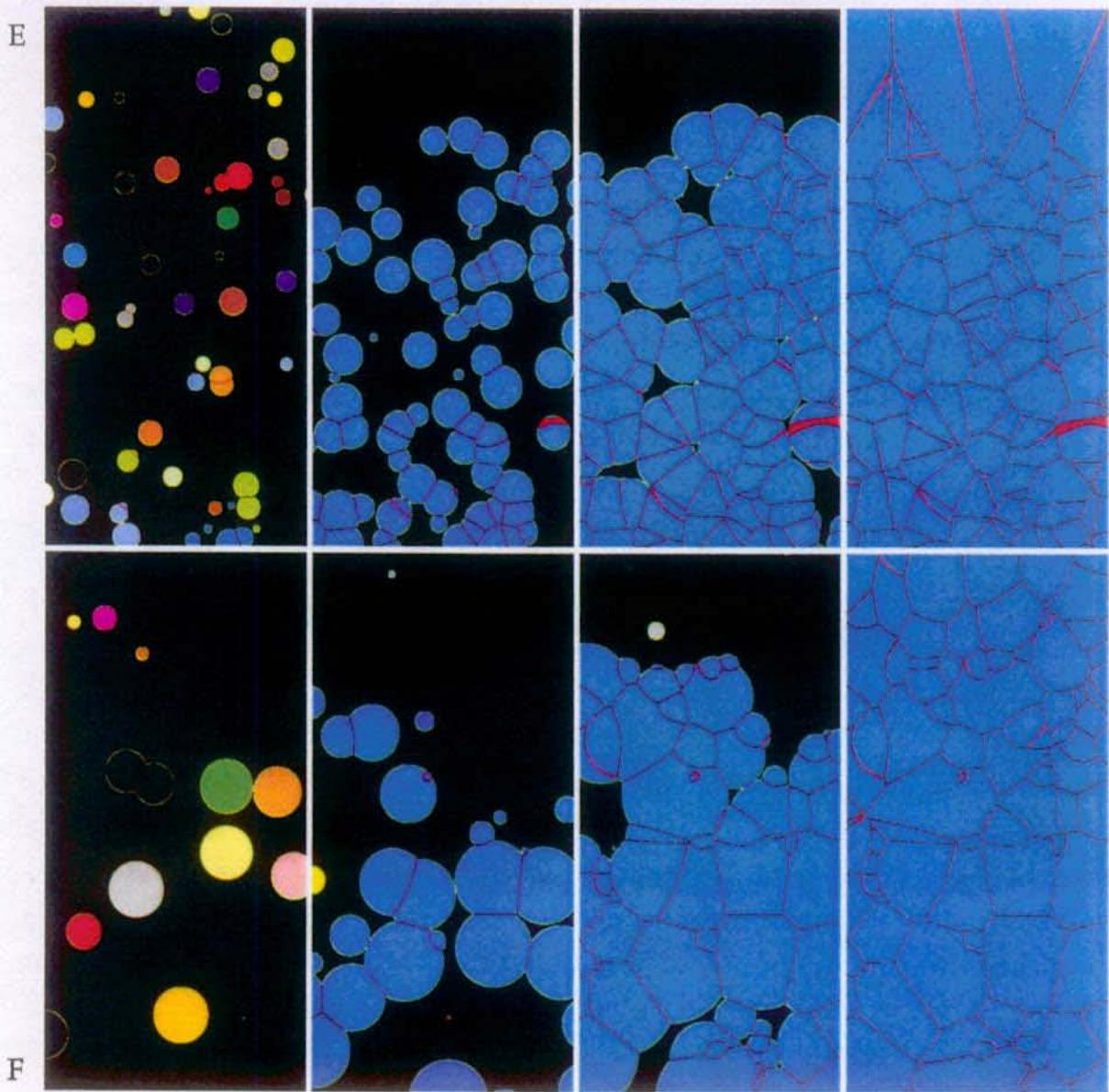


Figure 5.14 Microstructures simulées pour les cas E et F aux fractions de solide $f_s = 0.1, 0.3, 0.7$ et 1 .
Le plan de coupe est parallèle à la direction de chute.

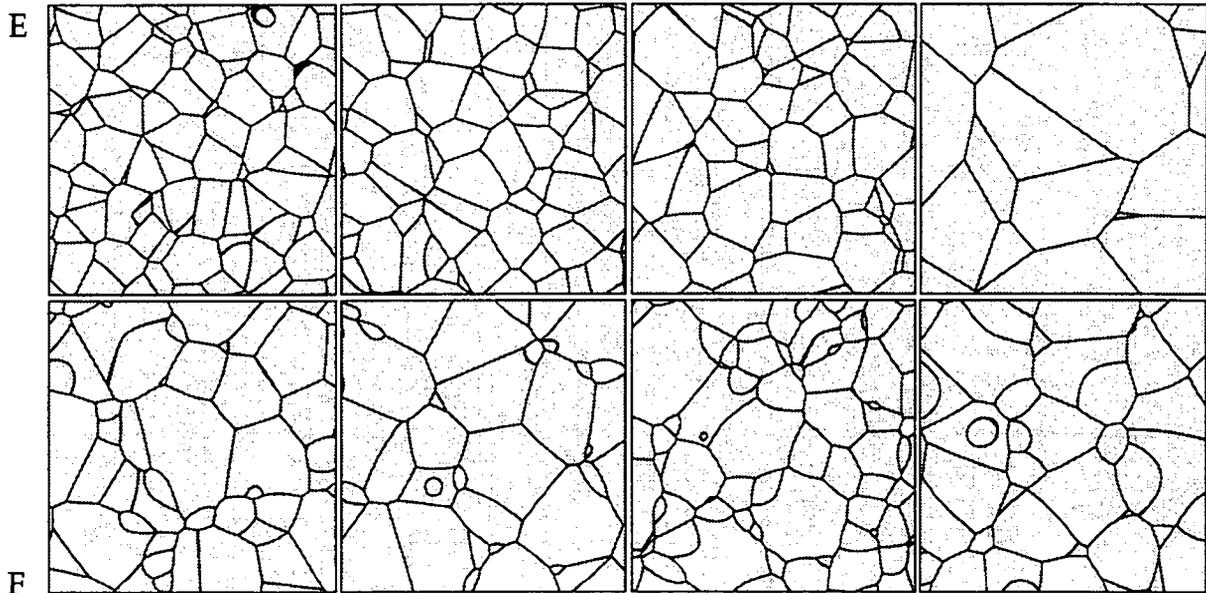


Figure 5.15 Coupes perpendiculaires à la direction de chute des grains, à différentes hauteurs du lingot (0%, 35%, 70% et 100% de la hauteur totale) pour les cas E et F. La densité de grains est régulière dans le cas F ($2.95 \cdot 10^6$, $2.99 \cdot 10^6$, $5.95 \cdot 10^6$, $3.14 \cdot 10^6$ [m^{-2}]) alors qu'elle décroît vers le haut du lingot pour le cas E ($5.88 \cdot 10^6$, $4.46 \cdot 10^6$, $4.29 \cdot 10^6$, $1.28 \cdot 10^6$ [m^{-2}]).

Surface solide-liquide, facteur de rencontre

Les courbes de surface solide-liquide ainsi que de facteur de rencontre sont présentés à la figure 5.16 pour les cas E et F. A nouveau les courbes des modèles (i)-(iv) sont tracées pour permettre la comparaison. Les courbes de surface solide-liquide sont en-dessous du modèle de *KJMA*, parce que la sédimentation plaque les grains vers le fond du creuset et réduit ainsi la surface solide-liquide. Dans le cas E, la surface est très faible dans l'intervalle de fraction solide 0.8-1. Cette surface correspond à la surface du front "colonnaire" de croissance, qui est à peu près égale à la surface de la face supérieure du creuset. Dans le cas F, la surface est plus petite que dans le cas E, en raison de la normalisation qui se fait par rapport au nombre final de grains et non par rapport au nombre de grains présents à l'instant t .

Le facteur de rencontre suit, au départ, le modèle de *KJMA*, tant que l'effet de la sédimentation ne se fait pas sentir. Sa valeur descend ensuite rapidement vers une valeur proche de zéro, au moment où le front "colonnaire" se forme. Les facteurs de rencontre des cas E et F sont quasiment superposés; ce qui confirme que le facteur de rencontre dépend principalement de l'arrangement des grains mais est quasiment indépendant de la loi de germination.

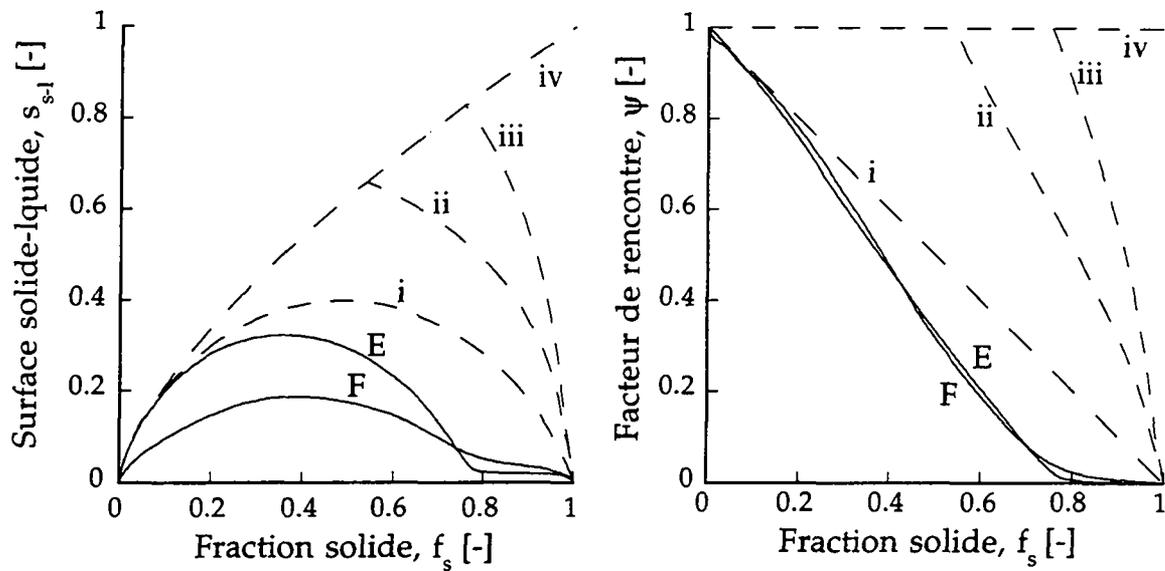


Figure 5.16 Evolution de la surface solide-liquide normalisée et du facteur de rencontre pour les cas E et F. Les résultats des modèles théoriques de *KJMA* (i), empilement *cs* (ii), empilement *cfc* (iii) et sans rencontre (iv) sont également tracés.

Courbes de refroidissement

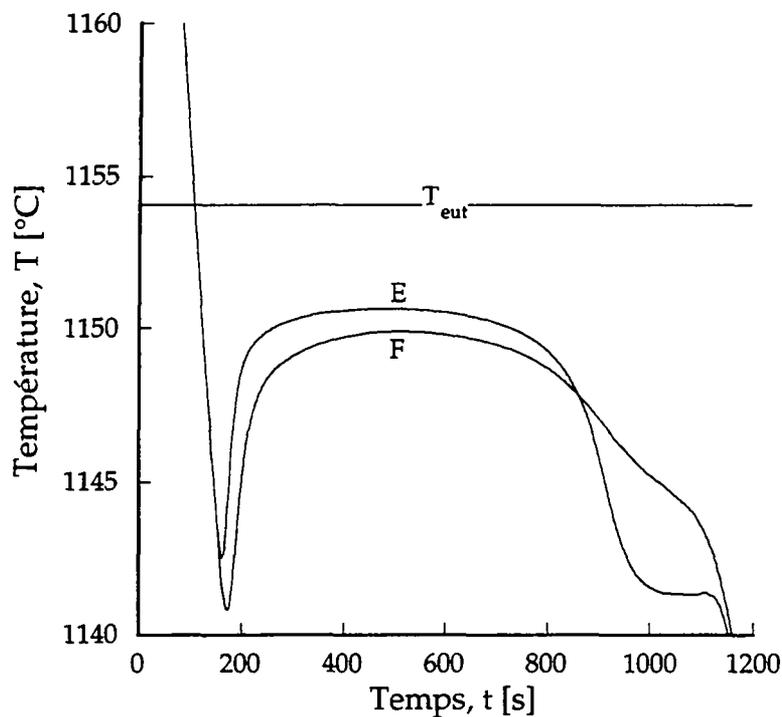


Figure 5.17 Courbes de refroidissement simulées pour les cas E et F.

La forme très particulière de la courbe de surface solide-liquide se retrouve sur les courbes de refroidissement. La courbe E présente ainsi deux plateaux, distants l'un de l'autre de près de 9 °C. Le premier plateau est le plateau eutectique

normal, qui s'établit tant que le front colonnaire n'est pas formé. Le deuxième plateau correspond à la croissance de ce front. Cette différence de 9°C est très élevée et indique que la sédimentation peut avoir une influence très grande sur l'histoire thermique d'un lingot, et, par conséquent, sur la microstructure.

5.2.3 Avantages et inconvénients de la méthode de tir

La méthode de tir est une méthode très économique en place mémoire et en temps de calcul car elle ne décrit que l'interface solide-liquide des grains en train de croître. Elle est limitée au cas de grains dont la forme de l'interface est donnée par une relation simple. Il sera montré au sous-chapitre 5.4 que cette méthode est également efficace lorsque les grains ne sont plus sphériques.

Le désavantage de cette méthode est qu'elle discrétise l'interface par des éléments d'angles solides constants. Ceci signifie que plus le rayon de la direction associée à une facette devient important, plus la surface couverte par cet élément devient grande. Ainsi, dans le cas d'une croissance colonnaire (par exemple dans le haut de l'échantillon E), les imprécisions augmentent au fur et à mesure que la solidification se déroule. D'une manière générale, ceci signifie que cette méthode est réservée à la croissance de grains équiaxes. Il serait imaginable de pallier ce problème en subdivisant les éléments de surface après un certain nombre de pas de croissance.

Cette méthode pourrait aisément s'appliquer à d'autres domaines de la science des matériaux où des particules croissent et se déplacent au cours du temps:

Métallurgie:	thixoformage, matériaux composites à matrice métallique,
Céramiques:	croissance des grains, recristallisation, formation des agrégats de poudres et compactage,
Polymères:	croissance de sphérolites,
Matériaux de construction:	arrangement des granulats dans le béton, hydratation de la pâte de ciment.

5.2.4 Conclusion intermédiaire

Une méthode performante et économique en place mémoire et en temps de calcul a été présentée. Elle permet de produire, en sus des résultats habituels d'un modèle déterministe, une image précise de la microstructure. Cette description de la microstructure donne accès à tous les paramètres stéréologiques, ce qui est l'un des atouts principaux de la méthode.

Il a été montré que le mouvement des grains influence grandement les microstructures ainsi que les courbes de refroidissement. Le mouvement aléatoire produit un effet moindre que la sédimentation. Dans le premier cas, la

densité de grains locale reste homogène pour tout l'échantillon alors que, dans le second cas, une zone peut être vidée de tous les grains qui y ont germé et ne solidifier que par la croissance de grains d'aspect colonnaire venant de l'extérieur de cette zone. Malgré la thermique uniforme, de grandes variations de la fraction de solide sont alors présentes sur une même pièce.

Si l'échelle de l'échantillon considérée ici reste très académique, il faut remarquer que la méthode peut sans problème être étendue aux cas de plus grandes pièces et de géométries plus compliquées. Cette complication se paierait naturellement par une augmentation de la place mémoire nécessaire et du temps de calcul. Un couplage avec un calcul de la diffusion de la chaleur à l'échelle de la pièce tel que celui mis en oeuvre par Gandin et Rappaz (1994) pour la solidification dendritique est également un développement qui serait aisément réalisable. Il serait alors possible de prédire la formation des macrostructures de lingots.

A long terme, il est raisonnable d'imaginer que cette méthode pourrait de plus être couplée à un calcul de l'écoulement du liquide, qui permettrait d'imposer un mouvement réaliste aux grains et d'étudier plus en détail l'influence de la convection naturelle ou forcée sur la solidification.

5.3 Fontes à graphite sphéroïdal

L'intérêt de la modélisation stochastique est qu'elle permet de prendre en compte la vitesse de croissance propre à chaque grain. Dans les paragraphes qui suivent, l'influence de cette vitesse particulière sur la solidification, et plus spécialement sur les microstructures, va être étudiée en détail.

Dans un premier temps, les échantillons expérimentaux sont exploités afin de mesurer la surface de l'interface solide-liquide en fonction de la fraction de solide. Les distributions de taille des nodules n'ont pas été déterminées expérimentalement car il sera montré à la section 5.3.4 que les distributions mesurées sur une coupe 2D ne reflètent que difficilement les caractéristiques d'une distribution 3D. Ensuite, l'évolution de la microstructure simulée est comparée à l'évolution de la microstructure expérimentale. Puis l'influence de la prise en compte de la vitesse propre à chaque grain est discutée et son effet sur les évolutions de fraction de solide et de température ainsi que sur la densité de grains finale est mise en évidence. Les distributions de taille des grains 3D et celles mesurées sur des coupes 2D sont ensuite comparées pour quatre simulations particulières. Enfin, la relation entre densité de grains volumique et densité surfacique de nodules est discutée.

Quatre calculs ont été réalisés, pour deux conditions de refroidissement différentes et deux manières de définir le rayon des grains dans l'expression de la vitesse de croissance. Les paramètres utilisés sont regroupés au tableau 5.5. Le cas A est le cas de base. Il représente la situation d'un petit lingot de thermique uniforme. La vitesse de l'interface solide-liquide est calculée pour chaque grain. Pour le cas B, tous les paramètres du cas A sont conservés, sauf la vitesse, qui est la même pour tous les grains, et qui est calculée à partir du rayon moyen des grains:

$$\bar{r}_\gamma = \frac{1}{N_g^t} \sum_{i=1}^{N_g^t} r_{\gamma,i} \quad 5.6$$

Les cas C et D sont destinés à reproduire la thermique d'une solidification dirigée. La chaleur latente est posée nulle afin de produire une courbe de refroidissement linéaire (vitesse de refroidissement constante imposée), sans la recalescence qui mettrait fin à la germination bien avant la fin de la solidification. Le taux d'extraction de chaleur a été choisi de manière à produire une vitesse de refroidissement, \dot{T} , comparable à celle observée dans l'expérience de TSD ($\dot{T} = GV_T$). Les cas C et D se distinguent par la manière dont le rayon des grains est pris en compte dans la cinétique de croissance. Pour C, c'est le rayon propre à chaque grain qui est considéré, et pour D le rayon moyen.

	A	B	C	D
Taille, l [m]	$5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$
N_{tot}	$8 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^6$	$8 \cdot 10^6$
\dot{H} [$\text{Jm}^{-3}\text{s}^{-1}$]	$-3 \cdot 10^6$	$-3 \cdot 10^6$	$-7.5 \cdot 10^6$	$-7.5 \cdot 10^6$
ρc_p [$\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-1}$]	$4.65 \cdot 10^6$			
L [Jm^{-3}]	$1.4 \cdot 10^9$		0	
v [ms^{-1}]	$v_i = A\Delta T / r_{\gamma i}$	$v_i = A\Delta T / \bar{r}_\gamma$	$v_i = A\Delta T / r_{\gamma i}$	$v_i = A\Delta T / \bar{r}_\gamma$
$dn/d(\Delta T)$ [$\text{m}^{-3}\text{K}^{-1}$]	$5 \cdot 10^{11}$			
nbre de grains 3D	664	685	675	659
nbre de grains 2D	2193	2203	2163	1889

Tableau 5.5 Valeurs des paramètres utilisés pour les quatre simulations et nombre de grains pris en compte pour l'analyse stéréologique.

5.3.1 Détermination de la surface de l'interface solide-liquide

L'interface solide-liquide en cours de solidification a été mesurée sur des échantillons de fonte GS car la densité de grains est plus aisée à déterminer pour cette microstructure que pour les eutectiques "normaux". La surface a été déterminée sur les deux échantillons de TSD ainsi qu'à partir d'une série de photographies obtenues par Théret à l'école des Mines de Paris, au cours de son travail de doctorat (Théret (1979)). Les tableaux de valeurs mesurées sont regroupés à l'annexe 4.

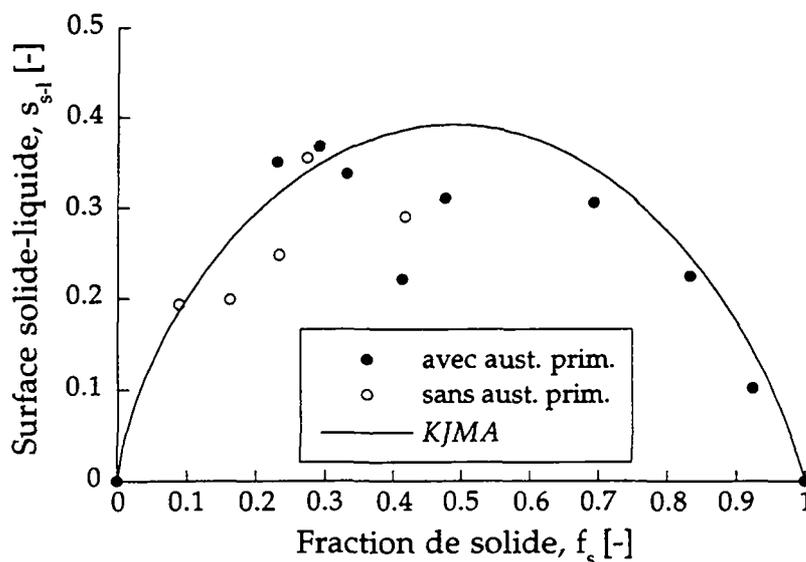


Figure 5.18 Surface de l'interface solide-liquide mesurée sur les photographies de Théret. Les points expérimentaux sont comparés au résultat théorique de KJMA.

Les photographies de Théret ont été analysées d'une part en prenant en compte toutes les dendrites primaires d'austénite qui se trouvaient sur l'échantillon et

d'autre part en tentant d'en faire abstraction. C'est pour cette raison que deux types de points expérimentaux sont reportés à la figure 5.18.

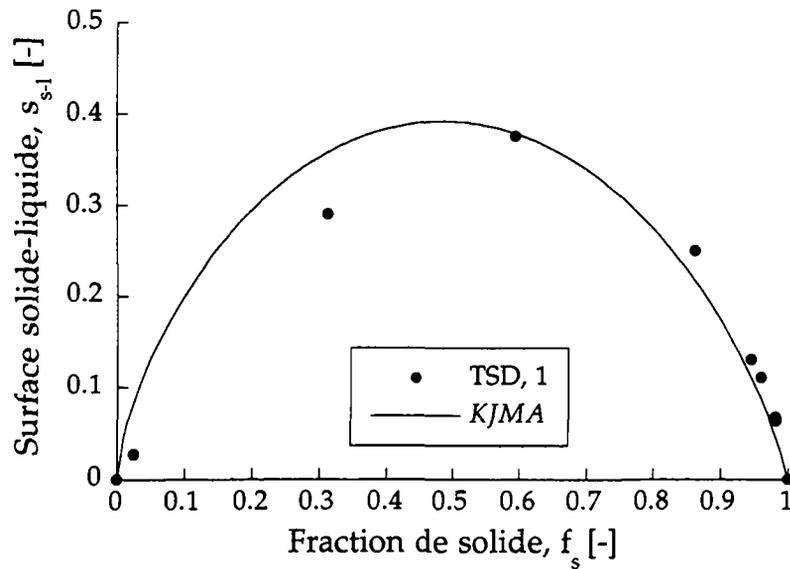


Figure 5.19 Surface de l'interface solide-liquide mesurée sur le premier échantillon de TSD. Les points expérimentaux sont comparés au résultat théorique de *KJMA*.

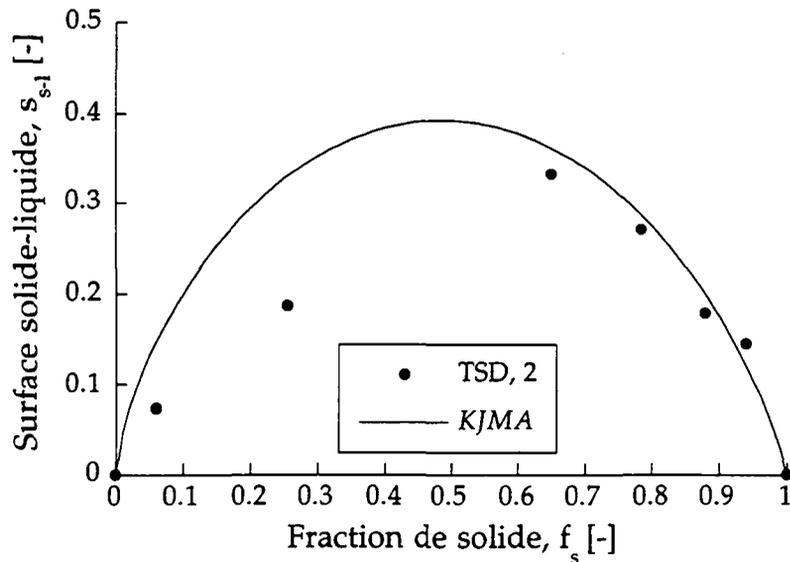


Figure 5.20 Surface de l'interface solide-liquide mesurée sur le second échantillon de TSD. Les points expérimentaux sont comparés au résultat théorique de *KJMA*.

L'analyse des trois échantillons expérimentaux conduit à la même conclusion. Au début de la solidification, la surface de l'interface solide-liquide est inférieure à celle prédite par le modèle de *KJMA*. En fin de solidification, les points expérimentaux sont quasiment superposés à la courbe théorique. Ceci tend à montrer que la rencontre des grains est bien décrite par le modèle de germination aléatoire et d'absence de mouvement des grains. La surface solide-liquide inférieure à celle prédite par le modèle de *KJMA* au début de la solidification peut être expliquée par

le fait que la surface est normalisée par rapport à la densité de grains finale et pas par rapport à la densité de grains en cours de solidification. La figure 5.21 montre que la courbe de surface solide-liquide prédite pour le cas C par la méthode cellulaire est légèrement en-dessous de celle du modèle de *KJMA* au début de la solidification puis légèrement en-dessus à la fin.

Dans les fontes à graphite sphéroïdal, deux effets contraires pourraient influencer sur la surface de l'interface solide-liquide. D'une part, les dendrites primaires forment un réseau régulier qui tend à imposer une distance entre les grains de fonte. Cet effet tendrait donc à modifier la surface solide-liquide comme le mouvement des grains avec une interaction répulsive. D'autre part, les grains de fonte sont plus légers que le liquide dont ils sont issus, ce qui devrait être équivalent à l'influence de la sédimentation, donc produire un effet analogue à un mouvement des grains avec une interaction attractive. Ni l'un, ni l'autre de ces effets n'est mis en évidence par les résultats expérimentaux. Ceci signifie soit que ces deux effets s'annulent, soit qu'ils sont négligeables, ou en tout cas d'importance inférieure aux incertitudes de mesure.

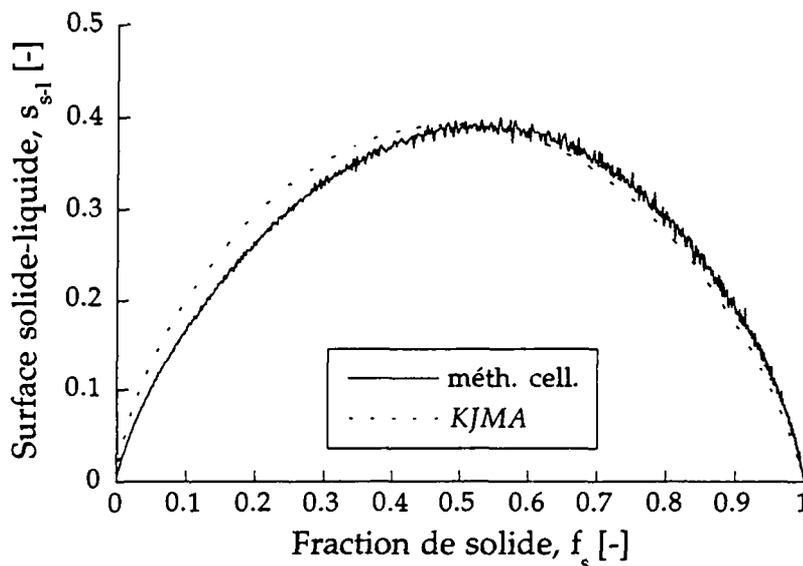


Figure 5.21 Surface de l'interface solide-liquide obtenue à l'aide du modèle cellulaire comparée à celle prédite par le modèle de *KJMA*.

5.3.2 Microstructures simulées et expérimentales

L'évolution de la microstructure simulée (cas C) sur une coupe bidimensionnelle est présentée à la figure 5.22, en parallèle à celle, expérimentale, obtenue par TSD pour des fractions de solide comparables. La confrontation des deux résultats montre que, qualitativement, la représentation de la microstructure est satisfaisante. Les interfaces des grains en cours de croissance sont bien sphériques (cercles en 2D). Même aux points de contact entre deux grains et le liquide, la forme de l'interface solide-liquide reste circulaire.

La comparaison entre microstructure réelle et microstructure simulée fait également apparaître la simplification opérée dans la modélisation du début de la solidification: ni les dendrites primaires d'austénite ni les nodules de graphite isolés ne sont pris en compte dans le modèle stochastique.

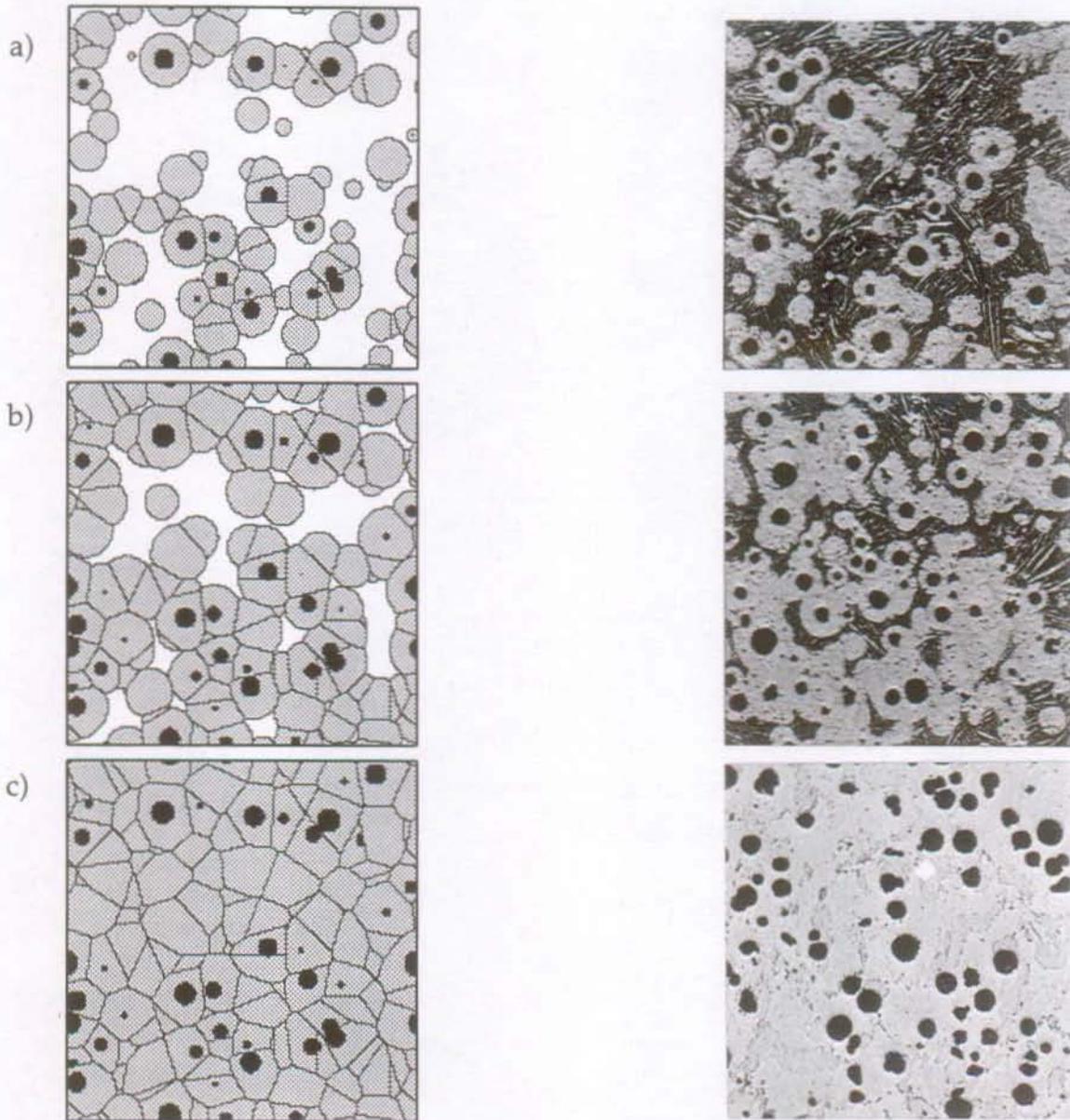


Figure 5.22 Solidification d'une fonte GS, comparaison entre l'évolution d'une microstructure simulée et celle d'une microstructure réelle, $f_s = 0.5$ (a), 0.8 (b), 1 . (c). Le côté de l'échantillon simulé mesure 0.3 mm (cas C), celui de l'échantillon expérimental 0.8 mm (photos de Théret).

5.3.3 Discussion de l'influence de la vitesse propre à chaque grain

Afin de montrer l'influence de la cinétique propre à chaque grain sur la température, la fraction de solide et la densité de grains finale, il s'est avéré nécessaire d'utiliser un modèle déterministe. Comme l'a montré Castro (1991), cette influence est faible et négligeable par rapport à celle du rayon initial du grain ou de la loi de germination.

Pour la situation des cas A et B, la différence la plus notable est une légère différence dans la profondeur de la recaescence, qui induit une légère différence de densité finale de grains. Cet effet est représenté à la figure 5.23. La densité finale de grains obtenue dans le cas A est de $5.37 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ et de $5.22 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-3}$ dans le cas B.

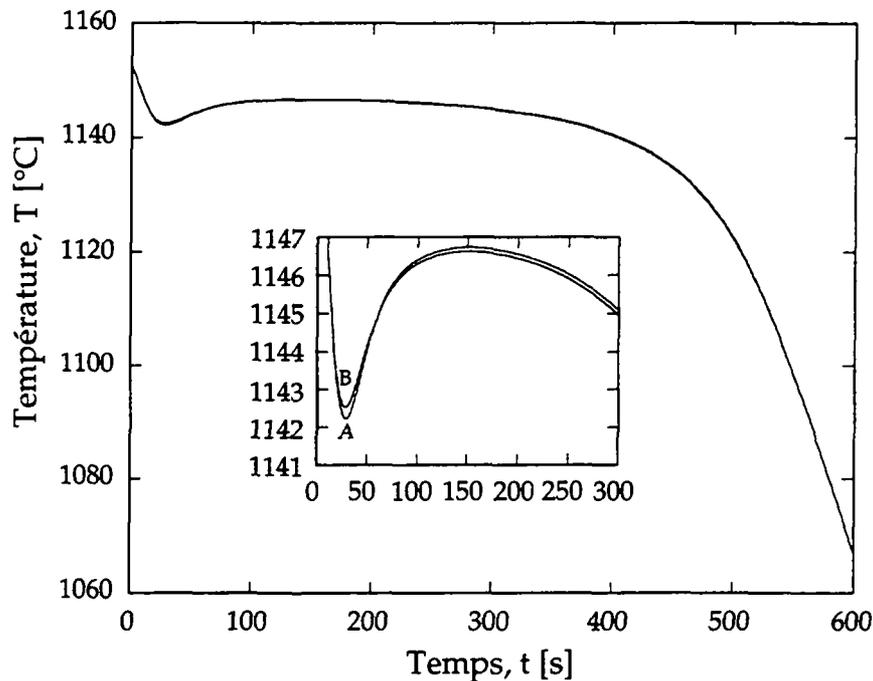


Figure 5.23 Evolution de température calculée pour les cas A et B. La prise en compte du rayon propre à chaque grain produit une recaescence légèrement plus profonde, donc une densité de grains un peu plus élevée.

Les évolutions de fraction de solide sont virtuellement superposées, elle ne sont donc pas représentées ici.

Pour les cas C et D, les courbes de température sont naturellement superposées puisque la modélisation est réalisée pour une vitesse de refroidissement constante imposée. Par contre, les évolutions de fraction de solide sont légèrement décalées. La prise en compte de la vitesse propre à chaque grain provoque un léger ralentissement de la solidification (fig. 5.24).

La densité de grains finale est égale à $2.62 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3}$ dans le cas C et à $2.53 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3}$ dans le cas D.

La prise en compte de la vitesse propre à chaque grain dans un modèle déterministe couplant la diffusion de chaleur à l'échelle macroscopique et le développement de la microstructure à l'échelle microscopique est possible, pour autant que les incréments de densité de grains produits à chaque noeud et à chaque pas de temps soient stockés (Castro (1991)). Ceci augmente, d'une part, le temps de calcul, car la vitesse de croissance des grains doit être calculée séparément pour chacune des classes de taille, et, d'autre part, la place mémoire, car la densité de grains n'est plus une valeur

unique à chaque noeud mais un tableau contenant les incréments de densité produits à chaque pas de temps. Des exemples qui précèdent, il apparaît que cette complication ne se justifie pas. L'influence de la vitesse propre à chaque grain est négligeable par rapport aux incertitudes sur les échanges thermiques, les propriétés thermophysiques et les paramètres de la loi de germination qui se présentent lors de la simulation d'une situation de coulée industrielle.

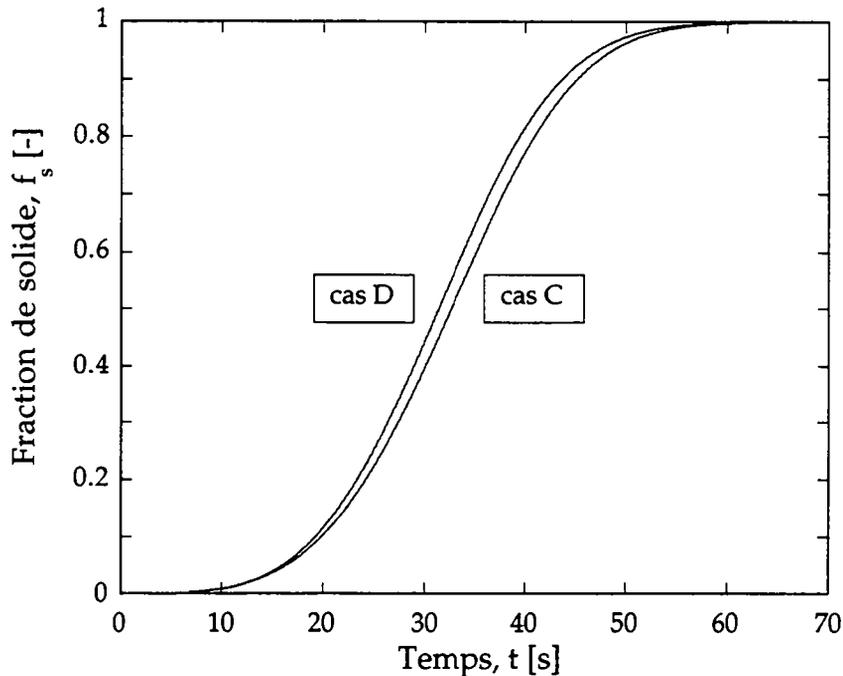


Figure 5.24 Evolution de la fraction de solide calculée pour les cas C et D. La prise en compte de la vitesse de croissance propre à chaque grain provoque un léger ralentissement de la solidification.

5.3.4 Caractérisation des microstructures

L'avantage principal de la méthode cellulaire est qu'elle donne aisément accès à toute quantité stéréologique. Les distributions de taille des grains, en 3D et sur des coupes 2D, ont été calculées et sont discutées dans les pages qui suivent. Le but de ces mesures est d'étudier l'influence de la cinétique de croissance propre à chaque grain sur les distributions de volume et d'étudier également l'influence d'une coupe sur la forme des distributions de taille. La relation entre densité surfacique de nodules et densité volumique de grains a également été établie et comparée à différents modèles ou résultats expérimentaux. Les distributions de taille (volumiques en 3D et surfaciques sur les coupes 2D) ont été calculées à différentes fractions de solide. Les histogrammes sont établis en fonction du volume normalisé (ou de la surface normalisée). Le facteur de normalisation est le volume, V_{moy} , ou la surface, S_{moy} , d'un grain moyen:

$$V_{moy} = \frac{V_{tot}}{N_g^t} \quad S_{moy} = \frac{S_{tot}}{N_g^t(2D)} \quad 5.7$$

N_g^t est, comme auparavant, le nombre de grains présents à l'instant t . Cette quantité est à distinguer de $N_g^t(2D)$, qui est le nombre de grains rencontrés lors des coupes 2D, et qui est autant influencé par le nombre de grains présents dans l'échantillon que par le nombre de coupes effectuées. Pour tous les résultats qui suivent, les distributions de taille 2D ont été obtenues par la mesure sur dix plans de coupes parallèles et équidistants. S_{tot} est la somme des surfaces de ces dix plans de coupe.

Distributions volumiques des grains

Comparaison des cas A et B

Dans ces deux cas, la recalescence se produit à environ 2% de fraction de solide, la germination est alors arrêtée et aucun grain n'est plus créé. Dans le cas A, en raison de la cinétique de croissance inversement proportionnelle au rayon de chaque grain, les petits grains ont tendance à rattraper les plus gros. Cet effet est particulièrement visible sur la distribution à 10% de fraction de solide, qui est très resserrée autour de la valeur moyenne. Pour le cas B, la distribution est très dispersée, car tous les grains croissent à la même vitesse. Les différentes classes de taille observées sont le reflet des différents instants de germination.

Au fur et à mesure que la solidification se déroule, les distributions du cas A ont tendance à s'élargir et celles du cas B à se resserrer. Dans les deux cas, cet effet est dû à la rencontre des grains qui bloque tout ou partie des interfaces solide-liquide. A la fin de la solidification, les deux distributions sont quasiment identiques. Ceci montre que, dans le cas d'une germination quasiment instantanée, la distribution finale des volumes est dictée plus par la répartition spatiale des germes que par la vitesse de croissance.

Cette tendance peut s'expliquer par l'évolution des rayons des grains dans ces deux cas. La figure 5.26 présente l'évolution des rayons du premier grain germé (entrée en surfusion du liquide) et du dernier grain germé (fond de la recalescence), pour les deux cas A et B. Dans le cas A, la différence entre les deux rayons décroît brusquement, ce qui explique les distributions de tailles très resserrées à faibles fractions de solide, avant de tendre asymptotiquement vers une valeur nulle. Dans le cas B, la décroissance initiale n'a pas lieu, puisque la vitesse est la même pour tous les grains, et la différence entre les deux rayons est constante. Cette différence est comparable à celle obtenue au cas A.

La plage de rayons présents dans l'échantillon est très réduite pour les deux cas, ce qui signifie que, pour des temps bien supérieurs à l'instant de germination du dernier grain, la différence entre le rayon moyen et le rayon propre à chaque grain n'est pas très élevée. C'est pour cette raison que les distributions de volume en fin de solidification des cas A et B sont très semblables.

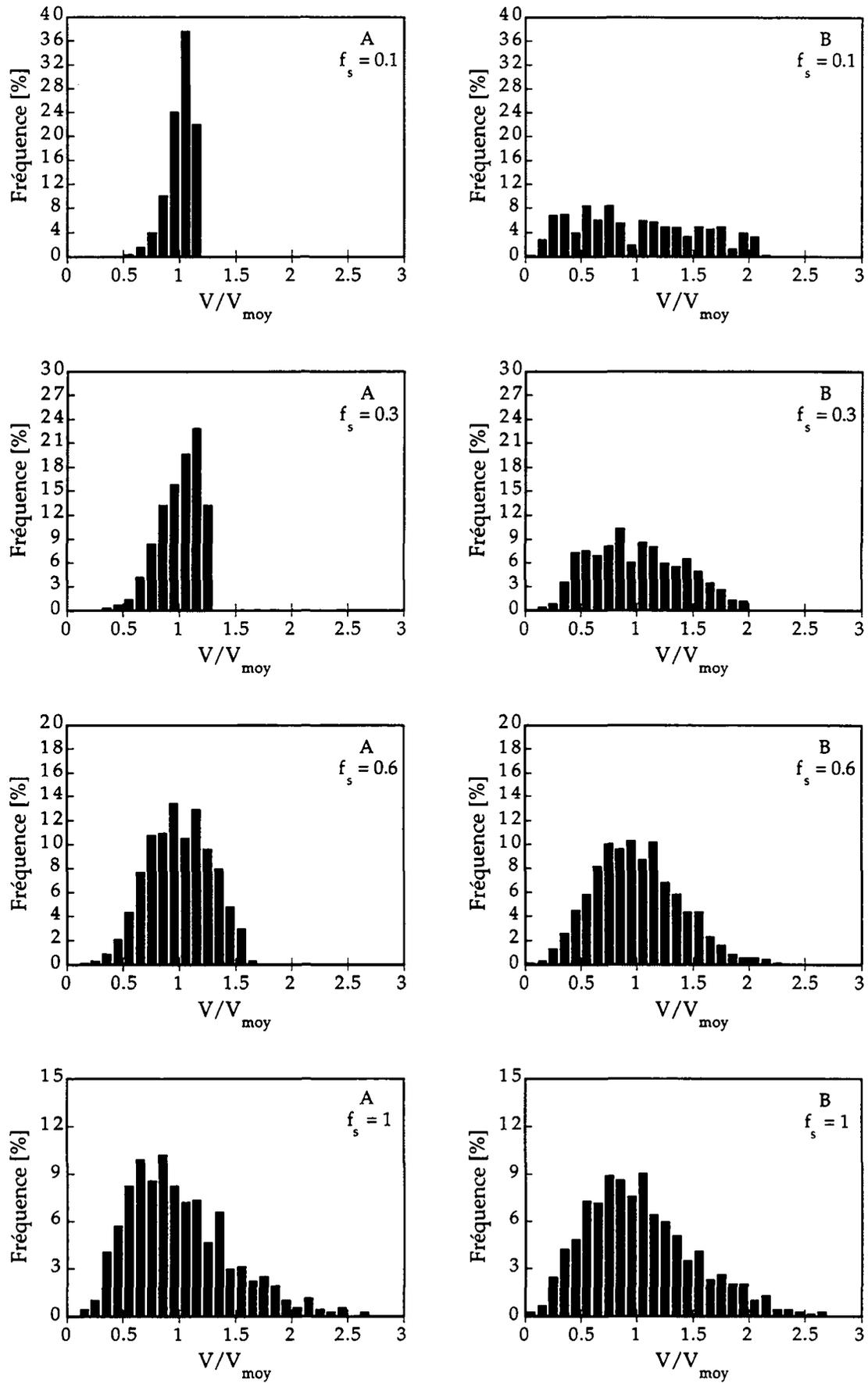


Figure 5.25 Cas A et B, distributions volumiques à différentes fractions de solide.

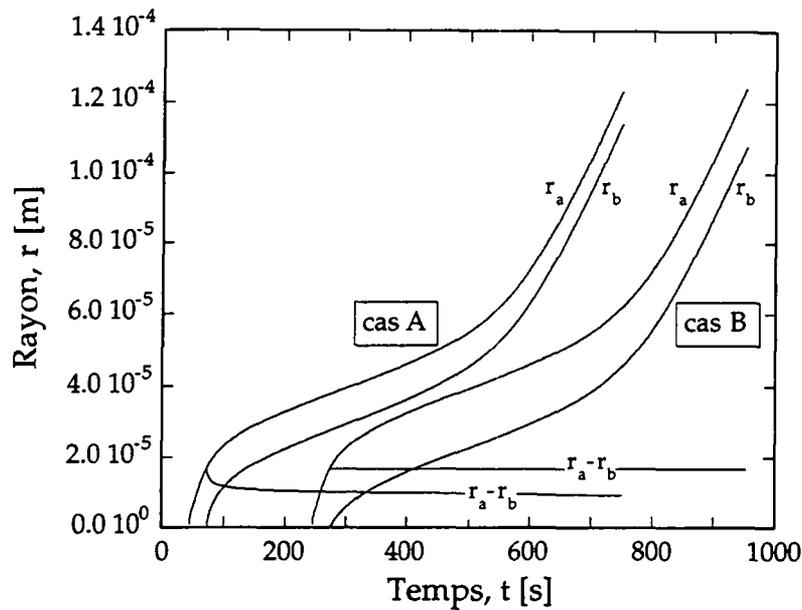


Figure 5.26 Evolution des rayons du premier grain germé, r_a , et du dernier grain germé, r_b , pour les cas A et B. La différence entre ces deux rayons, $r_a - r_b$, est également tracée. Les courbes du cas B ont été déplacées de 200 s vers la droite afin d'éviter les chevauchements.

Comparaison des cas C et D

Pour ces deux cas, la germination n'est arrêtée que lorsque l'échantillon est complètement solidifié. De nouveaux grains apparaissent continûment dans le liquide résiduel, à un taux décroissant linéairement avec la fraction de liquide (le taux de grains apparaissant réellement dans le liquide, $I_{réel}$, est égal au taux imposé multiplié par la fraction de liquide: $I_{réel} = I_0(1 - f_s)$).

Aux faibles fractions de solide, les distributions des volumes du cas C sont très rectangulaires car toutes les classes sont occupées par un nombre à peu près égal de grains: des grains germent sans cesse, alimentant ainsi les petites classes qui sont dépouillées par la croissance. Vers la fin de la solidification, la distribution prend une forme comparable à celle du cas A, si ce n'est que les classes de petites tailles sont mieux représentées. Cet effet est provoqué par la germination de grains, en fin de solidification, dans des petites poches de liquide résiduel qui ne permettent pas au grain de se développer.

Le cas D est caractérisé par des distributions de volume plus dispersées que celles du cas C, car les petits grains ne peuvent plus rattraper les plus gros (vitesse de croissance identique pour tous les grains). L'augmentation du nombre de grains de petite taille peut s'expliquer par le fait que, sans rencontre des grains et sans extinction des sites de germination, un taux de germination constant conduit à une distribution des rayons uniforme, car la vitesse de croissance de tous les grains est la même. Dans un tel cas, il est aisé de montrer que la distribution des volumes décroît proportionnellement à $V^{-2/3}$ et que, pour une largeur des classes égale à 0.1, la fréquence de la première classe est voisine de 30 % et la dernière classe non nulle est

celle pour laquelle V/V_{moy} est égal à 4. Ces deux faits sont observables sur les distributions pour lesquelles $f_s < 0.3$. Pour ces distributions, l'influence de la rencontre des grains et de l'extinction des sites se fait encore peu sentir.

La grande différence observée entre les distributions du cas C et D peut à nouveau s'expliquer par l'évolution des rayons des grains. Dans le cas C, les rayons atteignent très rapidement une vitesse de croissance constante⁽¹⁾. Cette croissance initiale rapide permet de maintenir la distribution de volumes relativement resserrée, malgré la germination continue. Dans le cas D, la vitesse de croissance est quasiment constante au cours du temps, et donnée par $v(t) = (K\dot{T})^{1/2}$. L'intervalle des rayons présents au cours du temps ne fait donc qu'augmenter, comme dans le cas C, mais aucun resserrement ne peut se produire. Seule la rencontre des grains limite le domaine de volume des grains observés. L'évolution des rayons des grains des cas C et D est présentée à la figure 5.27.

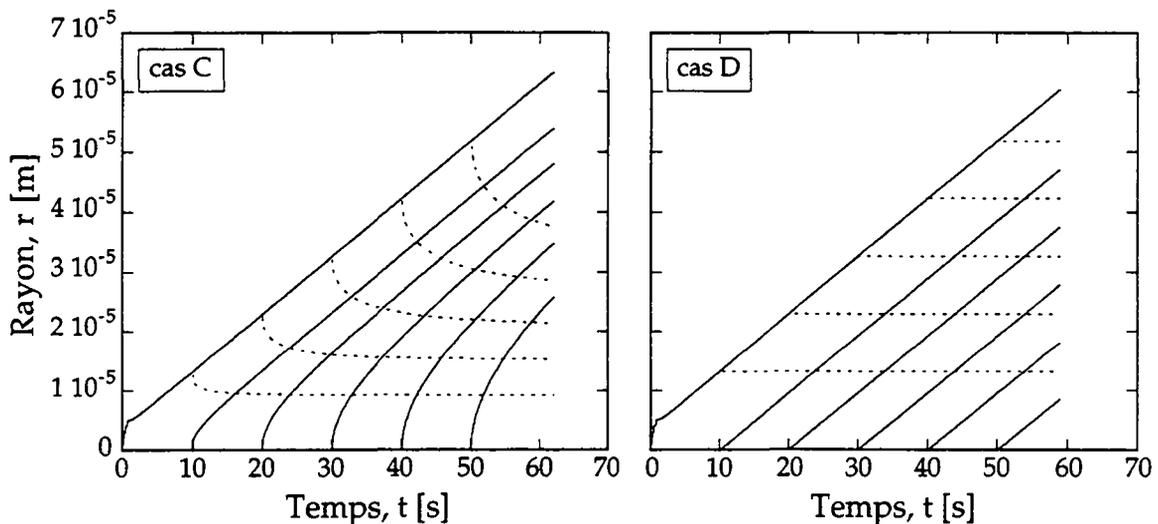


Figure 5.27 Evolution des rayons de grains germés en $t=0, 10, 20, 30, 40$ et 50 s. Les différences entre le rayon du grain germé en $t=0$ et les autres rayons sont tracées en traitillé.

(1) Il peut être montré que, pour la situation thermique et la manière de prendre en compte le rayon du cas C, le rayon d'un grain évolue comme $r(t) = (K\dot{T}(t^2 - t_n^2))^{1/2}$, où t est le temps d'observation et t_n le temps de germination. L'origine du temps est placée à l'instant où le liquide entre en surfusion, $T(t=0) = T_{eut}$.

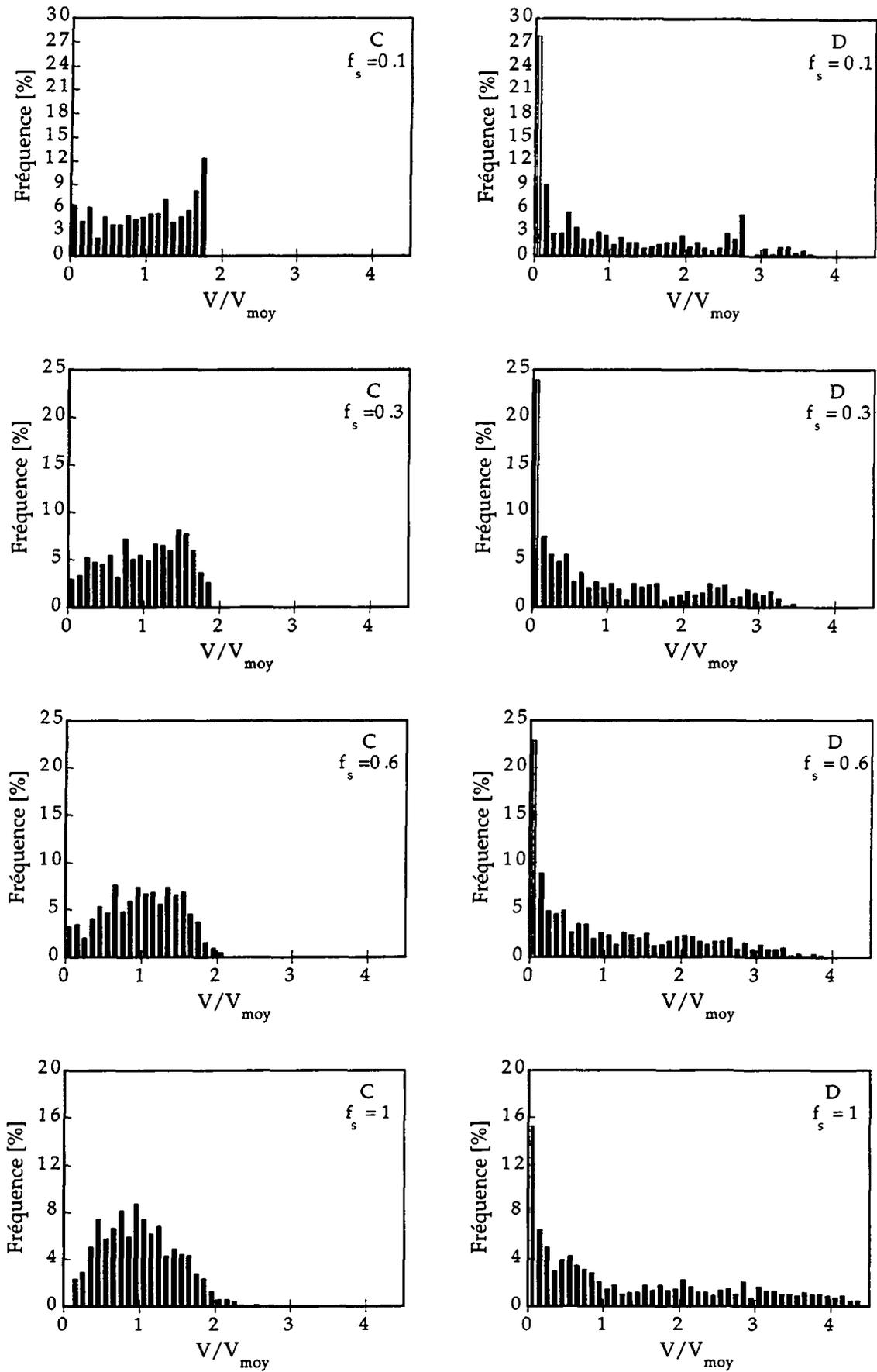


Figure 5.28 Cas C et D, distributions volumiques à différentes fractions de solide.

Distributions surfaciques des grains

Expérimentalement, il est difficile d'accéder aux distributions volumiques. Seules de fastidieuses mesures de type *serial sectionning* permettraient de mesurer ces quantités. Le temps à consacrer à un seul échantillon serait alors immense. Pour cette raison, cette voie expérimentale est très peu pratiquée. Habituellement, les distributions surfaciques, mesurées sur une coupe métallographique, sont déterminées. Le modèle numérique permet également de calculer ces distributions. Les résultats obtenus pour les cas A à D sont à nouveau présentés aux figures 5.29 et 5.30.

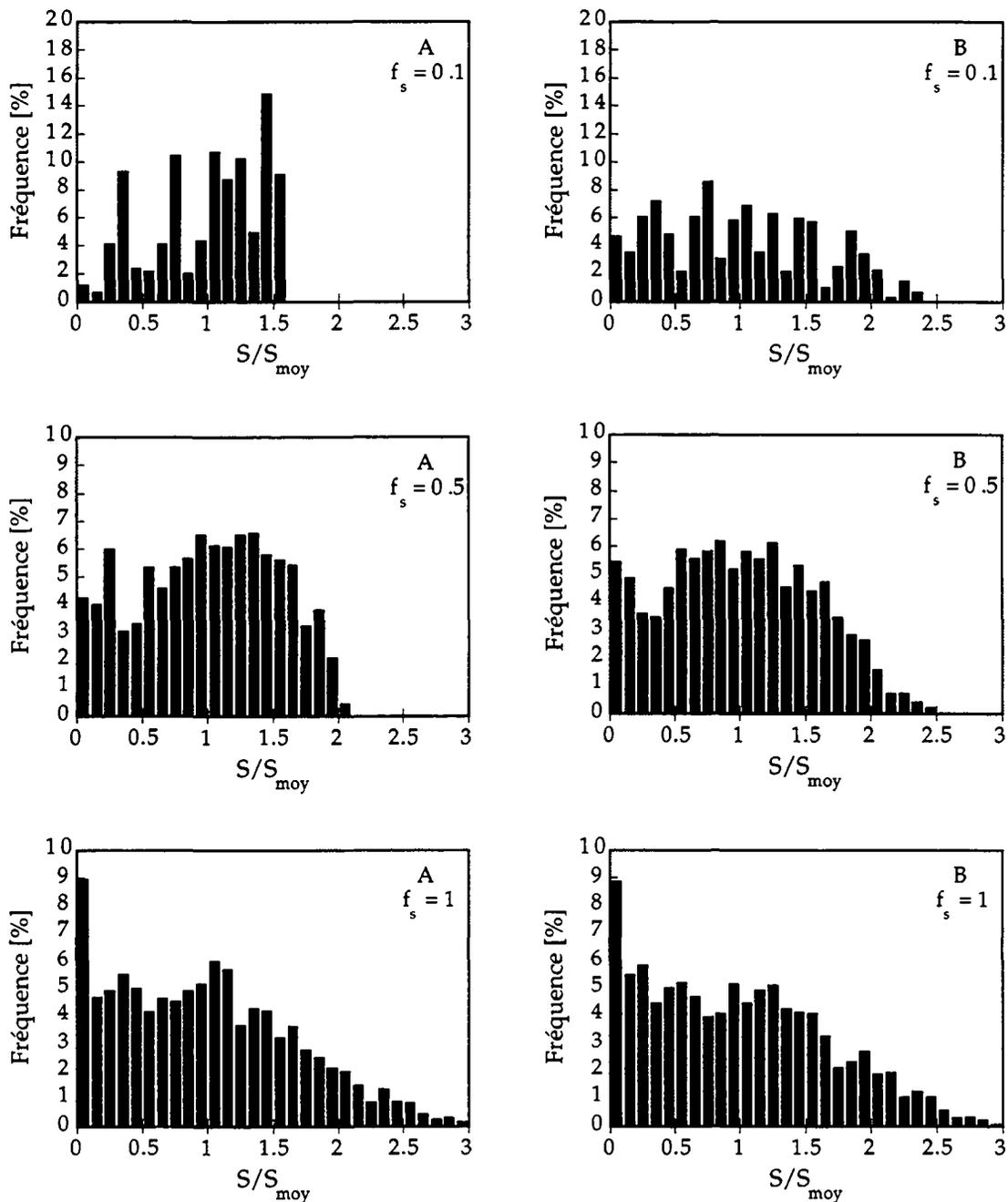


Figure 5.29 Cas A et B, distributions surfaciques de taille des grains mesurées sur une coupe bidimensionnelle à différentes fractions de solide.

Comparaison A-B

A 50% de fraction de solide, les distributions de surface sont très comparables. Le cas B se distingue du cas A par la présence de grains de grande taille ($S/S_{moy} > 2$). Cette différence est très minime par rapport à celle remarquée sur les distributions de volumes. L'effet de la coupe est d'atténuer très fortement les différences de fréquences. A la fin de la solidification, les deux distributions sont quasiment identiques, ce qui n'est guère surprenant puisque les distributions de volume l'étaient également.

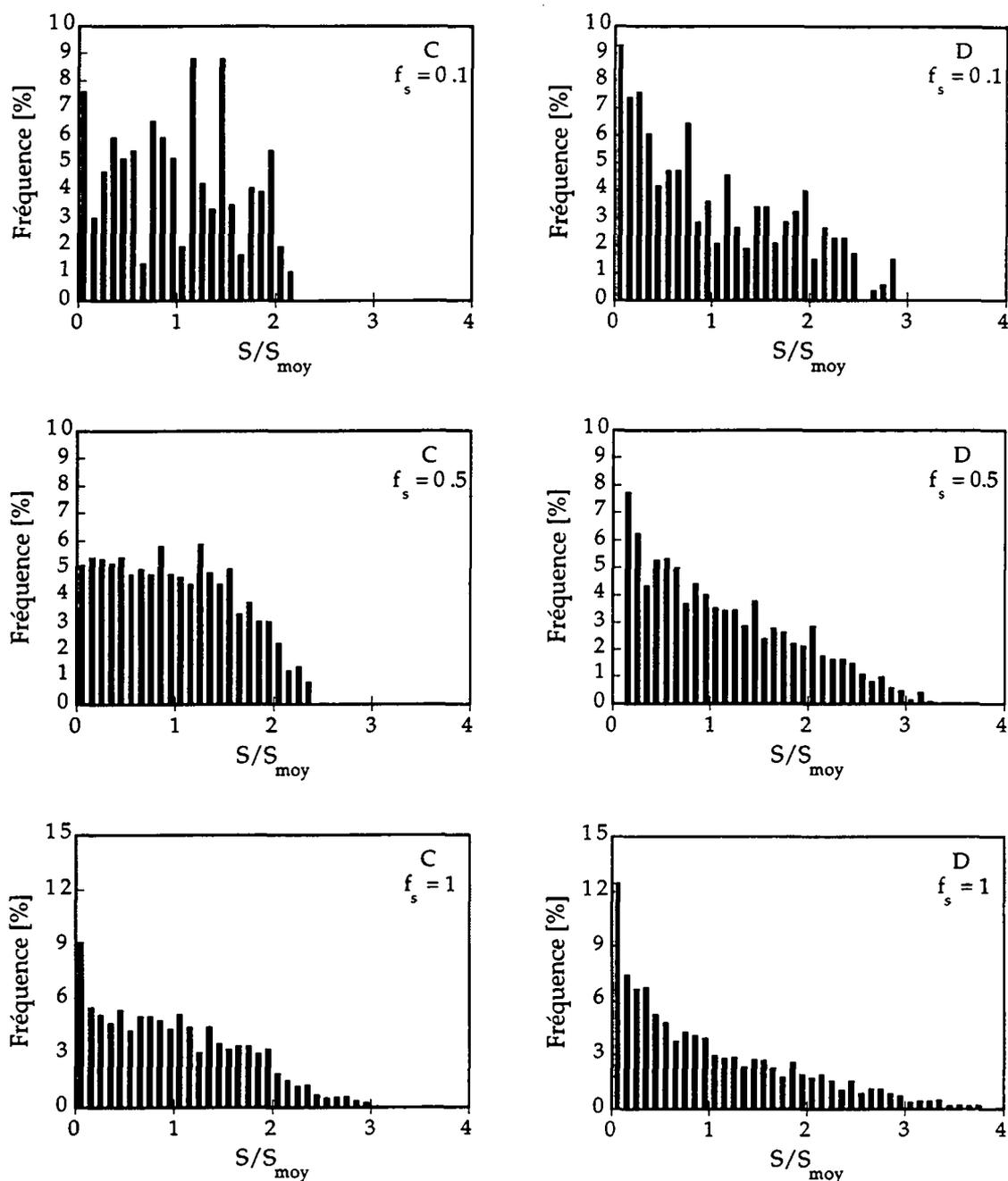


Figure 5.30 Cas C et D, distributions surfaciques de taille des grains mesurées sur une coupe bidimensionnelle à différentes fractions de solide.

Comparaison C-D

Les distributions du cas C sont à peu près trapézoïdales: les fréquences sont constantes dans l'intervalle $S/S_{moy} \in [0; 1.5]$ et décroissent vers les grandes tailles. Celles du cas D sont caractérisées par des fréquences décroissant vers les tailles élevées. Ces formes caractéristiques s'atténuent au cours de la solidification et les distributions finales sont très voisines. L'effet de la coupe est à nouveau très marqué. Les grandes différences observées sur les distributions de volume se muent en différences minimales sur les distributions de surface. Cette constatation remet fortement en question l'utilisation d'une méthode de déconvolution telle que la méthode de Saltykov. En effet, si de petites variations de distributions 2D se traduisent en grandes variations sur les distributions 3D, une légère erreur ou incertitude de mesure sur les coupes peut amener de grandes erreurs sur la distribution 3D résultante.

En résumé, les distributions de surface des grains résultent principalement de l'effet de coupe (stéréologie), les aspects liés à la cinétique de croissance et à la rencontre des grains étant presque totalement masqués par une coupe métallographique. En revanche, les effets associés à la cinétique de croissance des grains sont clairement visibles sur les micrographies, notamment sur la forme des joints de grains. En principe, l'interface de deux grains de fonte GS qui croissent dans un liquide de température uniforme (à tout le moins localement uniforme, c'est à dire à l'échelle de deux grains voisins) est un plan, quel que soit leur instant de germination (voir annexe 2). Ceci se vérifie sur les micrographies simulées de la figure 5.31. Pour les cas A et C, pour lesquels la cinétique propre à chaque grain est respectée, les joints de grains sont effectivement tous des segments de droites. Pour les cas B et D, certains joints sont nettement hyperboliques. Dans le cas B, ils sont rares et peu marqués car la germination est quasiment instantanée, ce qui implique que la différence entre les temps de germination de deux grains adjacents est toujours faible. Dans le cas D, où des grains germent continûment, les interfaces hyperboliques très marquées sont la règle car les instants de germination de deux grains voisins peuvent être très grands.

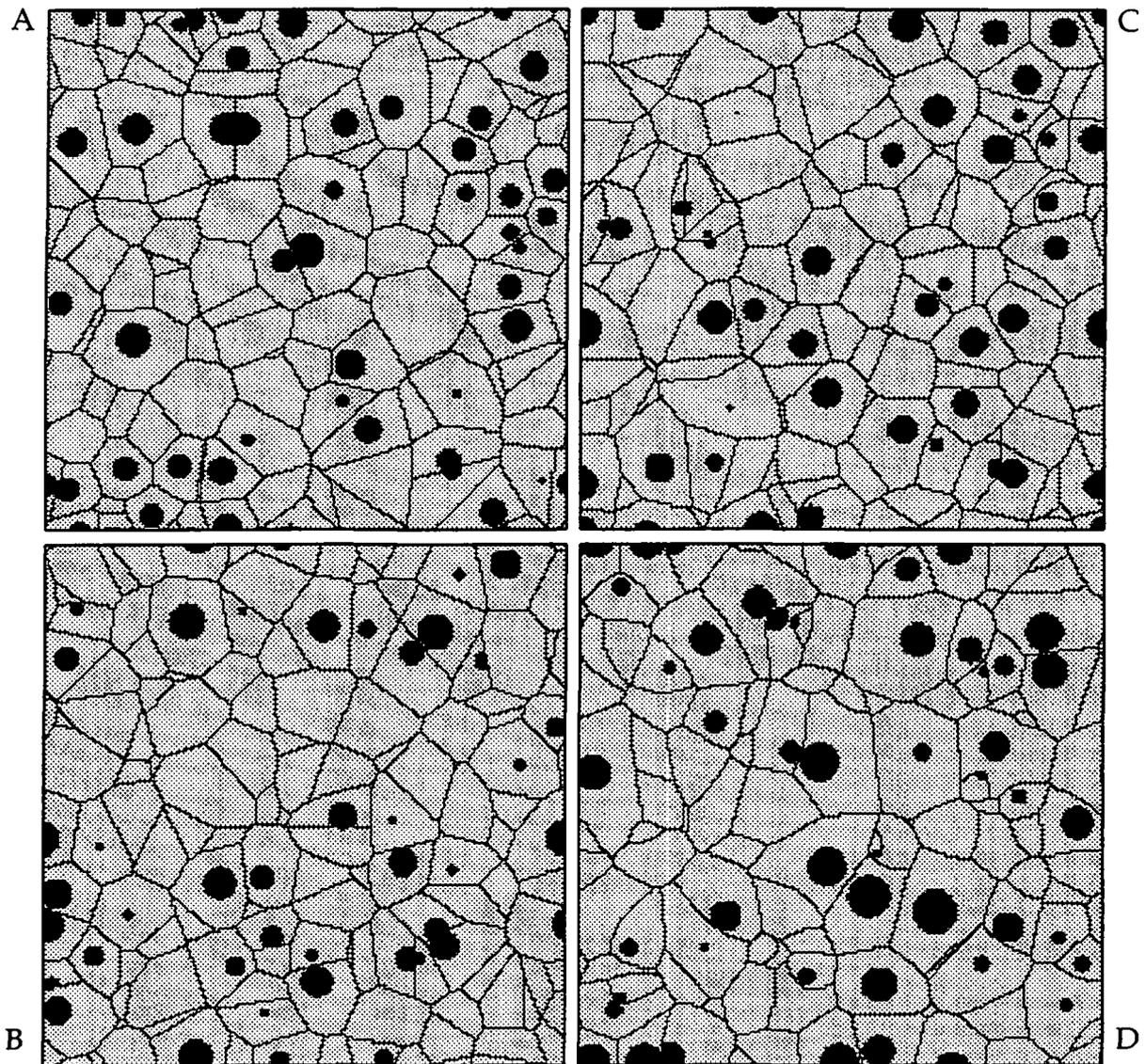


Figure 5.31 Micrographies simulées obtenues en fin de solidification pour les cas A à D. Les carrés de gauche font 500 μm de côté et ceux de droite 300 μm .

Relation entre la densité volumique de grains, N_V , et la densité surfacique de nodules, N_A^*

Des calculs de solidification de la fonte GS ont été effectués pour divers taux d'extraction de chaleur avec les paramètres de la simulation A et C. La taille de l'échantillon a été adaptée à la vitesse de refroidissement afin de produire un nombre de grains voisin de 1500 dans tous les cas. La densité de grains dans le volume, N_V , a été déterminée, ainsi que la densité de nodules de graphite sur des coupes bidimensionnelles, N_A^* . Les couples N_V - N_A^* obtenus sont reportés sur la figure 5.32. A partir de ces couples, la meilleure approximation au sens des moindres carrés de la relation $N_V = AN_A^{3/2}$ a été déterminée. Le résultat obtenu est le suivant:

$$N_V = 2.83 N_A^{3/2}$$

Cette expression est très proche de celle du modèle stéréologique simple basé sur une taille de grain moyenne (Richoz (1988)):

$$N_V = 2.69 N_A^*{}^{3/2} \tag{5.9}$$

Ceci montre que le fait de considérer que les grains sont caractérisés par une taille unique (hypothèse du modèle géométrique) plutôt que par une distribution (méthode de Saltykov) a un effet négligeable sur la relation $N_V = N_V(N_A^*)$. Le passage par une méthode de type Saltykov, s'il semble plus rigoureux au premier abord, ne peut qu'ajouter des erreurs au résultat. En particulier, les taches et autres défauts qui se trouvent inévitablement sur un échantillon métallographique sont considérés comme des grains de petite taille et conduisent à surévaluer la densité de grains volumique. Castro (1991) est par exemple conduit à tronquer ses distributions volumiques du côté des petites tailles pour obtenir des résultats réalistes. Dans certains cas, il est même possible que le passage des mesures surfaciques aux densités volumiques produise des fréquences négatives de certaines classes afin de satisfaire à la procédure mathématique de déconvolution.

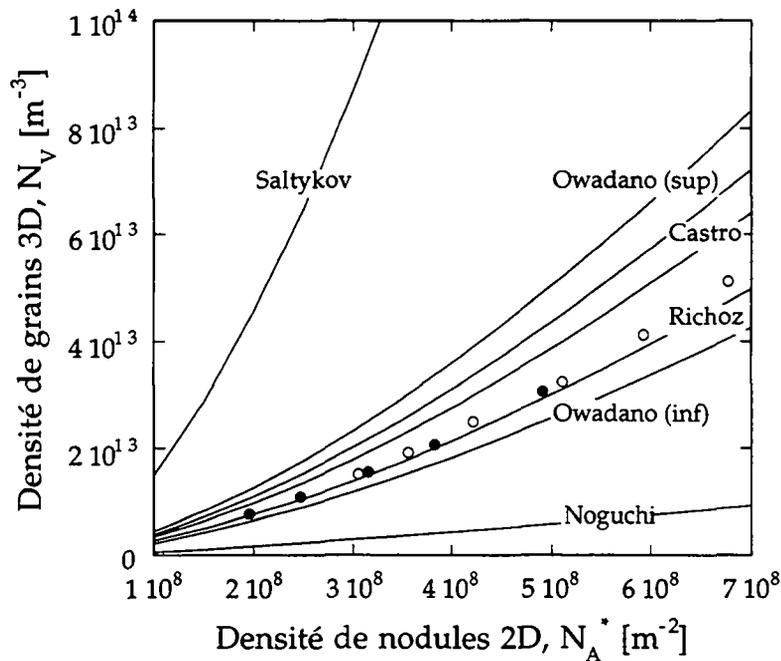


Figure 5.32 Les résultats des simulations sont reportés sous forme de disques noirs pour les simulations de type A et de disques blancs pour les simulations de type C. Deux courbes sont tracées pour le modèle d'Owadano et correspondent aux limites inférieure et supérieure du domaine défini par l'équation 2.83 ($\alpha = 1.0$ et $f_{gr} = 0.1$ pour (inf) et $\alpha = 1.4$ et $f_{gr} = 0.07$ pour (sup)). Deux courbes reflètent les résultats de Castro et correspondent à la densité obtenue en prenant en compte les nodules de petite taille (courbe supérieure) et en les omettant (courbe inférieure).

De plus, comme discuté dans la section précédente, les erreurs sur les distributions 2D sont amplifiées par le passage aux distributions 3D. Le modèle stéréologique simple devrait donc être préféré à la méthode de Saltykov tant qu'une estimation des distributions de taille n'est pas indispensable. Il faut cependant remarquer que la courbe inférieure de Castro (fig. 5.32) est très proche des points du modèle stochastique. Ceci montre que les résultats numériques obtenus sont réalistes et que, pour un travail expérimental soigné, la méthode de Saltykov est tout de même applicable. Par contre, les résultats de Saltykov (1967) et Noguchi (1985) sont plus surprenants. L'explication de ces divergences peut être trouvée soit dans le fait que les mesures n'ont pas été réalisées avec toute la rigueur nécessaire, soit dans le fait que tant la méthode de Saltykov que le modèle de Richoz ou le présent modèle numérique considèrent une microstructure idéalisée qui ne contient aucun défaut: dendrites primaires, nodules isolés, porosités, etc.

5.3.5 Conclusion intermédiaire

La méthode cellulaire appliquée aux fontes GS s'est avérée utile surtout comme outil stéréologique. Il a été montré que les distributions bidimensionnelles sont peu représentatives de la microstructure 3D: la coupe a pour effet de très sérieusement masquer ou atténuer les grandes différences observables sur les distributions 3D.

Pour la détermination de la densité de grains 3D à partir des densités 2D, il a été montré que la relation stéréologique simple définie par Richoz est préférable à la méthode de déconvolution de Saltykov.

L'influence de la prise en compte de la vitesse propre à chaque grain sur les courbes de refroidissement, les évolutions de fraction de solide et les densités de grains est faible. Elle est par contre très marquée sur les distributions de taille et les microstructures.

Il a été montré que si la vitesse de croissance des grains est inversement proportionnelle à leur rayon, les joints de grains sont toujours des segments de droite, quels que soient les instants de germination des différents grains.

5.4 Grains croissant dans un gradient thermique

Tous les résultats présentés dans ce sous-chapitre traitent de la refusion par laser d'alliages aluminium-silicium. Cependant, comme il sera montré à la section 5.4.4, l'asymétrie de grains formés dans un gradient de température est un phénomène plus général, qui peut être rencontré en coulée conventionnelle. En effet, l'asymétrie étant essentiellement fonction du rapport G/v_T , elle peut être observée à faible gradient, G , pour autant que la vitesse des isothermes, v_T , soit réduite en conséquence. De fait, des grains asymétriques ont également été prédits pour des alliages dendritiques solidifiés de manière unidirectionnelle (Gandin et Rappaz (1994)).

Les résultats expérimentaux amènent un certain nombre d'observations qui sont ensuite expliquées ou reproduites à l'aide de la méthode mixte.

5.4.1 Résultats expérimentaux

Le premier résultat qui est obtenu est l'absence ou la présence de grains équiaxes.

	$C_{Si} = 17\%$	$C_{Si} = 20\%$	$C_{Si} = 23\%$	$C_{Si} = 26\%$
$v_T = 0.01 \text{ m/s}$	instable/non	instable/oui	instable/oui	instable/oui
$v_T = 0.1 \text{ m/s}$	non	oui	oui	oui
$v_T = 0.5 \text{ m/s}$	non	oui	oui	oui

Tableau 5.6 Présence de grains équiaxes à la surface de la trace en fonction de la composition et de la vitesse de balayage du laser.

Ces résultats sont le fruit de l'ensemble des essais. Le terme instable signifie que le bain liquide ne prend pas une forme stationnaire mais avance par saccades, ce qui a pour effet de faire varier localement la vitesse d'avance des isothermes et de produire une microstructure alternée fine/grossière. Ce type d'instabilité a pu être récemment éliminé par un préchauffage du substrat (Bourban (1994)).

Le deuxième résultat est une tentative de caractérisation de la microstructure par la densité de grains et leur forme, lorsque les grains équiaxes sont présents. Malheureusement, les résultats semblent peu reproductibles. Sur une trace, des zones diverses apparaissent, qui permettent différents types d'interprétations, et les essais menés pour ce travail donnent des résultats parfois incohérents avec ceux des travaux de Stoll *et al.* Ceci tend à indiquer que, comme pour la germination de l'alliage Pb-Sn, l'absence d'un inoculant efficace dans le métal liquide rend la germination sujette à des variations très légères de composition ou à la présence d'impuretés. Cependant, trois faits peuvent être tirés des résultats expérimentaux:

- Lorsque des grains eutectiques équiaxes se développent, ils sont allongés dans la direction amont par rapport au flux de chaleur, ce qui est contraire à l'intuition qui laisse à penser que les grains vont se développer plus rapidement du côté le plus froid, c'est à dire le plus en surfusion: le côté aval.

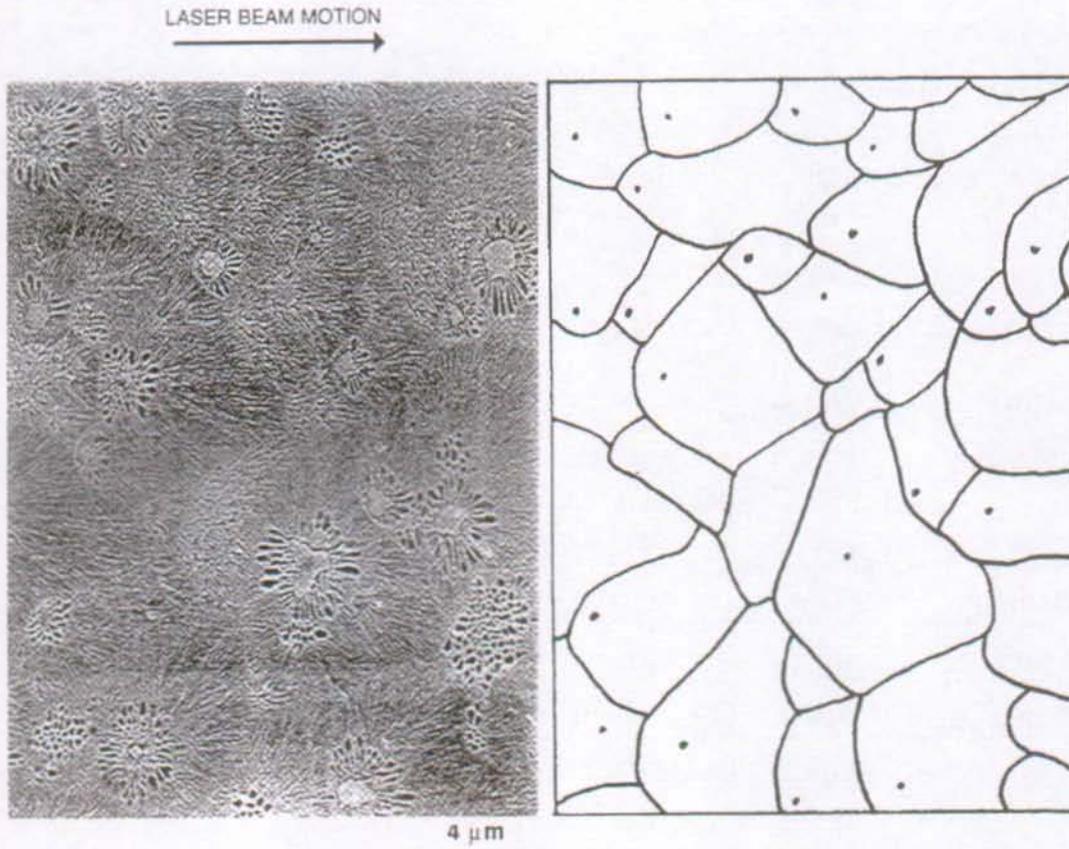


Figure 5.33 Grains eutectiques équiaxes à la surface d'un échantillon d'Al-Si 26%, refondu par laser à une vitesse de balayage de 0.1 m/s. La direction du laser est indiquée par une flèche. Les grains sont allongés du côté le plus chaud. Chaque grain est constitué d'une particule primaire de silicium entourée d'une couronne de cellules d'aluminium, puis de l'eutectique couplé. A droite, le contour des grains ainsi que le centre de germination du grain (lorsqu'il est visible) sont tracés.

- Le logarithme de la densité de grains eutectiques équiaxes est une fonction linéaire du logarithme de la vitesse de balayage du laser.

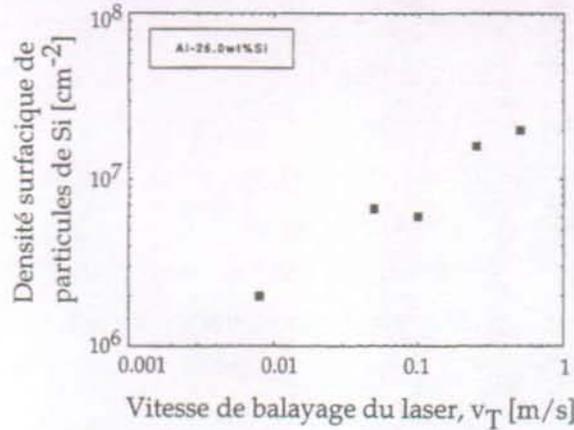


Figure 5.34 Densité surfacique de particules primaires de silicium en fonction de la vitesse de balayage (Pierantoni *et al* (1992)).

- Tous paramètres égaux par ailleurs, l'asymétrie des grains diminue lorsque la vitesse de balayage augmente.

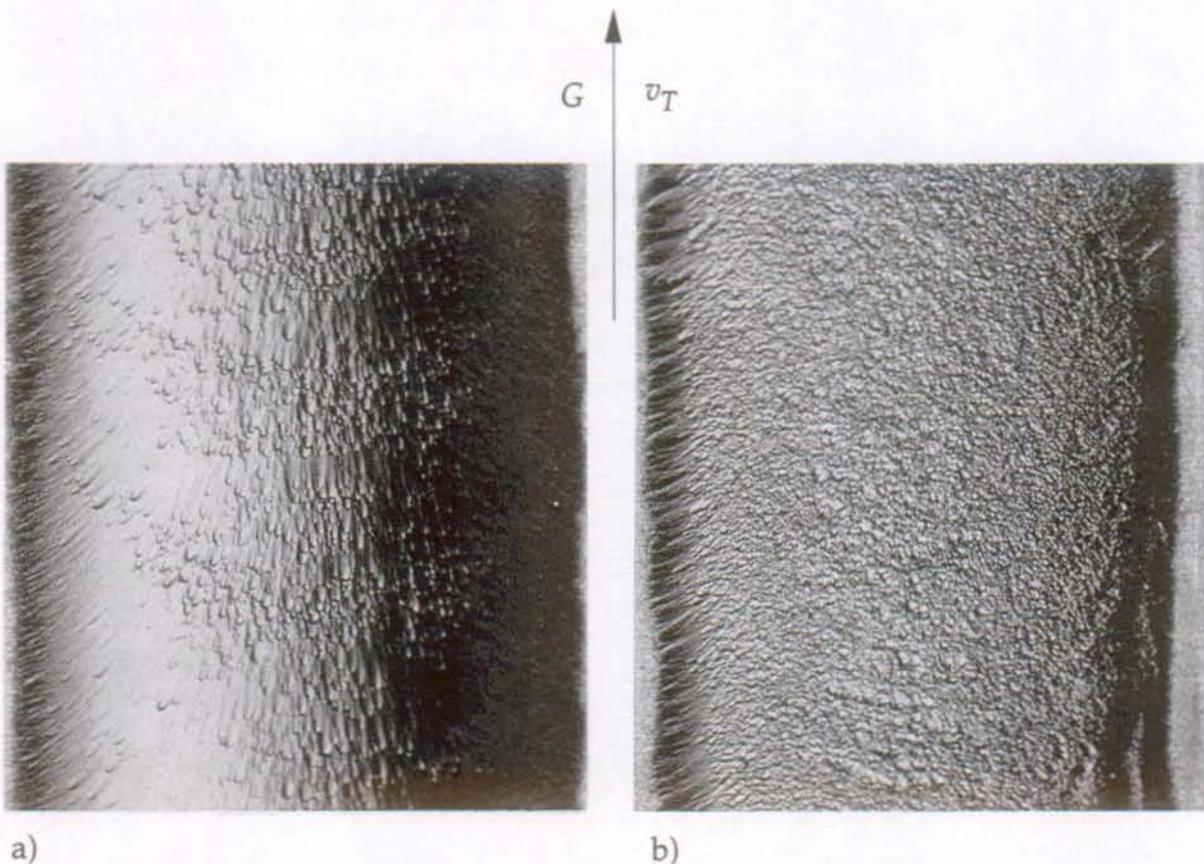


Figure 5.35 Comparaison de la surface des traces de l'échantillon Al-Si 26% effectuées à une vitesse de 0.05 m/s (a) et de à 0.1 m/s (b) (200x).

Dans les paragraphes qui suivent, la modélisation de la solidification de grains eutectiques dans un gradient va être utilisée pour tenter de reproduire et d'expliquer ces différents phénomènes. Dans un premier temps, le modèle

simple de germination à surfusion constante et densité de sites imposée va être utilisé pour démontrer l'influence des paramètres du procédé (gradient de température et vitesse des isothermes) et de germination (densité de sites et surfusion de germination) sur la microstructure formée. Dans un second temps, un modèle de germination plus réaliste, tenant compte de la germination du silicium dans un liquide de composition fixée, sera couplé au programme de croissance afin d'essayer de reproduire la dépendance en vitesse de balayage de la densité de particules de Si (fig. 5.34).

5.4.2 Modèle simple basé sur une surfusion de germination constante

Les résultats présentés dans cette section sont obtenus en utilisant la méthode mixte définie au sous-chapitre 4.3, en imposant une densité de grains, une surfusion de germination, un gradient thermique et une vitesse des isothermes constants. La vitesse normale de l'interface solide-liquide est donnée par le modèle de croissance de Jackson et Hunt avec une valeur de la constante A tirée du travail de Grugel et Kurz (1987). Sans indication contraire, les paramètres utilisés pour les calculs sont ceux donnés dans le tableau 5.7. Ces valeurs ont été estimées à partir du cas de refusion par laser montré à la figure 5.33. Le gradient thermique est estimé par un calcul de thermique tridimensionnelle (Hoadley *et al* (1991)). La surfusion de germination, ΔT_n , est définie par rapport à la température eutectique. Le problème est abordé, dans un premier temps, par une simulation bidimensionnelle.

Constante de Jackson et Hunt, A	$1 \cdot 10^{-5}$	$\text{ms}^{-1}\text{K}^{-2}$
Vitesse des isothermes, v_T	0.1	ms^{-1}
Gradient thermique, G	$2 \cdot 10^6$	Km^{-1}
Densité de grains, n_0	$1 \cdot 10^{11}$	m^{-2}
Distance entre les grains, L ⁽¹⁾	$4 \cdot 10^{-6}$	m
Surfusion de germination, ΔT_n	50	K

Tableau 5.7 Paramètres de base utilisés pour la simulation de la croissance de grains dans un gradient thermique.

Croissance d'un grain isolé

Le pourtour simulé d'un grain d'Al-Si ainsi que les 25 directions ayant servi au calcul sont dessinés à la figure 5.36, pour différents temps de solidification

(1) La distance, L , entre deux centres de grains est un des paramètres nécessaires pour le modèle analytique monodimensionnel décrit à l'annexe 3. Elle est approximativement donnée par $n_0^{-1/2}$.

(paramètres du tableau 5.7). Il est bien visible qu'un grain isolé se développe plus rapidement du côté le plus froid (aval) et s'éloigne de la forme circulaire au fur et à mesure de sa croissance.

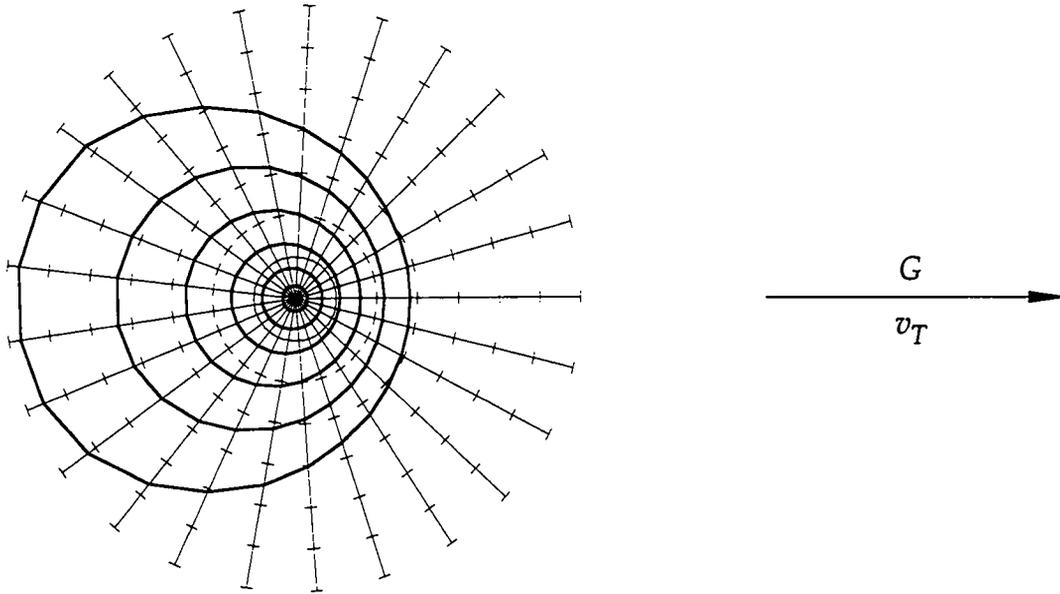


Figure 5.36 Evolution de la forme d'un grain eutectique se développant dans un gradient thermique. Les directions de tir sont également représentées. La distance entre deux graduations est de $5 \mu\text{m}$. L'intervalle de temps entre deux pourtours est de $200 \mu\text{s}$. Les conditions de calcul sont celles du tableau 5.7.

Cette tendance est confirmée par la figure 5.37, sur laquelle sont reportées les évolutions des rayons r_0 et r_π , calculés par le modèle analytique (voir annexe 3, eqs A3.17 et A3.18) et par l'intégration numérique des équations A3.8 et A3.9; r_0 et r_π se réfèrent aux positions en amont et en aval de l'interface par rapport au flux de chaleur (voir figure 4.6). L'intégration numérique se superpose exactement aux résultats analytiques, sauf aux valeurs élevées du temps, pour lesquelles l'accumulation des erreurs numériques commence à se faire sentir. Il convient de remarquer que la courbe $r_0 = r_0(t)$ est loin d'avoir atteint l'état stationnaire, qui serait donné par une pente égale à la vitesse des isothermes, v_T . Pour des temps très courts, les rayons r_0 et r_π sont superposés car la tangente naturelle et la tangente hyperbolique qui apparaissent dans la solution analytique (annexe 3) sont égales, au premier ordre, pour des arguments très petits. Ceci a pour conséquence que le grain, au début de la croissance, même dans un fort gradient thermique, est très proche de la forme sphérique.

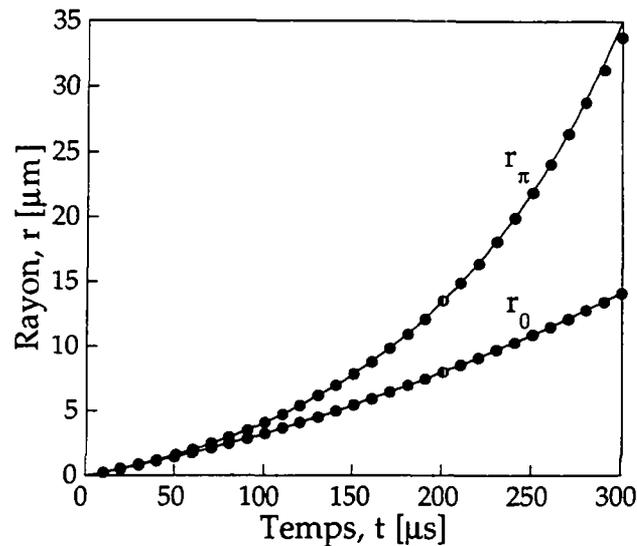


Figure 5.37 Comparaison de l'évolution des rayons amont, r_0 , et aval, r_π , calculés par la relation analytique (courbe continue) et par l'intégration numérique (disques noirs).

Croissance d'une famille de grains

La prise en compte d'un seul grain montre que la partie de l'interface en aval par rapport au flux de chaleur croît plus rapidement que la partie amont. Cette dernière tend vers un état stationnaire. La vitesse de l'interface amont est alors égale à celle des isothermes, v_T , la position de l'interface étant décalée de $\Delta T_c/G$, où $\Delta T_c = \sqrt{v_T/A}$ est la surfusion d'un front colonnaire. Cette situation est reflétée par la tangente hyperbolique apparaissant dans la solution analytique (voir annexe 3). En revanche, la position de l'interface du grain en aval du flux de chaleur croît dans du liquide de plus en plus surfondu et sa vitesse ne cesse d'augmenter. La solution analytique en tangente montre la nature "catastrophique" de cette croissance. Cependant, en présence d'une population de grains, la portion d'un grain en aval par rapport au flux de chaleur est limitée par l'interface amont des grains germés précédemment. C'est à nouveau la rencontre des grains qui va dicter leur forme finale plus allongée du côté amont, quand bien même la croissance est plus rapide du côté aval.

L'évolution d'une microstructure dépend essentiellement des quatre paramètres que sont: la surfusion de germination, $\Delta T_n = T_{eut} - T_{germ}$, la densité de grains, n_0 , la vitesse d'avance des isothermes, v_T , et le gradient thermique, G . Afin de caractériser la microstructure, il est utile de définir le facteur d'asymétrie, $S = d_0/d_\pi$, comme le rapport des distances maximales atteintes par un grain en amont et en aval à partir de son centre de germination. Le facteur d'asymétrie est égal à 1 pour un grain parfaitement équiaxe (sphérique) et tend vers l'infini pour un grain d'aspect colonnaire, cas pour lequel d_π est très petit par rapport à d_0 .

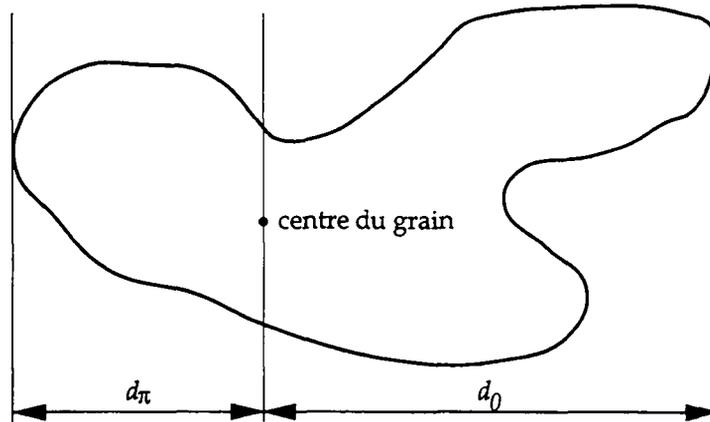


Figure 5.38 Le facteur d'asymétrie d'un grain est défini comme le rapport entre d_0 et d_π , où d_π est la distance entre le centre du grain et le point le plus éloigné dans la direction aval et d_0 la distance entre le centre du grain et le point le plus éloigné dans la direction amont par rapport au flux de chaleur. Les distances sont mesurées parallèlement à la direction z du traitement laser, supposée être également celle du gradient thermique, G .

La figure 5.39 résume l'influence des paramètres du procédé et des paramètres de germination sur l'asymétrie des grains. Les valeurs des paramètres qui ne figurent pas en abscisse d'un graphique sont celles du tableau 5.7. Sur chaque graphique figurent les résultats obtenus par le modèle analytique, par le modèle stochastique 2D et par le modèle stochastique 3D. La conversion des densités entre ces trois modèles est traitée de manière simplifiée, par les relations suivantes: $L = N_V^{-1/3}$ et $N_A = N_V^{2/3}$. Il faut remarquer que le modèle analytique ne considère qu'un couple de grains (modèle déterministe, voir annexe 3), alors que les résultats des calculs 2D et 3D proviennent directement de l'analyse des microstructures simulées. Dans ces deux derniers cas, le facteur d'asymétrie est une moyenne sur un grand nombre de grains (environ 1000 (2D) et environ 1500 (3D)). Les grains qui sont en contact avec l'un des bords amont ou aval de l'échantillon considéré ne sont pas pris en compte, afin d'éliminer l'effet de bord qui altère la forme des grains au voisinage de ces limites.

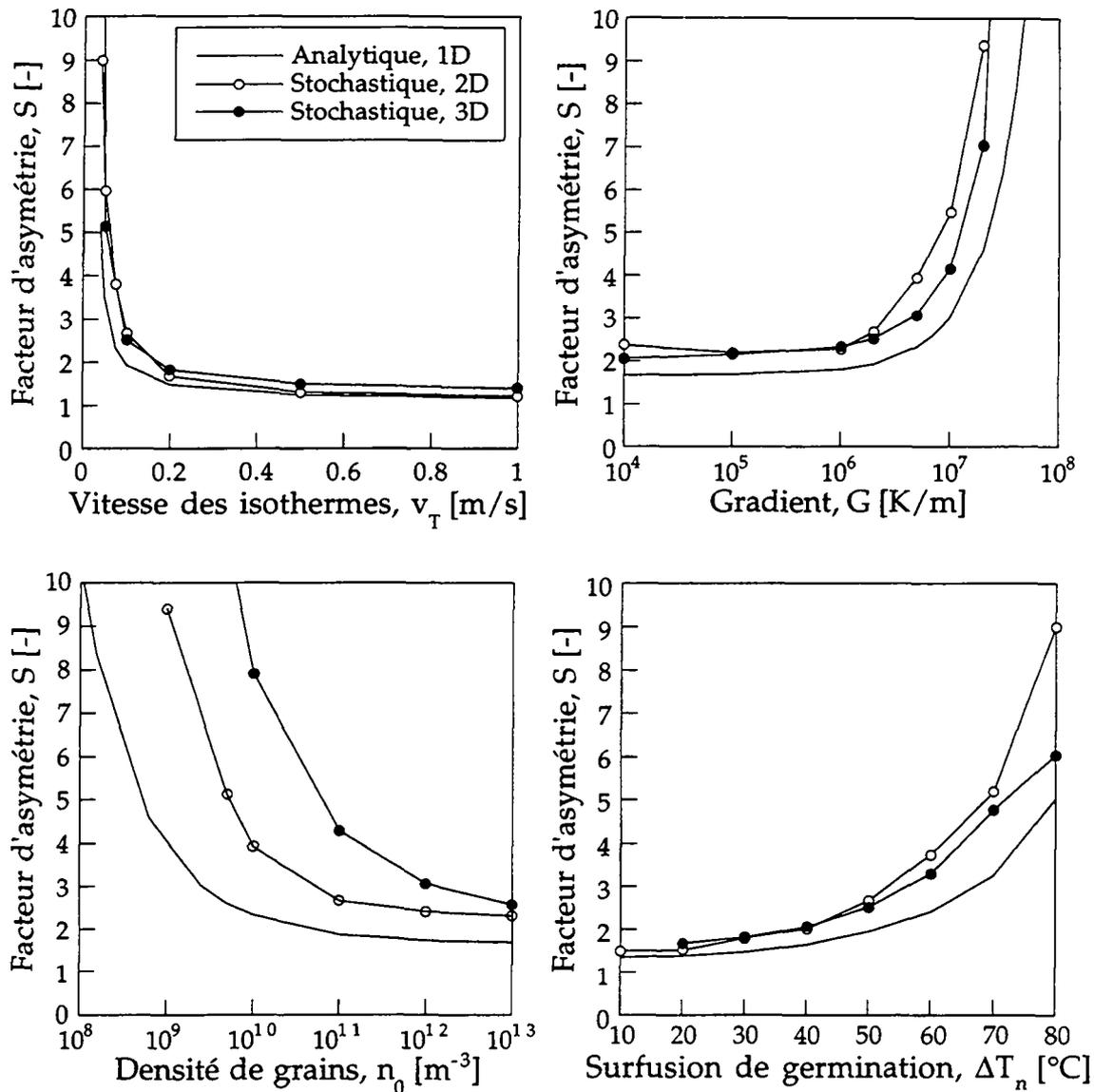


Figure 5.39 Influence des différents paramètres du procédé ou de germination sur le facteur d'asymétrie, S , et comparaison des différents modèles.

Le facteur d'asymétrie, pour de hautes vitesses des isothermes, tend vers l'unité. Ceci tient à deux faits: premièrement, le temps qui sépare la germination de deux grains voisins décroît lorsque la vitesse des isothermes augmente (les deux grains germent quasiment simultanément), et, deuxièmement, pour des vitesses des isothermes élevées, les valeurs de r_0 et r_π sont des fonctions linéaires du temps quasiment identiques. L'augmentation brusque du facteur d'asymétrie pour les faibles vitesses se produit lorsqu'un grain germe juste devant l'interface amont d'un grain précédemment formé. Il est aisé de montrer que ceci arrive lorsque la vitesse des isothermes, v_T , est égale à $A\Delta T_n^2$, ou, de manière équivalente, lorsque la surfusion de germination est égale à la surfusion d'un front colonnaire, ΔT_c , croissant à la vitesse v_T . Avec les valeurs du tableau 5.7, cette situation est celle

d'un front colonnaire croissant de manière stationnaire à une vitesse de 0.025 m/s, avec des grains germant continûment à la surfusion $\Delta T_n = \sqrt{v_T/A}$, juste devant le front de croissance.

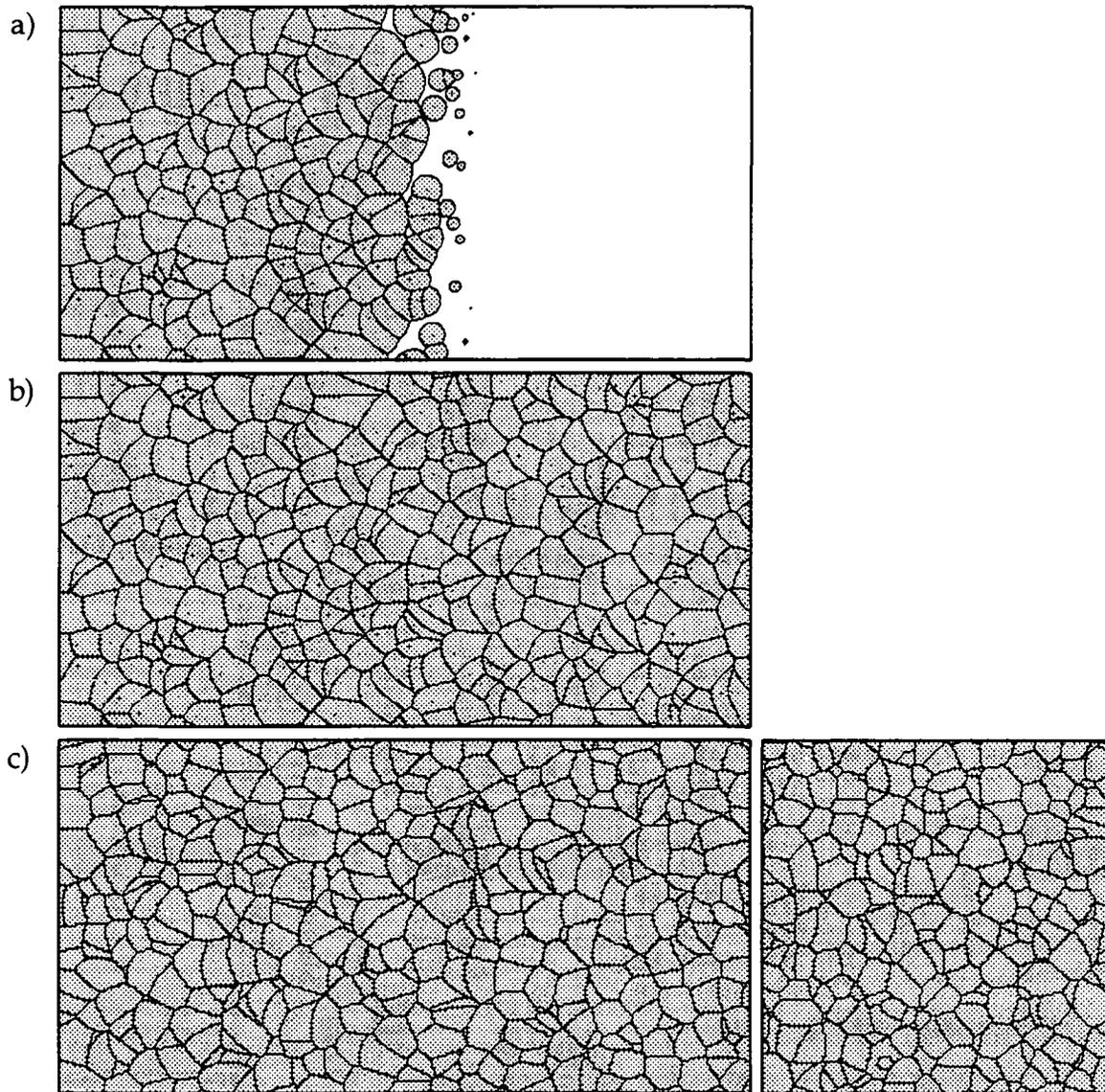


Figure 5.40 Microstructure simulée à l'aide du modèle 2D, en cours (a) et en fin de solidification (b), et à l'aide du modèle 3D (c). La microstructure 3D est représentée par une coupe 2D parallèle au gradient de température et par une coupe perpendiculaire. Les paramètres sont ceux du tableau 5.7. La grande longueur de l'échantillon mesure 80 μm .

L'influence du gradient sur le facteur d'asymétrie est différente. Dans le domaine 10^4 - 10^6 K/m, l'influence du gradient est très faible. Il est montré dans l'annexe 3 que lorsque le gradient tend vers 0, pour une vitesse de refroidissement finie, $-Gv_T = \dot{T} = \text{cst}$, les résultats convergent vers le cas de grains vraiment équiaxes. Dans le cas présent, où la situation est quelque peu différente puisque $v_T = \text{cste}$, \dot{T} augmente avec G . Lorsque le gradient augmente, l'asymétrie augmente elle aussi.

Cependant, contrairement à l'influence de la vitesse, v_T , pour laquelle S tend vers l'infini lorsque $v_T = A\Delta T_n^2$, il ne s'agit pas ici d'une divergence. Lorsque le gradient augmente, la région en surfusion devant l'interface amont des grains diminue et la place laissée pour la croissance des interfaces aval des grains diminue en conséquence. Il n'existe pas de gradient critique pour lequel le facteur d'asymétrie tendrait brusquement vers l'infini, mais le facteur d'asymétrie augmente linéairement dès que la différence de température entre les sites de germination de deux grains adjacents devient comparable à la différence $\Delta T_c - \Delta T_n$. Ceci correspond, dans le cas présent, à $G = 1.25 \cdot 10^7$ K/m. Ce comportement se reflète dans les équations A3.22 et A3.23, où le terme de gauche dépend de l'inverse du gradient, G^{-1} .

L'influence de la densité de grains sur le facteur d'asymétrie est exactement l'inverse de celle du gradient: le facteur d'asymétrie est à peu près constant pour les densités élevées et croît vers les faibles densités. Ceci peut s'expliquer par le fait que la densité est liée à l'inverse de la distance entre les grains, L , et que L joue à peu près le même rôle que G . Ainsi, le facteur S doit augmenter lorsque $GL > (\Delta T_c - \Delta T_n)$. Pour les conditions du tableau 5.7, ceci donne $L > 25 \mu\text{m}$ ou $n_0 < 6.4 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-3}$.

Finalement, l'influence de la surfusion de germination sur le facteur S est comparable à celle de la vitesse des isothermes: l'asymétrie tend vers l'infini lorsque $\Delta T_n = \Delta T_c = \sqrt{v_T/A}$. En d'autres termes, la divergence de la fonction S se produit lorsque la surfusion de germination est égale à la surfusion de croissance du front colonnaire, c'est-à-dire $\Delta T_n = 100 \text{ }^\circ\text{C}$ pour les conditions du tableau 5.7.

Microstructures simulées 2D et 3D

Les facteurs d'asymétrie sont peu sensibles au nombre de dimensions de la simulation, ceci est visible sur les courbes de la figure 5.39. Les légères différences peuvent s'expliquer par la procédure grossière utilisée pour déterminer la conversion des densités entre les différents modèles et par l'effet géométrique du passage 1D→2D→3D.

Les figures 5.41 et 5.42 montrent les microstructures simulées par le modèle 2D et par le modèle 3D, pour deux valeurs de la surfusion de germination (20 °C et 90 °C), donnant lieu à des facteurs d'asymétrie très différents. Les microstructures 2D et 3D sont très semblables, ce qui montre que, dans le cas d'une thermique monodimensionnelle, la simulation bidimensionnelle est suffisante pour représenter correctement la microstructure. En effet, la croissance eutectique, au contraire de la solidification dendritique, n'est influencée par aucune anisotropie. Chaque grain, s'il est fait abstraction de la rencontre, est caractérisé par une symétrie de rotation, dont l'axe est parallèle au gradient de température. Le

modèle analytique, monodimensionnel, est même suffisant, si seul le facteur d'asymétrie entre en considération.

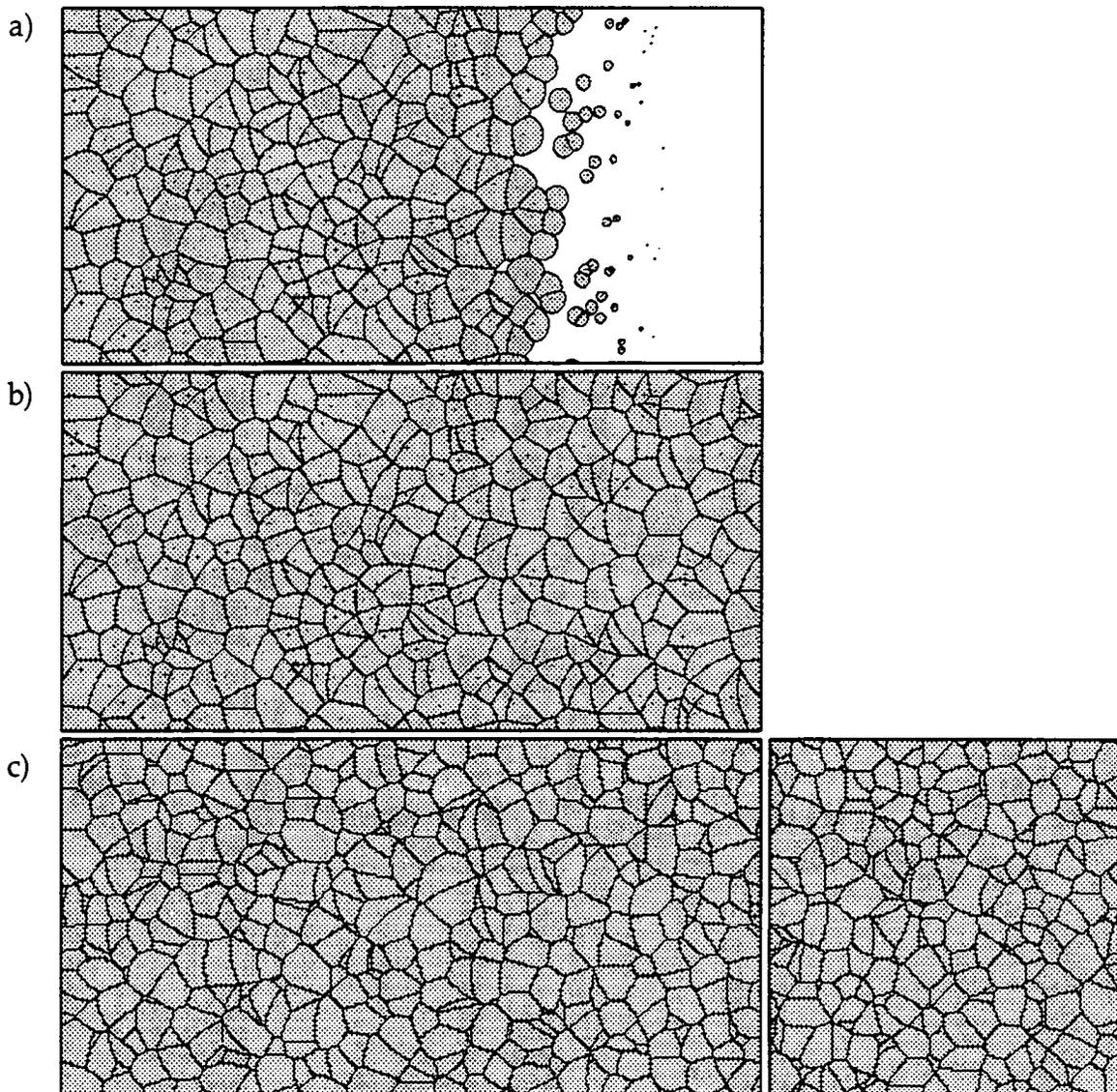


Figure 5.41 Figure obtenue dans les mêmes conditions que la figure 5.40, mais pour une surfusion de germination de 20 °C. La zone en avant du front de solidification, dans laquelle la germination peut se dérouler, est plus grande que dans le cas de la figure 5.40. Les grains ont ainsi plus de temps pour se développer avant l'arrivée du front de solidification et les grains sont plus équiaxes. La grande longueur de l'échantillon mesure 80 μm .

La coupe bidimensionnelle de la microstructure 3D perpendiculaire au gradient de température met en évidence une évolution de la microstructure: plus les grains s'éloignent du cas équiaxe, plus le nombre de grains comprenant peu de faces est élevé. Dans le cas à 90 °C de surfusion de germination, nombreux sont les grains qui ont seulement deux ou trois voisins dans la coupe.

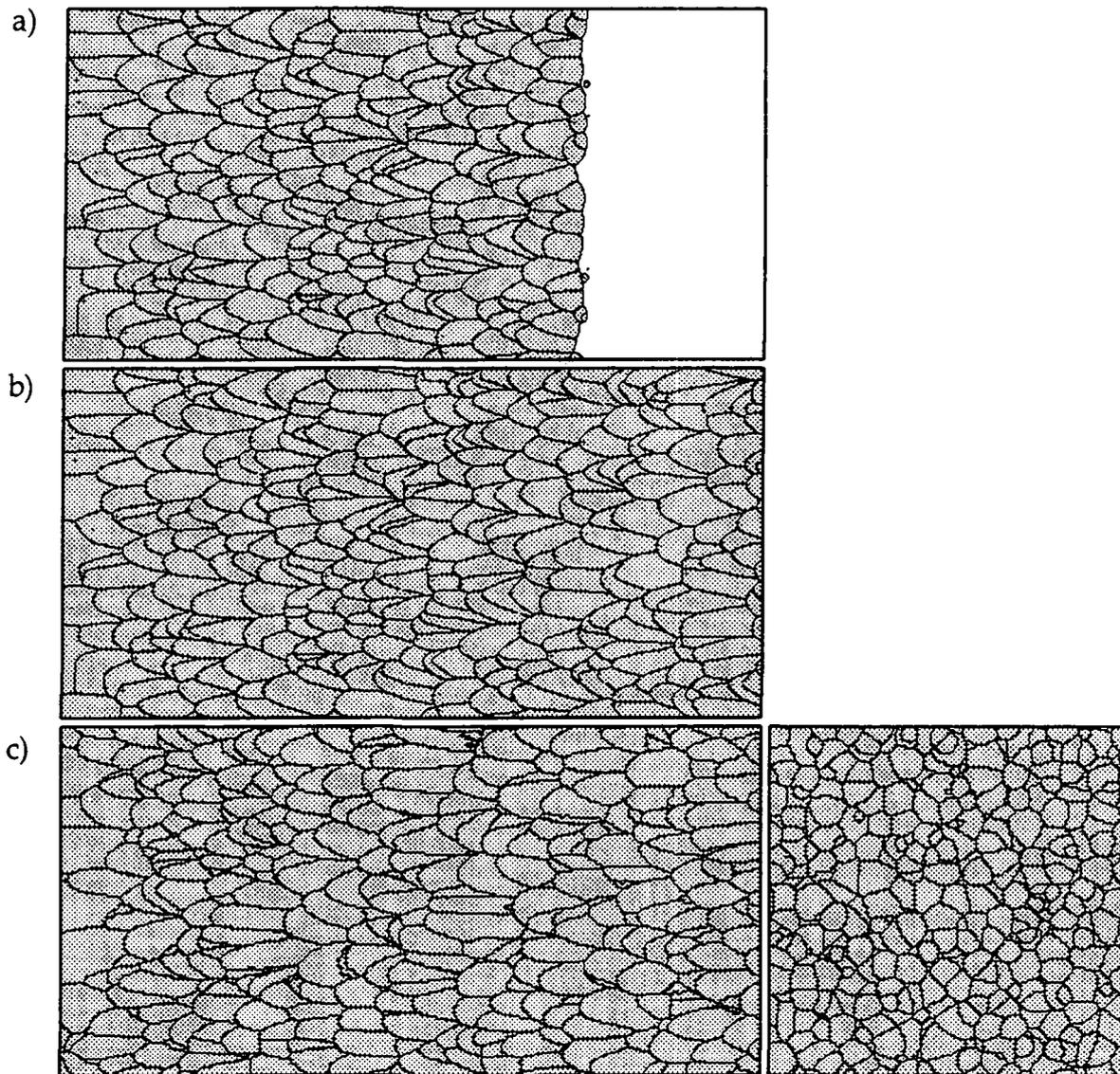


Figure 5.42 Figure obtenue dans les mêmes conditions que la figure 5.40, mais pour une surfusion de germination de 90 °C. Les grains sont très allongés car la zone où la germination peut se dérouler est réduite. Les grains ne peuvent pratiquement pas se développer du côté aval avant d'être rattrapés par le front de croissance, ils sont donc très colonnaires. La grande longueur de l'échantillon mesure 80 μm .

Comparaison des microstructures expérimentales et des résultats de la simulation

Le modèle simple, avec surfusion de germination constante, permet d'expliquer et de reproduire avec succès la formation des microstructures de solidification en "écailles". Il offre la possibilité de calculer l'influence des quatre paramètres principaux du problème sur les microstructures. Par contre, à cause de la surfusion de germination unique, il ne permet pas de reproduire certaines microstructures expérimentales, où il apparaît clairement que le grain central a rencontré, au cours de sa croissance, des grains germés après lui en aval et en

amont de sa position. Le modèle en surfusion unique de germination implique qu'un grain ne rencontre que des grains amont germés après lui et des grains aval germés avant lui. De plus, ce modèle ne considère pas de manière réaliste la croissance aux surfusions élevées. Dans les paragraphes suivants, cette limitation est levée par l'introduction d'une cinétique de croissance et d'une loi de germination plus réalistes.

5.4.3 Modèle basé sur une loi de germination réaliste

Dans une deuxième étape, il est nécessaire de prendre en compte la cinétique exacte de l'interface solide-liquide à de fortes surfusions et de considérer un modèle de germination plus réaliste. Pour la cinétique de croissance, le modèle de *TMK* est le plus approprié.

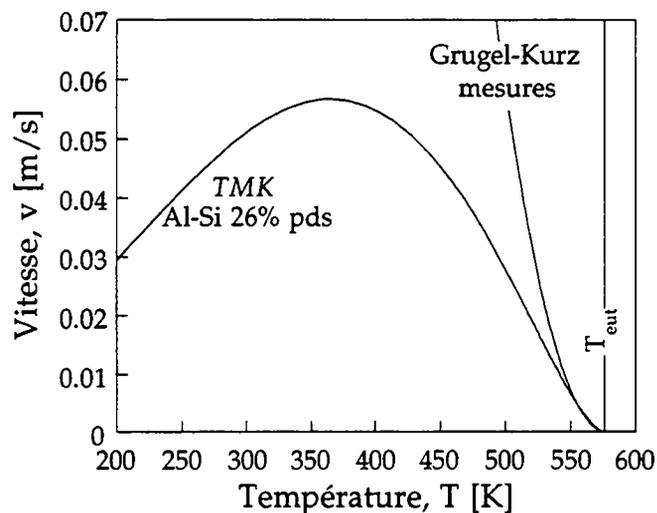


Figure 5.43 Comparaison entre la cinétique de croissance de l'Al-Si eutectique mesurée par Grugel et Kurz et celle prédite par le modèle de *TMK* pour l'Al-Si 26% pds. Pour les surfusions supérieures à 30 K, la divergence entre le modèle de *TMK* et le modèle de Jackson et Hunt devient importante.

Pour la germination, le modèle de Thompson et Spaepen a été appliqué, dans un premier temps, tel qu'il est décrit à la section 2.1.3. Il a ensuite été modifié pour prendre en compte les mesures de la tension de surface de Gündüz et Hunt (1985) et la détermination des enthalpies libres de Murray et McAlister (1984).

Application du modèle de Thompson et Spaepen, germination homogène

Pour ce modèle, la loi de germination est donnée par le système 2.16-2.20, avec les valeurs numériques suivantes:

x_{Al}	0.747	fraction atomique
T_f^{Al}	933	K
T_f^{Si}	1683	K
T_{liq}	1033	K
V_m^{Al}	9.99	cm ³ mol ⁻¹
V_m^{Si}	12.0	cm ³ mol ⁻¹
ΔS_f^{Al}	11.22	Jmol ⁻¹ K ⁻¹
ΔS_f^{Si}	30.07	Jmol ⁻¹ K ⁻¹

Tableau 5.8 Valeurs numériques des paramètres entrant dans le modèle de germination de Thompson et Spaepen pour l'alliage Al-Si 26% pds.

Les calculs ont été effectués pour un certain nombre de gradients thermiques et de vitesses des isothermes, afin de reproduire les conditions expérimentales des essais de Pierantoni *et al.* Le gradient thermique est estimé à $1 \cdot 10^7$, $2 \cdot 10^6$ et $1 \cdot 10^6$ K/m pour les vitesses de balayage de 0.5, 0.1 et 0.01 m/s. Ces estimations sont le résultat de la simulation numérique du procédé de refusion laser (Hoadley *et al* (1991)). Pierantoni *et al* ont mesuré la densité de particules de Si visibles sur une coupe 2D. Cette quantité a été transformée en une densité de grains 3D par la relation:

$$N_V = \frac{N_A^*}{\bar{D}} \quad 5.10$$

où \bar{D} est le diamètre moyen des particules de Si. Ce diamètre a été estimé à 1 μm pour toutes les vitesses de balayage.

La correspondance entre résultats simulés et résultats expérimentaux peut être considérée comme satisfaisante par qui garde en mémoire la très brusque variation du taux de germination en fonction de la surfusion (éq. 2.17). Le modèle de germination réaliste donne des microstructures plus proches de la réalité que le modèle à surfusion de germination constante, car la germination se déroule dans un intervalle de température et de temps. Ainsi, il est possible qu'un nouveau grain germe en aval d'un grain précédemment germé. Ceci permet à la microstructure de s'éloigner de la forme en "écailles".

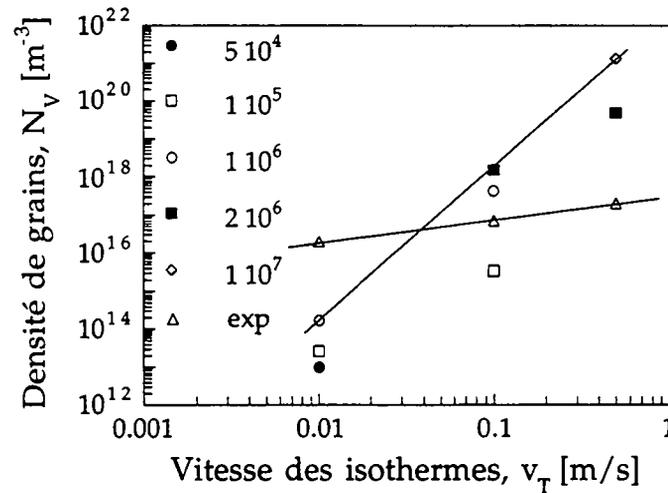


Figure 5.44 Comparaison des densités de grains obtenues par la simulation pour plusieurs valeurs du gradient de température et des densités mesurées expérimentalement par Pierantoni *et al* (1992). Les valeurs du gradient sont indiquées en légende [K/m]. Les droites tracées indiquent d'une part la régression à travers les points expérimentaux (triangles) et, d'autre part, la régression à travers les points résultats de la simulation qui correspondent le plus à la réalité.

Cependant, l'accord quantitatif des densités de grains est pauvre. Pour la vitesse de balayage de 0.5 m/s, le désaccord entre simulation et expérience est tout de même de près de quatre ordres de grandeur. Par ailleurs, la relation $N_V = Bv_T^\alpha$ apparaissant à la figure 5.44 donne un coefficient $\alpha = 0.59$ pour l'expérience et $\alpha = 4.04$ pour la simulation, ce qui est peu convaincant. Enfin, le modèle de Spaepen pour la tension de surface et le modèle de solution régulière pour la détermination de ΔG_V ne sont pas des plus précis. Aussi, dans une deuxième étape, des résultats plus récents de détermination des valeurs thermophysiques du système Al-Si ont été prises en compte.

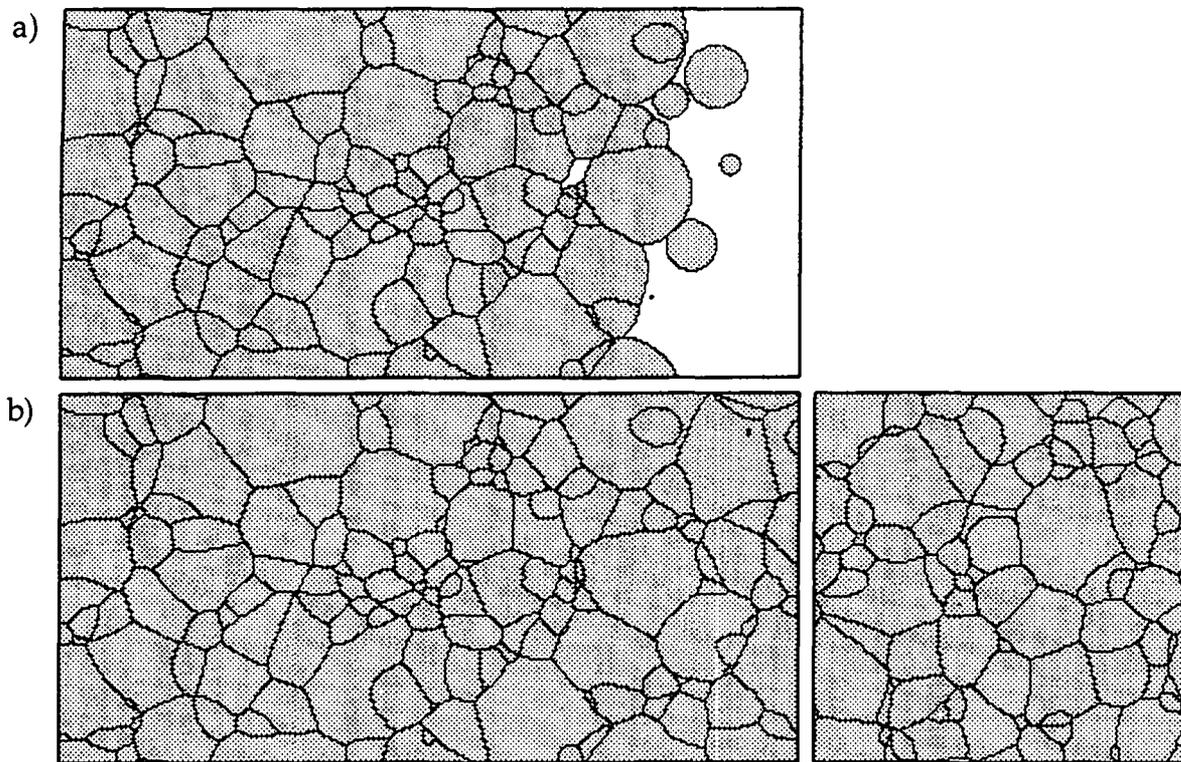


Figure 5.45 Microstructure obtenue pour la solidification de l'échantillon d'Al-Si 26% poids avec la méthode mixte, le modèle de croissance de *TMK* et le modèle de germination de Thompson et Spaepen. La vitesse des isothermes est de 0.1 m/s et le gradient de $2 \cdot 10^6$ K/m. La première figure est une coupe parallèle au gradient de température, en cours de solidification. Les deux suivantes sont une coupe parallèle et une coupe perpendiculaire au gradient de température, en fin de solidification. La grande longueur de l'échantillon mesure $15 \mu\text{m}$.

Application du modèle de Thompson et Spaepen modifié: germination hétérogène

Dans cette section, la tension de surface est prise comme constante et égale à la valeur mesurée par Gündüz et Hunt (1985):

$$\sigma = 3.52 \cdot 10^{-5} \text{ [J/cm}^2\text{]} \quad 5.11$$

Cette valeur a été déterminée expérimentalement pour l'équilibre entre le silicium solide et le liquide de composition eutectique à une température proche de la température eutectique. Cette valeur est certainement excellente dans ces conditions-là, mais le fait de considérer la tension de surface comme une constante ne permet pas de prendre en compte l'influence de la température et de la composition.

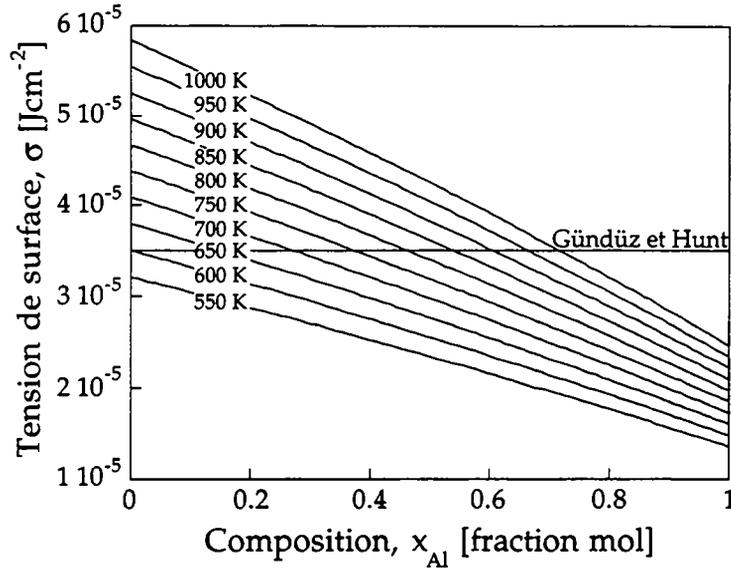


Figure 5.46 Comparaison de la tension de surface prédite par le modèle de Spaepen (certains domaines de composition et de température n’ont pas de sens physique) et de la valeur mesurée par Gündüz et Hunt

Les enthalpies libres sont données par les valeurs de Murray et McAlister (1984), en fonction de la composition et de la température:

$G^i = {}^0G_{\text{Al}}^i(1 - x) + {}^0G_{\text{Si}}^i x + RT[x \ln x + (1 - x) \ln(1 - x)] + x(1 - x)[A^i + B^i(1 - 2x) + C^i(1 - 6x + 6x^2)]$				
${}^0G_{\text{Al}}^{\text{liq}} = 0.$	${}^0G_{\text{Si}}^{\text{liq}} = 0.$	$A^{\text{liq}} = -10695.4 - 1.823 T$	$B^{\text{liq}} = -4274.5 + 3.044 T$	$C^{\text{liq}} = 670.7 - 0.460 T$
${}^0G_{\text{Al}}^{\text{diam}} = 30.0 T$	${}^0G_{\text{Si}}^{\text{diam}} = -50600 + 30.0 T$	$A^{\text{diam}} = 89138 - 31.445 T$	$B^{\text{diam}} = 0$	$C^{\text{diam}} = 0$
${}^0G_{\text{Al}}^{\text{cfc}} = -10792 + 11.56 T$	${}^0G_{\text{Si}}^{\text{cfc}} = 12.12 T$	$A^{\text{cfc}} = -200 - 7.594 T$	$B^{\text{cfc}} = 0$	$C^{\text{cfc}} = 0$

Tableau 5.9 Valeurs des enthalpies libres du système Al-Si prédites par Murray et McAlister (1984) en fonction de la fraction molaire de Si, x , et de la température, T , i désigne la phase: *liq* pour liquide, *diam* pour diamant (Si) et *cfc* pour cubique à face centrée (Al).

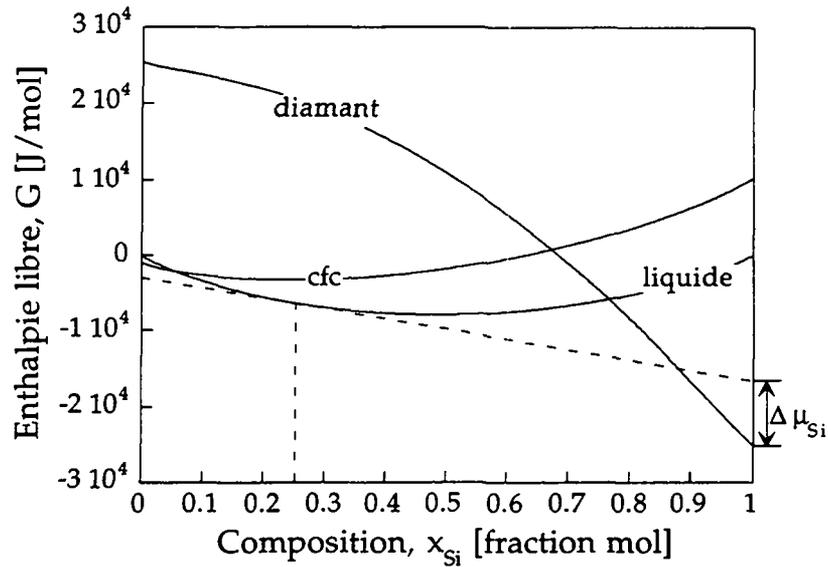


Figure 5.47 Courbes d'enthalpie libre du système Al-Si tracées à la température eutectique. L'intersection de la tangente à la courbe du liquide avec l'axe en $x_{Si} = 1$ donne le potentiel chimique du silicium dans le liquide. La différence entre cette quantité et l'enthalpie libre molaire du silicium pur solide de structure diamant permet de calculer le gain d'enthalpie libre molaire réalisé par la germination du silicium.

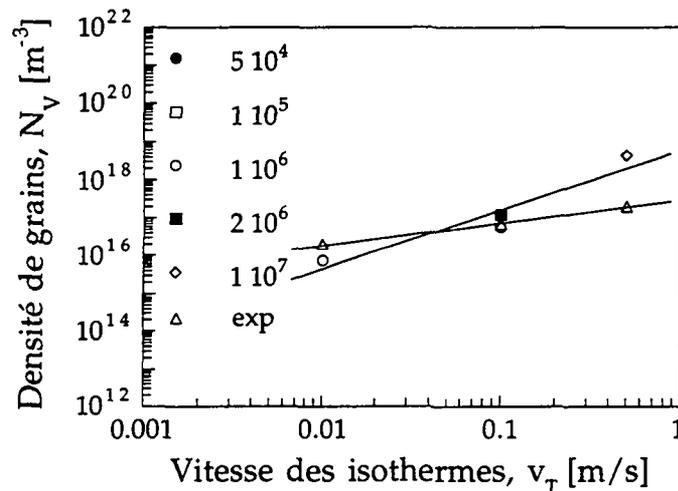


Figure 5.48 Comparaison des densités de grains obtenues par la simulation pour plusieurs valeurs du gradient de température et des densités mesurées expérimentalement par Pierantoni *et al* (1992). Les valeurs du gradient sont indiquées en légende [K/m]. Les droites tracées indiquent d'une part la régression à travers les points expérimentaux (triangles) et, d'autre part, la régression à travers les points résultats de la simulation qui correspondent le plus à la réalité.

Dans un premier temps, des calculs ont été réalisés avec le modèle de germination homogène et les nouvelles valeurs de la tension de surface et de l'enthalpie libre. Ces calculs prédisent que la microstructure de croissance pour la vitesse de balayage de 0.01 m/s devrait être colonnaire, ce qui est contraire à

l'observation expérimentale. La conséquence à tirer de cette constatation est que la germination est probablement hétérogène. De nouveaux calculs ont été réalisés, pour un facteur préexponentiel diminué d'un facteur 10^7 , comme le suggèrent Flemings ainsi que Thompson et Spaepen, et un facteur exponentiel multiplié par un $f(\theta)$ égal à 0.3.

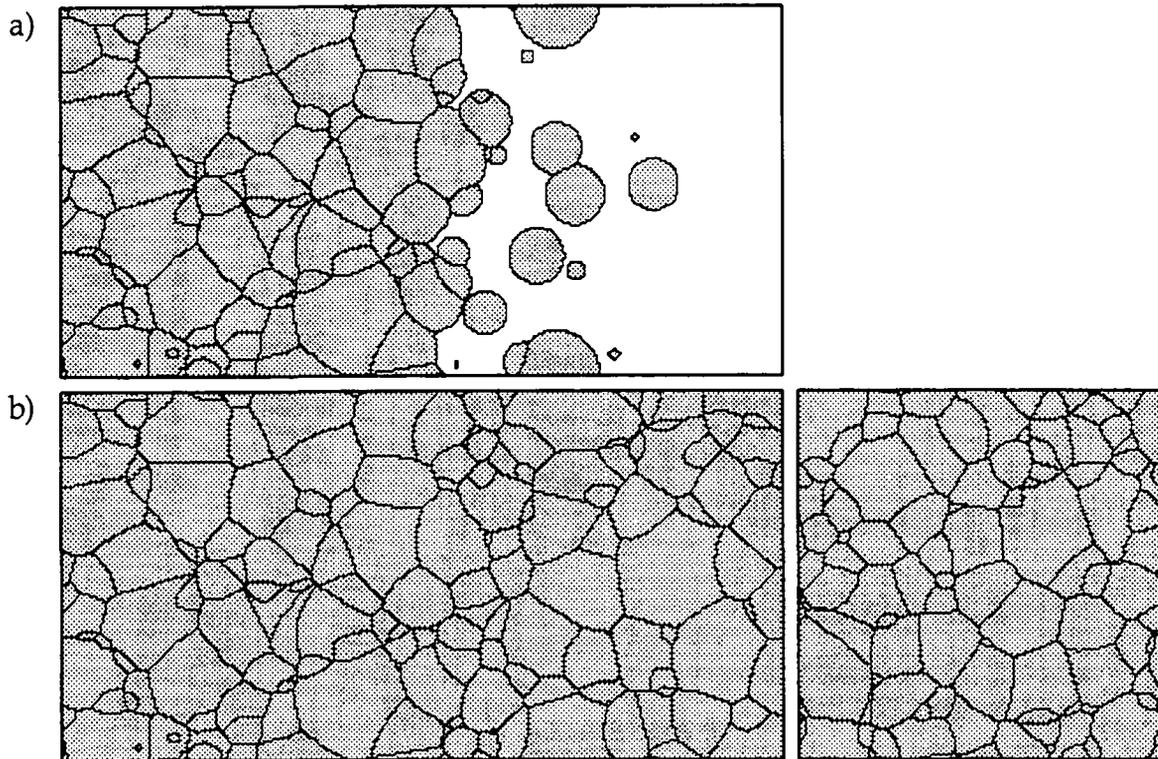


Figure 5.49 Microstructure obtenue pour la solidification de l'échantillon d'Al-Si 26% poids avec la méthode mixte, le modèle de croissance de *TMK* et le modèle de germination de Thompson et Spaepen modifié. La vitesse des isothermes est de 0.1 m/s et le gradient de $2 \cdot 10^6$ K/m. La première figure est une coupe parallèle au gradient de température, en cours de solidification. Les deux suivantes sont une coupe parallèle et une coupe perpendiculaire au gradient de température, en fin de solidification. La grande longueur de l'échantillon mesure 36 μm .

Les résultats obtenus avec ces nouvelles valeurs sont rassemblés à la figure 5.48. Les résultats simulés sont très proches des valeurs expérimentales, en tout cas bien plus proches que ceux obtenus pour la germination homogène. Un facteur inférieur à 20 sépare la valeur simulée de la valeur expérimentale. La relation $N_V = Bv_T^\alpha$ apparaissant à la figure 5.48 donne un coefficient $\alpha = 0.59$ pour l'expérience et $\alpha = 1.60$ pour la simulation, ce qui est une nette amélioration par rapport au résultat de la simulation de la germination homogène. La concordance doit être considérée comme satisfaisante. Il convient de garder en mémoire que la relation utilisée pour le passage d'une densité de particules 2D à

une densité de grains 3D est approximative. L'aspect des microstructures simulées n'est guère modifié, seule la taille des grains est affectée par l'introduction de la loi de germination hétérogène. La figure 5.49 en témoigne.

La germination est donc très probablement hétérogène dans le cas de la refusion laser. Il faudrait connaître avec une très grande précision les enthalpies libres des différentes phases ainsi que la tension de surface entre le Si solide et l'alliage liquide en fonction de la composition et de la température pour pouvoir décrire avec précision la germination. De plus, il faudrait également être à même de décrire le développement des particules primaires de Si et des cellules d'Al du début de la solidification pour prétendre à une description complète du procédé. Ainsi, seules les considérations qualitatives doivent être prises en compte. En l'état actuel des connaissances, il n'est pas possible de prétendre à un accord quantitatif parfait.

vitesse de balayage [ms^{-1}]	mesure	simulation, germ. hom.	simulation, germ. hét.
0.01	$2 \cdot 10^{16}$	$1.7 \cdot 10^{14}$	$7.3 \cdot 10^{15}$
0.1	$7 \cdot 10^{16}$	$1.5 \cdot 10^{18}$	$1.2 \cdot 10^{17}$
0.5	$2 \cdot 10^{17}$	$1.3 \cdot 10^{21}$	$4.3 \cdot 10^{18}$

Tableau 5.10 Comparaison des densités de grains [m^{-3}] expérimentales et résultats de la simulation pour différentes vitesses de balayage.

Si la germination pouvait être décrite avec précision, le modèle mixte permettrait de prédire une limite entre grains eutectiques équiaxes et eutectique colonnaire. Ceci permettrait de tracer une ligne de transition sur les cartes de microstructure (Pierantoni *et al* (1992)).

5.4.4 Application du modèle pour des conditions de coulée conventionnelle

L'exemple d'application choisi, la refusion par laser, pourrait laisser à penser que les grains s'éloignent de la forme équiaxe uniquement pour des gradients et des vitesses de refroidissement très élevés: il n'en est rien! En effet, l'analyse de l'asymétrie des grains développée à l'annexe 3 montre que ce facteur dépend du rapport G/v_T pour la partie concernant les paramètres du procédé et qu'il est fonction de $[n_0 (1 - \Delta T_n / \Delta T_c)]^{-1}$ pour ce qui est des paramètres de germination.

Un alliage d'Al-Zn a été coulé sur une plaque en cuivre, dans un moule cylindrique isolé latéralement et sur le côté opposé à la plaque refroidisseur. La microstructure résultante est présentée à la figure 5.50, en parallèle au résultat de la simulation 2D correspondante.

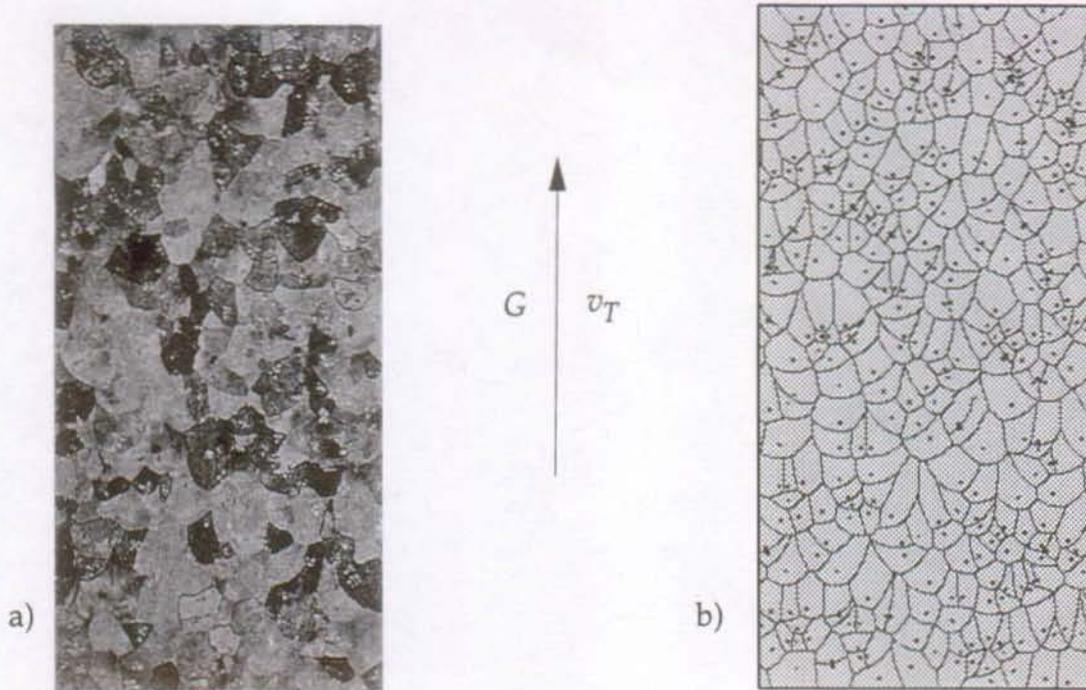


Figure 5.50 Microstructure expérimentale (a) et simulée (b) obtenue pour la coulée d'un alliage Al-Zn eutectique sur une plaque de cuivre (les autres côtés sont isolés) (50x). Les paramètres utilisés pour la simulation sont ($G = 2 \cdot 10^4 \text{ K/m}$, $v_T = 0.04 \text{ m/s}$, $\Delta T_n = 2 \text{ }^\circ\text{C}$, $n_0 = 2 \cdot 10^8 \text{ m}^{-2}$).

5.4.5 Conclusion intermédiaire

La méthode mixte a permis de reproduire les microstructures obtenues lors de la solidification eutectique équiaxe dans un gradient de température. Il a été montré que la rencontre des grains joue un rôle déterminant dans le développement de grains asymétriques. Un modèle théorique monodimensionnel a permis de montrer l'influence des quatre paramètres que sont la densité de grains et la surfusion de germination, le gradient thermique et la vitesse de refroidissement sur l'asymétrie des grains.

Afin de permettre une description précise de la refusion par laser de l'Al-Si, il serait nécessaire de disposer de valeurs thermodynamiques précises en fonction de la température et de la composition. Il serait également nécessaire de décrire la phase primaire de la croissance des grains eutectiques: croissance du cristal de Si, puis des cellules d'Al. Il a cependant été montré qu'il est possible de coupler la méthode stochastique avec un modèle de germination évolué. Seule la méthode stochastique permet de tenir compte de l'extinction des sites de germination lorsque les grains s'éloignent de la forme sphérique.

Le modèle de croissance de grains dans un gradient pourrait être appliqué sans beaucoup de modifications à la croissance des sphérolites de polymère. Ce sujet a déjà été abordé, par d'autres méthodes (Lovinger et Gryte (1976), Plummer et Kausch (1992)).

Si l'individu ne peut rien savoir, pourquoi tous les individus en sauraient-ils davantage? Une erreur, fût-elle vieille de cent mille ans, par cela même qu'elle est vieille, ne constitue pas la vérité! La foule invariablement suit la routine. C'est au contraire le petit nombre qui mène le progrès.

G. Flaubert, *Bouvard et Pécuchet*.

6 CONCLUSION

Trois modèles stochastiques de la solidification eutectique équiaxe ont été développés. Ils ont permis d'étudier dans le détail la formation des microstructures de solidification lorsque certaines des hypothèses habituellement retenues en modélisation de la solidification sont relaxées.

L'influence du mouvement des grains lors de la solidification d'un alliage eutectique a été montrée. L'influence sur les microstructures ainsi que sur les courbes de refroidissement est importante. Dans le cas d'un mouvement de sédimentation, cette influence est particulièrement marquée: de grandes variations locales de la fraction de solide peuvent être observées, malgré la thermique uniforme. L'influence d'une loi de germination instantanée ou d'une germination à taux constant a également été mise en évidence. La forme des interfaces intergranulaires en fonction de l'histoire thermique et des instants de germination des grains a également été démontrée.

L'influence de la vitesse de croissance propre à chaque grain lors de la solidification des fontes GS est très importante sur les distributions de taille. Elle est par contre très faible sur les évolutions de fraction de solide, sur la densité de grains et sur les courbes de refroidissement. Il a été montré que l'effet d'une coupe 2D à travers une microstructure 3D est d'atténuer très fortement les particularités des distributions de taille 3D. Pour cette raison, la méthode de déconvolution de Saltykov, qui permet de remonter des distributions de taille 2D aux distributions de taille 3D, n'est pas forcément recommandable. Il a été montré que, malgré la distribution de taille des grains, un modèle simple basé sur une taille de grain unique donne des résultats satisfaisants. Il a également été montré que la loi de croissance propre aux fontes à graphite sphéroïdal implique que les joints de grains sont des segments de droite, quels que soient les instants de germination des grains.

Le modèle de la solidification de grains dans un gradient thermique a permis de montrer l'influence des paramètres du procédé (gradient thermique et vitesse des isothermes) et des paramètres de germination (densité de grains et surfusion de germination) sur l'asymétrie des grains. Il a été montré que des grains

asymétriques peuvent aussi bien être obtenus en coulée classique qu'en refusion laser: l'asymétrie des grains est essentiellement une fonction du rapport G/v_T pour les paramètres du procédé et de $[n_0(1 - \Delta T_n/\Delta T_c)]^{-1}$ pour les paramètres de germination. Le modèle de croissance des grains dans un gradient thermique a également été couplé au modèle de germination de Thompson et Spaepen: un accord satisfaisant a été obtenu entre les résultats expérimentaux et les résultats du modèle. La nécessité de connaître précisément les valeurs thermodynamiques du problème en fonction de la température et de la composition de l'alliage a été mise en évidence.

Les modèles stochastiques développés dans ce travail donnent une image du déroulement de la solidification. L'aspect didactique de ces méthodes n'est pas à négliger (le déroulement de la solidification est directement visualisé à l'écran). Il est ainsi possible de mieux prendre conscience des relations stéréologiques liant les valeurs mesurées dans l'espace et celles mesurées dans le plan.

Si ces méthodes tridimensionnelles sont encore limitées à la modélisation de petites pièces en raison de la place mémoire et des temps de calcul qui leur sont nécessaires, il est imaginable que, dans un proche avenir, elles se développent très rapidement. Un couplage de la méthode de tir, par exemple, avec un calcul de la diffusion thermique à l'échelle de la pièce est envisageable. Il serait imaginable, dans un premier temps, de réaliser ce couplage pour un modèle 2D.

Ces modèles peuvent fournir une quantité de renseignements qui n'ont pas été exploités dans le présent travail. La formation et l'évolution de la microporosité, le comportement rhéologique des métaux à l'état semi-liquide, voire des applications dans d'autres domaines de la science des matériaux vont sans doute profiter des enseignements de ces méthodes dans un proche avenir. Dans cette optique, le présent travail constitue une base solide pour de futurs développements plus élaborés.

Le vrai patron est quelqu'un qui se mêle passionnément de votre travail, qui le fait avec vous, par vous.

J. Romains, *Les Hommes de bonne volonté*.

Remerciements

Un travail de doctorat est essentiellement un travail d'équipe: tout ce que j'ai appris, tout ce que j'ai développé au cours de ces quatre années, je le dois peu ou prou à mon entourage. Je tiens à exprimer ma sincère gratitude à tous ceux qui m'ont apporté leur soutien direct ou indirect, à tous ceux qui m'ont communiqué un peu de leur savoir, un peu de leur enthousiasme, un peu de leur amitié.

Au Prof. Michel Rappaz, qui m'a fait la confiance de m'engager dans le groupe simulation du LMPH, qui m'a encouragé et accompagné avec une compétence jamais mise en défaut et un enthousiasme inextinguible, mais aussi pour sa générosité et pour la course à pied,

Au Prof. Wilfried Kurz, qui m'a accueilli dans son laboratoire et a toujours porté un vif intérêt à mon travail, mais aussi pour avoir développé un ensemble de compétences hors du commun dans son laboratoire, et pour l'ambiance exceptionnelle faite de rigueur scientifique et de détente dans les rapports humains qui y règne,

Au Prof. Gérard Lesoult, qui m'a reçu à L'Ecole des Mines de Nancy, qui a accepté de partager les résultats obtenus dans son laboratoire, mais aussi pour avoir accepté de consacrer de son temps à la lecture et à l'évaluation de ce travail,

Au Prof. Jöns Hilborn et au Dr Franz Mampaey, pour avoir accepté de consacrer de leur temps à la lecture et à l'évaluation de ce travail,

Au Dr Charles-André Gandin, qui a lancé l'idée des méthodes stochastiques au LMPH, qui m'a beaucoup aidé pour le développement de la méthode cellulaire, mais aussi pour nombre de discussions et pour l'émulation résultant de notre rivalité,

Au Dr Marco Gremaud, pour les essais de refusion laser, pour les discussions sur la solidification rapide,

A Alain Jacot, pour le développement de la méthode de tir au cours de son travail de diplôme, pour un grand nombre de discussions, pour le partage

agréable de notre bureau commun, pour tant de jeux de mots, pour l'initiation à la peau de phoque,

A Christophe Berthod, pour sa participation au développement de l'application de la méthode cellulaire aux fontes GS au cours de son projet d'ingénieur,

A Jean-Luc Desbiolles, pour ses compétences en FORTRAN et dans le monde UNIX, pour la course à pied, et pour nos discussions sur les montres mécaniques et la musique des années 70,

A Jürgen Stramke, pour tout ce qui touche à l'expérience, pour les coulées, pour les plantes vertes,

A Jean-Daniel Wagnières, du CTML, pour les essais laser, mais aussi pour veiller avec acharnement à la pérennité des traditions du LMPH,

A Brian Neal, pour tout ce qui touche à la métallographie,

A Brian Senior, pour les observations au MEB,

A Philippe Rousset, pour la résolution des problèmes survenus au cours de la rédaction sur Macintosh, pour la course à pied,

A tous les collègues du LMPH pour l'ambiance exceptionnelle qui y règne, pour la collaboration toujours agréable, pour les verrées,

A l'atelier du DMX, plus particulièrement à Louis Masson et Werner Brönnimann, pour la réalisation soignée de nombre d'éprouvettes et de moules,

A mes parents, pour tout et pour m'avoir communiqué le goût de l'effort, et la prépondérance de l'essence sur l'apparence, à ma mère pour la relecture attentive du manuscrit de ce document,

A l'office fédéral de l'éducation et de la science (OFES), qui a financé ce travail dans le cadre du projet européen COST 504: *Advanced Casting and Solidification Technology*,

A tous ceux que j'oublie,

Un immense merci !

ANNEXE 1 DEVELOPPEMENTS PROBABILISTES

Le calcul des probabilités est très fécond en résultats analytiques exacts, comme le montrent les nombreux travaux présentés à la section 2.6.3. Ces résultats sont d'une grande utilité pour la simulation car ils fournissent une valeur théorique pour la validation des calculs numériques.

Dans cette annexe, la situation simple de grains germant simultanément au temps $t = 0$ et commençant immédiatement à croître à la même vitesse, $v(t)$, est considérée. Il n'est pas nécessaire de supposer que la vitesse est constante: il suffit que les grains soient tous caractérisés par un même rayon, $r(t)$, fonction du temps. La germination est aléatoire dans l'espace.

Dans un premier temps, deux méthodes seront données pour calculer la fraction de solide, f_s , et retrouver ainsi l'un des résultats de *KJMA*. L'expression *KJMA* de la fraction de solide est souvent utilisée ou citée dans la littérature sans que l'auteur réalise nécessairement comment elle a été obtenue et quelles sont les limites de son utilisation.

Ensuite, le taux de grains isolés en 3D et sur une coupe 2D à travers la microstructure 3D sera déduit. Le premier résultat a été publié par Markworth (1984) alors que le second est inédit.

Enfin, l'application d'un raisonnement de type probabiliste au cas d'un creuset de taille finie et au cas d'un nombre de grains peu élevé sera exposée. Ce développement permet de saisir les limites du modèle de *KJMA* et d'éliminer l'un des aspects gênants de ce modèle souvent invoqué, à savoir que les grains doivent atteindre une taille infinie pour que la fraction de solide soit égale à 1.

Calcul de la fraction de solide

Comme souvent en calcul des probabilités, il est plus facile de retourner le problème et de chercher à exprimer la fraction de liquide. En termes de probabilité, la fraction de liquide est équivalente à la probabilité qu'un point quelconque de l'espace soit encore liquide à l'instant t . Si N grains germent à l'instant $t = 0$ dans un creuset cubique de côté L , il faut, pour qu'un point de l'espace soit encore liquide, qu'aucun grain n'ait germé à l'intérieur de la sphère de rayon $r(t)$ centrée sur le point considéré. La probabilité, p , qu'un grain germe à l'extérieur de la sphère en question est simplement donnée par le rapport entre le volume autorisé pour la germination du grain et le volume total:

$$p = \left[\frac{L^3 - \frac{4}{3}\pi r^3(t)}{L^3} \right] \quad \text{A1.1}$$

La probabilité, p_l , qu'aucun des N grains n'ait germé à l'intérieur de la sphère est simplement donnée par p élevé à la puissance N (probabilité combinée d'événements indépendants):

$$p_l = p^N = f_l = \left[\frac{L^3 - \frac{4}{3}\pi r^3(t)}{L^3} \right]^N \quad \text{A1.2}$$

L'introduction de la densité de grain, $n = N/L^3$, permet d'exprimer la fraction de liquide comme:

$$f_l = \left[\frac{\frac{N}{n} - \frac{4}{3}\pi r^3(t)}{\frac{N}{n}} \right]^N = \left[1 - \frac{n}{N} \frac{4}{3}\pi r^3(t) \right]^N \quad \text{A1.3}$$

Il suffit alors d'utiliser la limite

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \left(1 - \frac{x}{N} \right)^N = e^{-x} \quad \text{A1.4}$$

pour obtenir l'expression finale

$$f_l = \exp \left[-n \frac{4}{3}\pi r^3(t) \right] \quad \text{ou} \quad f_s = 1 - f_l = 1 - \exp \left[-n \frac{4}{3}\pi r^3(t) \right] \quad \text{A1.5}$$

Cette relation n'est exacte, passage à la limite oblige, que pour N grand; ce qui signifie que soit la densité de grains, soit la taille du creuset doit être élevée. Il peut paraître surprenant que, dans la relation A1.5, il faille que le rayon, $r(t)$, soit infini pour que la fraction de solide soit égale à 1. Ceci vient du passage à la limite qui impose une taille du creuset très grande par rapport à la taille finale des grains. Le résultat de *KJMA* est une moyenne de toutes les configurations de grains possibles. L'une des configurations est que tous les grains germent en un seul point. Il faut bien, alors, que le rayon des grains soit très grand (infini), pour atteindre les extrémités d'un creuset très grand (infini). Cependant, la probabilité d'un tel événement est très faible, c'est pourquoi la fraction de solide converge très rapidement vers une valeur proche de 1. Une valeur $f_s = 99.99$ est atteinte pour un rayon normalisé⁽¹⁾ égal à 2.1 seulement. Dans la dernière section de cette

(1) Le facteur de normalisation est défini ici comme $\bar{r} = \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi n}}$, le rayon de la sphère de volume égal au volume final moyen des grains.

annexe, le cas d'un nombre de grains fini germant dans un creuset de taille finie sera discuté. Ce développement permet d'éliminer cette anomalie.

Une autre manière, plus rapide, de parvenir au même résultat, est de réaliser que le processus de croissance suit une loi de Poisson (Ruegg (1985)):

$$p(k = i) = e^{-E} \frac{E^i}{i!} \quad \text{A1.6}$$

où E est le nombre moyen de grains qui sont passés par un point à l'instant t et $p(k = i)$ est la probabilité que exactement i grains soient passés par le point considéré, sachant que, en moyenne, E grains sont passés par chaque point. La rencontre des grains n'est pas considérée dans ce cas: il s'agit de grains de la microstructure étendue.

Pour autant que la germination soit aléatoire, le nombre moyen de sphères qui passent par un point est égal au nombre de grains germés à l'intérieur de la sphère de rayon $r(t)$ centrée sur ce point:

$$E = n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \quad \text{A1.7}$$

Ainsi,

$$p(k = i) = \exp \left[-n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \right] \left[n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \right]^i / i! \quad \text{A1.8}$$

La probabilité qu'un point soit encore liquide à l'instant t est égale à la probabilité qu'aucun grain ne soit passé par ce point, donc:

$$f_l = p(k = 0) = \exp \left[-n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \right] \left[n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \right]^0 / 0! = \exp \left[-n \frac{4}{3} \pi r^3(t) \right] \quad \text{A1.9}$$

qui est bien le même résultat que celui de la relation A1.5. La relation A1.8 permet de calculer la probabilité que i sphères soient passées par un point; cette quantité permet d'estimer le nombre de grains dans un amas (Lorenz (1989)) ou le nombre de faces d'un grain (Charbon (1993)).

Taux de grains isolés en 3D

Le calcul des probabilités permet très aisément de calculer cette quantité: pour qu'un grain soit isolé, il faut qu'aucun autre grain ne germe à l'intérieur de la sphère concentrique de rayon $R(t) = 2r(t)$. Par un raisonnement strictement analogue à celui permettant de calculer la fraction de solide, il vient:

$$p_{isol} = \left[\frac{L^3 - \frac{4}{3} \pi R^3(t)}{L^3} \right]^{N-1} \underset{N \rightarrow \infty}{=} \exp \left[-n \frac{4}{3} \pi 8 r^3(t) \right] = [1 - f_s(t)]^8 \quad \text{A1.10}$$

Qui est bien le résultat obtenu par Markworth (1984).

Taux de grains isolés dans une coupe 2D à travers la microstructure 3D

La situation est très similaire mais néanmoins plus compliquée que celle du cas précédent: un grain peut très bien apparaître isolé sur une coupe 2D mais appartenir à un amas en 3D.

Par un raisonnement géométrique, il est aisé de se convaincre qu'un grain de rayon $r(t)$ apparaît comme isolé dans une coupe 2D si aucun grain n'a germé à l'intérieur de la figure définie par l'ensemble des sphères de rayon $r(t)$ centrées sur le pourtour du cercle défini par l'intersection entre le grain considéré et le plan de coupe. Le volume de cette figure, V_{out} , ne dépend pas uniquement du rayon du grain, $r(t)$, mais également de la distance, h , entre le centre du grain et le plan de coupe:

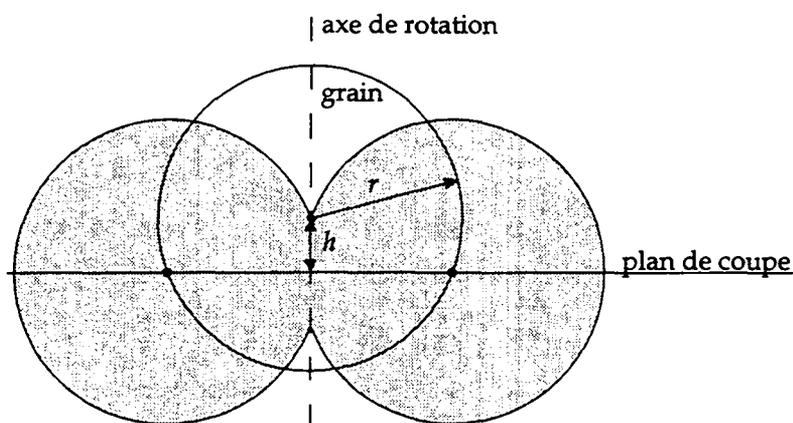


Figure A1.1 La figure obtenue par la rotation de la surface ombrée autour de son axe de symétrie vertical est le volume à l'intérieur duquel aucun grain ne doit germer pour que le grain considéré apparaisse comme isolé sur le plan de coupe.

Pour une position du centre du grain, h , fixée, la probabilité que celui-ci soit isolé dans la coupe est donnée, comme précédemment, par:

$$p_{isol}(h) = \exp [- nV_{out}(h)] \quad \text{A1.11}$$

Le taux de grains isolés, tx_{isol} , est donné par la moyenne de $p_{isol}(h)$ calculée sur toutes les positions h possibles, soit pour h variant entre 0 et $r(t)$. Ce passage à la moyenne est justifié pour autant que la germination soit aléatoire, c'est à dire que toutes les positions h soient équiprobables. Dans ce cas, le taux de grains isolés est donné par la résolution du système d'équations A1.12-A1.14:

$$tx_{isol} = \frac{1}{r} \int_0^r \exp [- nV_{out}(h)] dh \quad \text{A1.12}$$

$$V_{out}(h) = 2\pi (\sqrt{r^2 - h^2} [\frac{1}{3} h^2 + \frac{2}{3} r^2] + hr^2[\pi - \arccos(\frac{h}{r})]) \quad A1.13$$

$$f_s = 1 - \exp[-\frac{4}{3}\pi r^3] \quad A1.14$$

Sur la figure A1.2 sont tracées les deux courbes du taux de grains isolés en 3D et sur une coupe 2D à travers la microstructure 3D. Cette dernière peut être approximée par la relation

$$tx_{isol} = (1 - f_s)^{2.3} \quad A1.15$$

avec une erreur absolue inférieure à ± 0.02 . A titre de comparaison, la courbe du taux de grains isolés dans le cas bidimensionnel de la germination de grains circulaires dans un plan est également tracée sur cette figure. Il est facile de montrer que cette valeur est donnée par

$$tx_{isol} = (1 - f_s)^4 \quad A1.16$$

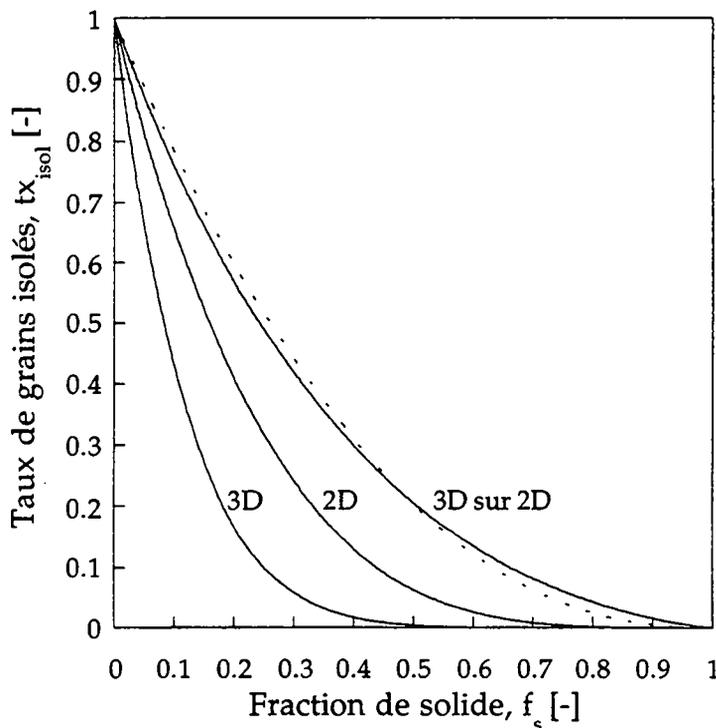


Figure A1.2 Taux de grains isolés calculé pour une microstructure 3D, pour une coupe 2D à travers cette microstructure (3D sur 2D) et pour une microstructure 2D. L'approximation $tx_{isol} = (1 - f_s)^{2.3}$ est tracée en traitillé.

La comparaison des taux de grains isolés montre, comme l'intuition le laissait prévoir, que le taux de grains isolés sur une coupe 2D est toujours plus élevé que le taux de grains isolés de la microstructure 3D. Le taux de grains isolés en 3D atteint une valeur virtuellement nulle pour une fraction de solide voisine de

$f_s = 0.5$, alors que le taux de grains isolés sur une coupe est encore supérieur à 20 %.

Limites du modèle de *KJMA*, cas d'un creuset de taille finie

Comme discuté lors du passage à la limite pour le calcul de la fraction de solide, il faut, pour que le résultat de *KJMA* soit applicable, que le nombre de grains soit élevé. Ceci n'empêche pas que, dans le cas d'un creuset de taille finie, un effet de bord se fasse sentir près des limites du creuset.

Afin de simplifier les expressions dans ce qui suit, une situation bidimensionnelle est considérée. Les résultats qui vont être présentés peuvent être, sans grandes difficultés, étendus au cas 3D. N grains germent simultanément en $t = 0$ à l'intérieur d'un "creuset" circulaire de rayon R . Ces grains commencent immédiatement à croître et sont caractérisés par un même rayon, $r(t)$. Dans ce cas-là, la fraction de solide est fonction de la position radiale, R_c , par rapport au centre du creuset. En effet, pour qu'un point soit encore liquide, il faut qu'aucun grain ne germe à l'intérieur du cercle de rayon $r(t)$ centré sur ce point. Si la position radiale de ce point, R_c , est plus grande que $R - r(t)$ dans le cas où le rayon des grains est inférieur à celui du creuset, ou plus petite que $r(t) - R$ dans le cas contraire, le cercle de rayon $r(t)$ est coupé par le bord du creuset, et la surface d'exclusion pour la germination, A_{out} , n'est plus égale à $\pi r^2(t)$ dans le premier cas ou πR^2 dans le second, mais à la somme de deux segments circulaires (l'un de rayon r et d'angle α , l'autre de rayon R et d'angle β):

$$A_{out} = \frac{1}{2}r^2(\alpha - \sin\alpha) + \frac{1}{2}R^2(\beta - \sin\beta) \quad A1.17$$

avec

$$\cos\left(\frac{\alpha}{2}\right) = \frac{r^2 + R_c^2 - R^2}{2R_c r} \quad \text{et} \quad \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) = \frac{R^2 + R_c^2 - r^2}{2RR_c} \quad A1.18$$

Les angles α et β sont définis à la figure A1.3.

La fraction de solide n'est alors plus une valeur moyenne pour tout le creuset mais une fonction de la position radiale R_c . La fraction de solide moyenne, \bar{f}_s , doit être calculée par une intégrale sur R_c . Cette valeur sera calculée à la fin de cette section. La fraction de solide locale peut à nouveau être exprimée par

$$f_s(R_c) = 1 - \exp[-nA_{out}] \quad A1.19$$

mais f_s est une fonction de R , R_c et $r(t)$. Ainsi, plutôt que de parler de fraction de solide moyenne pour tout le creuset, il faut considérer la fraction de solide en chaque position R_c .

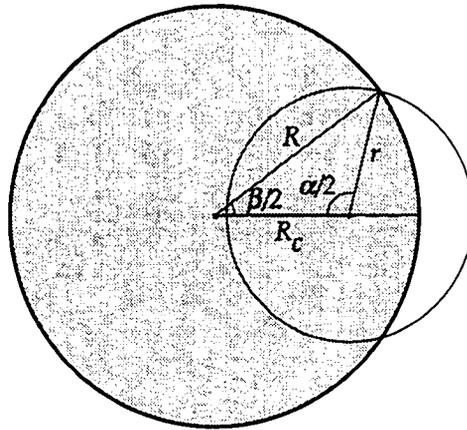


Figure A1.3 Représentation de l'intersection d'un cercle de rayon r centré en R_c avec le bord du creuset (en ombré) de rayon R et définition des angles α et β .

La figure A1.4 présente le résultat obtenu pour 100 grains germés dans un creuset de rayon $R = 1$ à différentes tailles des grains. Lorsque la taille des grains augmente, la zone influencée par le bord du creuset augmente, jusqu'à ce que le rayon des grains atteigne une valeur égale au rayon du creuset, avant de diminuer jusqu'à ce que le rayon des grains atteigne une valeur égale au diamètre du creuset. Cette zone est effectivement la couronne de rayon extérieur R et de rayon intérieur $R - r(t)$ lorsque le rayon des grains est inférieur au rayon du creuset ou $r(t) - R$ dans le cas contraire. La différence absolue entre la fraction de solide au bord du creuset et en son centre est supérieure à 20% pour un rayon des grains $r(t) = 0.1$.

Une autre limitation du modèle est le passage à la limite (éq. A1.4), qui n'est justifié que dans le cas où le nombre de grains est élevé. Le calcul précédent a été répété pour un nombre de grains égal à 10. Dans ce cas-là, le passage à la limite n'est plus très précis. Le calcul de la puissance (équivalent 2D de l'éq. A1.3) a été effectué parallèlement à celui de l'exponentielle (équivalent 2D de l'éq. A1.5). Les résultats sont tracés à la figure A1.5. L'erreur commise par le passage à la limite peut atteindre plus de 2% en valeur absolue.

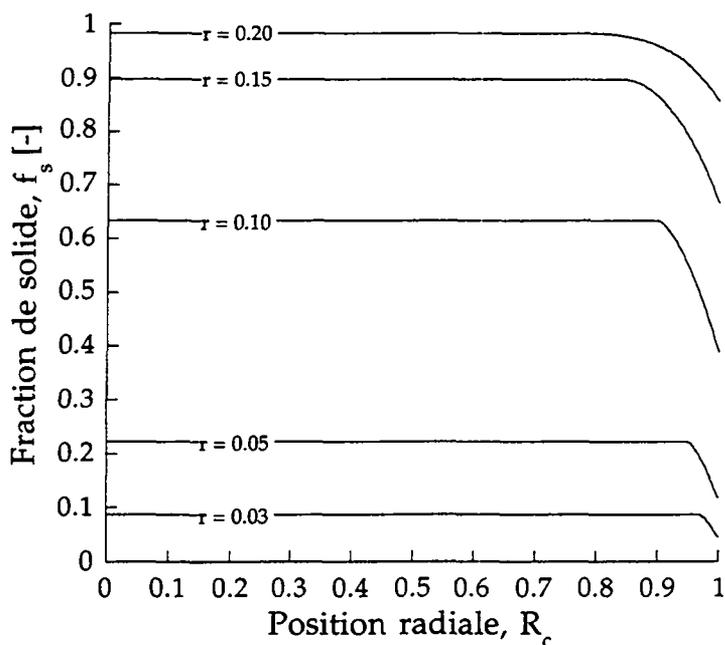


Figure A1.4 Fraction de solide en fonction de la position radiale dans un creuset circulaire de rayon $R = 1$ à l'intérieur duquel 100 grains de rayon r ont germé.

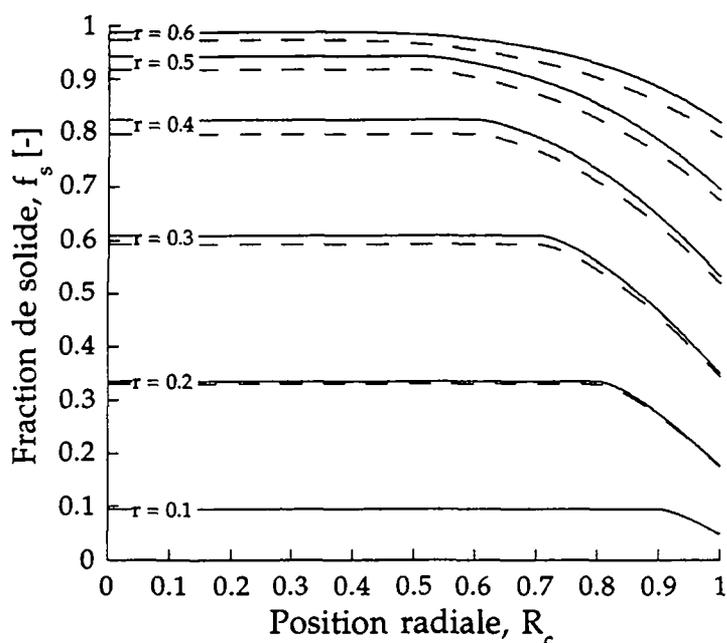


Figure A1.5 Fraction de solide en fonction de la position radiale dans un creuset circulaire de rayon $R = 1$ à l'intérieur duquel 10 grains de rayon r ont germé. La courbe en traitillé est la prédiction du modèle avec l'exponentielle (éq. A1.5). La courbe continue est calculée avec la puissance (éq. A1.3). Malgré le nombre de grains peu élevé dans l'échantillon, l'approximation par l'exponentielle reste assez précise.

Le fait de prendre en compte la taille finie du creuset permet d'obtenir une expression de la fraction solide qui ne nécessite pas que $r(t)$ tende vers l'infini pour que la fraction de solide soit égale à 1. En effet, la situation la plus

défavorable est celle où tous les grains germent en un même point de la surface du creuset. Dans ce cas, dès que le rayon des grains est égal au diamètre du creuset, la totalité de l'échantillon est solidifiée. Cette valeur, $r(t) = 2R$, est donc la valeur limite à partir de laquelle $f_s = 1$. Cette particularité est présentée à la figure A1.6 où la fraction de solide en fonction du rayon $r(t)$ pour 10 grains germés dans un creuset de rayon $R = 1$ a été calculée par la méthode présentée dans cette section; il s'agit de la moyenne sur tout le creuset des fractions de solide exprimées par la relation A1.19:

$$\bar{f}_s = \frac{\int_0^R 2\pi R_c f_s(R_c) dR_c}{\pi R^2} \quad \text{A1.20}$$

La fraction de solide a également été calculée par l'équivalent en 2D de la relation A1.5 (*KJMA*). Les courbes obtenues divergent très légèrement: la solution de *KJMA* prédit apparemment une valeur de la fraction de solide toujours supérieure à celle du modèle exact, car elle ne tient pas compte de l'effet de bord. Les deux valeurs sont néanmoins très voisines. Cependant, la représentation de la fraction de liquide en échelle logarithmique permet de montrer que la solution exacte tend asymptotiquement vers 0 lorsque le rayon des grains devient voisin du diamètre du creuset; ce qui indique que la fraction de solide tend bien vers 1 pour cette limite. La courbe du modèle de *KJMA* ne montre pas de comportement asymptotique et ne cesse jamais de décroître: elle ne prend une valeur nulle que pour un rayon des grains tendant vers l'infini.

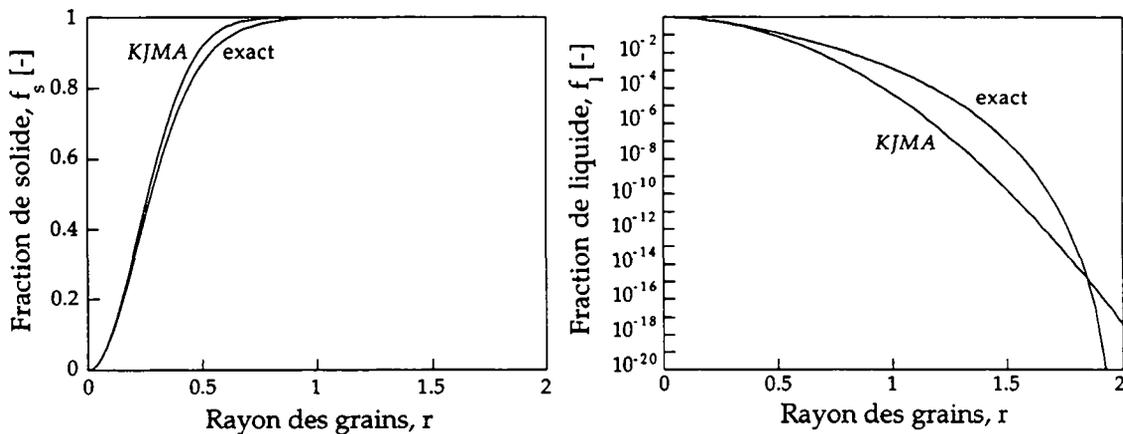


Figure A1.6 Evolutions de la fraction de solide et de la fraction de liquide prédites par le modèle de *KJMA* et par un modèle probabiliste exact. Le cas considéré est celui de 10 grains germés simultanément dans un creuset de rayon $R = 1$. Le modèle exact respecte le fait que la fraction de solide doit être égale à 1 lorsque le rayon des grains est égal au diamètre du creuset (comportement asymptotique de f_l au voisinage de $r = 2$).

Le développement qui précède montre que, si le modèle de *KJMA* ne prend pas en compte le fait que la solidification se déroule dans un creuset de taille finie, il est parfaitement adapté à la situation pratique de la coulée où la taille des grains est faible par rapport à la taille du moule. Il faut que la taille des grains devienne voisine de la taille du creuset pour que l'effet de bord soit sensible pour toute la pièce. Dans le cas contraire, seule une zone très superficielle est affectée. Cette situation n'est pas uniquement théorique: elle peut se présenter lors de la solidification d'Al-Si équiaxe eutectique (Engler (1970), Engler et Göckmann (1974), Engler et Schleiting (1978), Chen (1990) ou dans le cas de la cristallisation de verres métalliques (Drehman et Greer (1984), Faivre (1994)).

ANNEXE 2 DESCRIPTION DE LA FORME DES JOINTS DE GRAINS

Dans cette annexe sont présentés les résultats analytiques de la description de la forme de l'interface entre deux grains qui croissent dans un liquide de température uniforme.

Soient deux grains dont les centres sont positionnés en $x = -\frac{L}{2}$ et en $x = \frac{L}{2}$, et qui germent aux temps $t = 0$ et $t = t_n$. Leurs rayons sont désignés par $r_1(t)$ et $r_2(t)$.

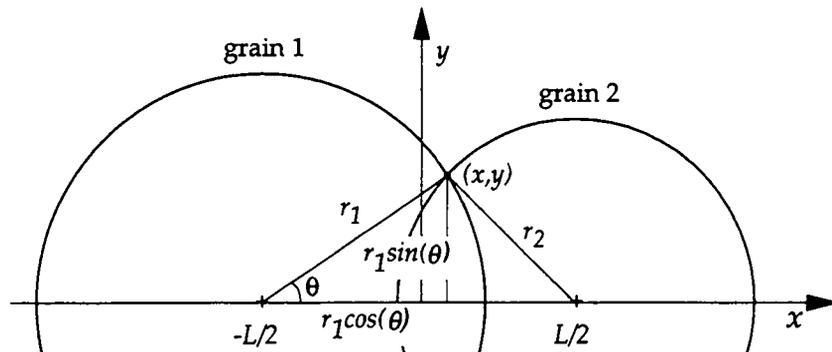


Figure A2.1 Représentation schématique de la position du point triple, (x, y) , caractérisé par le contact entre le grain 1, le grain 2 et le liquide. La trajectoire du point triple au cours de la solidification décrit le joint de grains (en tenant compte de sa rotation autour de l'axe x).

La relation géométrique suivante lie l'angle θ et les deux rayons $r_1(t)$ et $r_2(t)$:

$$\cos(\theta) = \frac{r_1^2(t) - r_2^2(t) + L^2}{2Lr_1(t)} \quad \text{A2.1}$$

La position du point triple est donnée par:

$$x = r_1(t)\cos(\theta) - \frac{L}{2} = \frac{r_1^2(t) - r_2^2(t)}{2L} \quad \text{A2.2}$$

$$y = \pm r_1(t)\sin(\theta) \quad \text{A2.3}$$

Ces relations strictement géométriques sont toujours valables. En trois dimensions, la forme de l'interface est décrite par la rotation du point (x, y) autour de l'axe x . Pour connaître la position de l'interface entre deux grains il suffit donc de décrire l'évolution des rayons r_1 et r_2 . Le développement pour le cas des fontes GS et des eutectiques conventionnels est donné dans les paragraphes qui suivent.

Fontes GS

La cinétique de croissance de l'interface solide-liquide d'un grain est donnée par (éq. 2.47):

$$v = \frac{dr}{dt} = r' = \frac{K \Delta T}{r} \quad \text{A2.4}$$

La surfusion, ΔT , varie au cours du temps et peut être décrite par une fonction continue. Avec la définition suivante de la fonction $f(t)$,

$$f(t) = K \Delta T(t) \quad \text{A2.5}$$

il vient:

$$rr' = f(t) \quad \text{A2.6}$$

La solution de cette équation différentielle est:

$$\frac{1}{2} r^2 = F(t) + c \quad \text{A2.7}$$

où $F(t)$ désigne la primitive de $f(t)$ et c une constante dont la valeur est fixée par la condition initiale.

La condition initiale est que le rayon du grain est très petit à l'instant de germination:

$$r(t_n) \rightarrow 0 \quad \text{A2.8}$$

Il en résulte que l'évolution du rayon est donnée par:

$$r(t) = \sqrt{2[F(t) - F(t_n)]} \quad \text{A2.9}$$

L'expression de $r_1(t)$ et $r_2(t)$ permet de calculer l'équation de la position de l'interface intergranulaire:

$$\cos(\theta) = \frac{2[F(t_n) - F(0)] + L^2}{2L\sqrt{2[F(t) - F(0)]}} \quad \text{A2.10}$$

$$x = \frac{[F(t_n) - F(0)]}{L} = \text{une constante indépendante du temps} \quad \text{A2.11}$$

$$y = \pm \sqrt{2[F(t) - F(0)]} \sin(\theta) \quad \text{A2.12}$$

Il apparaît que la forme de l'interface entre deux grains de fonte GS est une droite en 2D, et un plan en 3D, perpendiculaire au segment qui lie les deux centres des grains, quels que soient l'histoire thermique et les instants de germination. En

effet, x ne dépend pas du temps mais uniquement de la distance entre les centres de germination et des instants de germination, pour une thermique donnée. Si la germination des deux grains est simultanée, l'interface est le plan médian du segment qui lie les deux centres des grains.

L'observation d'une coupe métallographique de fonte GS ne doit ainsi faire apparaître que des joints de grains linéaires.

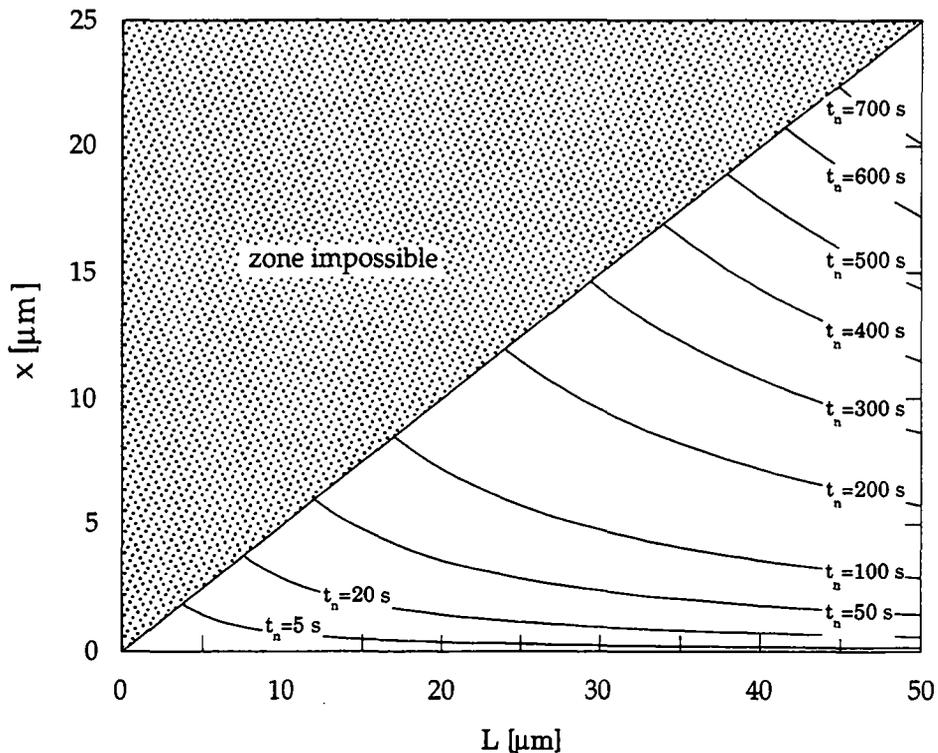


Figure A2.2 Position x du joint de grains entre deux grains de fonte GS croissant dans un liquide de surfusion constante (5 °C) en fonction de la distance entre les grains, L , et de l'instant de germination du grain 2, t_n (le premier grain germe en $t = 0$). La *zone impossible* est la zone où le grain 1 atteint la position du centre du grain 2 avant sa germination.

Eutectiques conventionnels

La cinétique de croissance de l'interface solide-liquide d'un grain est donnée par une relation de type Jackson et Hunt (éq. 2.42):

$$v = \frac{dr}{dt} = r' = A\Delta T^2 \quad \text{A2.13}$$

où A est une constante et ΔT la surfusion. Cette dernière varie au cours du temps: $\Delta T = \Delta T(t)$. Avec la définition suivante de $f(t)$:

$$f(t) = A\Delta T^2(t) \quad \text{A2.14}$$

il vient:

$$r' = f(t) \quad \text{A2.15}$$

La solution de cette équation différentielle est:

$$r(t) = F(t) + c \quad \text{A2.16}$$

où $F(t)$ désigne la primitive de $f(t)$ et c une constante dont la valeur est fixée par la condition initiale:

$$r(t_n) \rightarrow 0 \quad \text{A2.17}$$

Il en résulte que l'évolution du rayon est décrite par:

$$r(t) = F(t) - F(t_n) \quad \text{A2.18}$$

L'expression de $r_1(t)$ et $r_2(t)$ permet de calculer la position de l'interface (éqs A2.1-A2.3):

$$x = \frac{2F(t)b - ab}{2L} \quad \text{A2.19}$$

$$y = \frac{\pm \sqrt{L^2 - b^2}}{2L} \sqrt{[2F(t) - a]^2 - L^2} \quad \text{A2.20}$$

avec

$$a = F(t_n) + F(0) \quad \text{A2.21}$$

$$b = F(t_n) - F(0) \quad \text{A2.22}$$

Par l'élimination de $F(t)$, il vient:

$$\frac{x^2}{\left(\frac{b^2}{4}\right)} - \frac{y^2}{\left(\frac{L^2 - b^2}{4}\right)} = 1 \quad \text{A2.23}$$

qui est l'équation d'une hyperbole. En 3D, la forme de l'interface est un hyperboloïde de révolution. En réalité, le joint de grain est une moitié d'hyperbole en 2D et une moitié d'hyperboloïde de révolution en 3D, caractérisée par $x > 0$.

Dans le cas où la germination des deux grains est simultanée, la valeur de b est nulle, et l'interface est décrite par:

$$x = 0 \quad \text{A2.24}$$

soit l'équation du plan médian du segment qui lie les centres des deux grains.

Ainsi, l'observation de joints de grains eutectiques sur une coupe métallographique ne peut faire apparaître que quatre types de joints de grains:

- des droites, si les deux grains ont germé au même instant,
- des cercles, si le plan de coupe est perpendiculaire au segment qui lie les centres des grains,
- des ellipses, si le plan de coupe forme un angle supérieur à celui de l'asymptote avec l'axe x ,
- des hyperboles, si le plan de coupe forme un angle inférieur à celui de l'asymptote avec l'axe x .

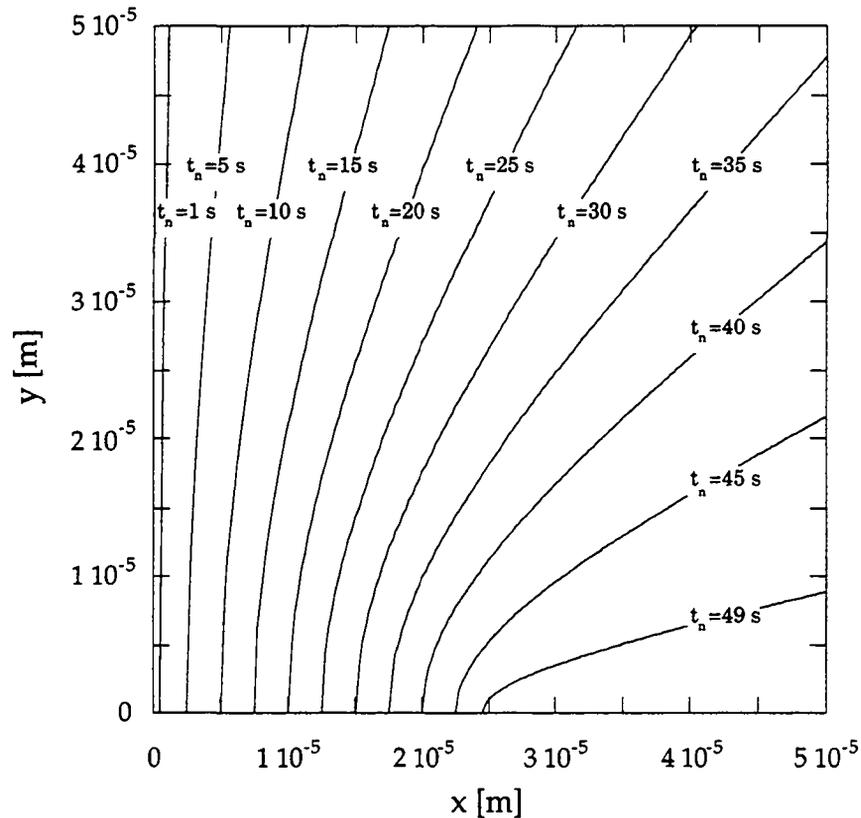


Figure A2.3 Forme du joint de grains entre deux grains eutectiques croissant dans un liquide de surfusion constante (5 °C) et distants de 50 µm en fonction de l'instant de germination du grain 2, t_n (le grain 1 germe en $t = 0$). La position du centre du grain 2 est à $x = 25 \mu\text{m}$. Le temps de germination $t_n = 50 \text{ s}$ est le temps limite pour lequel l'interface du grain 1 atteint la position du centre du grain 2 avant sa germination (la constante de la relation de Jackson et Hunt est $A = 4 \cdot 10^{-8} [\text{ms}^{-1}\text{K}^{-2}]$).

ANNEXE 3 GRAINS DANS UN GRADIENT, SOLUTION ANALYTIQUE

Le problème étudié dans cette annexe est celui d'un grain eutectique croissant dans un gradient thermique, G , constant et soumis à une vitesse de refroidissement, \dot{T} , elle aussi constante. La situation est donc celle illustrée à la figure 4.6. Les résultats suivants vont être développés:

- calcul de l'évolution des rayons définis par $\theta = 0$ et $\theta = \pi$,
- calcul du facteur d'asymétrie,
- tendances asymptotiques du facteur d'asymétrie.

Ces résultats sont obtenus pour une vitesse de croissance normale de l'interface donnée par la relation de Jackson et Hunt, $v_n = A\Delta T^2$.

Calcul de l'évolution des rayons définis par $\theta = 0$ et $\theta = \pi$

L'équation différentielle à résoudre est décrite par le système d'équations défini dans la section 4.3:

$$T(x,y,z,t) = T_{eut} - G(v_T t - z) \quad A3.1$$

$$v_n = A\Delta T^2 \quad A3.2$$

$$v_r = \left[\frac{\partial r}{\partial t} \right]_{\theta} = \frac{v_n}{e_r \cdot \mathbf{n}} = v_n \sqrt{1 + \left[\frac{r'}{r} \right]^2} \quad A3.3$$

$$\text{avec } r' = \left[\frac{\partial r}{\partial \theta} \right]_t \quad A3.4$$

Avec de plus la relation:

$$z = r \cos(\theta) \quad A3.5$$

la vitesse radiale en tout point de l'interface est donnée par:

$$v_r = \left[\frac{\partial r}{\partial t} \right]_{\theta} = A \sqrt{1 + \left[\frac{r'}{r} \right]^2} G^2 (v_T t - r(\theta, t) \cos(\theta))^2 \quad A3.6$$

La condition initiale nécessaire à la résolution de cette équation différentielle est que le rayon du germe au moment de la germination, $t = t_n$, est infinitésimal:

$$r(\theta, t = t_n) = R_n \rightarrow 0 \quad A3.7$$

En $\theta = 0$ et $\theta = \pi$, r' est nulle, pour des raisons de symétrie, et l'équation A3.6 se réduit en:

$$\frac{dr_o}{dt} = AG^2(v_T t - r_o)^2 \quad \text{pour } \theta = 0 \quad \text{A3.8}$$

$$\frac{dr_\pi}{dt} = AG^2(v_T t + r_\pi)^2 \quad \text{pour } \theta = \pi \quad \text{A3.9}$$

Ces équations sont rendues adimensionnelles par les changements de variables suivants:

$$\tau = \sqrt{AG^2 v_T} t \quad \text{A3.10}$$

$$\phi_o = \tau - \sqrt{\frac{AG^2}{v_T}} r_o \quad \text{A3.11}$$

$$\phi_\pi = \tau + \sqrt{\frac{AG^2}{v_T}} r_\pi \quad \text{A3.12}$$

et deviennent alors:

$$\frac{d\phi_o}{d\tau} = 1 - \phi_o^2 \quad \text{A3.13}$$

$$\frac{d\phi_\pi}{d\tau} = 1 + \phi_\pi^2 \quad \text{A3.14}$$

Avec la condition initiale $r_o = r_\pi = 0$ à $t = t_n$ ou $\phi_o = \phi_\pi = \tau_n$ à $\tau = \tau_n$, les solutions de ces équations sont:

$$\phi_o(\tau) = \tanh(\tau - \tau_n + \tanh^{-1}(\tau_n)) = \frac{\tanh(\tau - \tau_n) + \tau_n}{1 + \tau_n \tanh(\tau - \tau_n)} \quad \text{A3.15}$$

$$\phi_\pi(\tau) = \tan(\tau - \tau_n + \tan^{-1}(\tau_n)) = \frac{\tan(\tau - \tau_n) + \tau_n}{1 - \tau_n \tan(\tau - \tau_n)} \quad \text{A3.16}$$

ou :

$$r_o(t) = v_T t - \sqrt{\frac{v_T}{AG^2}} \frac{\tanh[\sqrt{AG^2 v_T}(t - t_n)] + \sqrt{AG^2 v_T} t_n}{1 + \sqrt{AG^2 v_T} t_n \tanh[\sqrt{AG^2 v_T}(t - t_n)]} \quad \text{A3.17}$$

$$r_\pi(t) = -v_T t + \sqrt{\frac{v_T}{AG^2}} \frac{\tan[\sqrt{AG^2 v_T}(t - t_n)] + \sqrt{AG^2 v_T} t_n}{1 - \sqrt{AG^2 v_T} t_n \tan[\sqrt{AG^2 v_T}(t - t_n)]} \quad \text{A3.18}$$

Avec la définition des trois surfusions suivantes:

$$\Delta T_n = Gv_T t_n \quad (\text{surf. de germination}) \quad \text{A3.19}$$

$$\Delta T_c = \sqrt{\frac{v_T}{A}} \quad (\text{surf. de croissance colonnaire stationnaire}) \quad \text{A3.20}$$

$$\Delta T_g(t) = Gv_T t \quad (\text{surf. du centre du grain}) \quad \text{A3.21}$$

elles deviennent:

$$r_o(t) = v_T t - \frac{\Delta T_c}{G} \frac{\tanh\left[\frac{\Delta T_g(t) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right] + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}}{1 + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} \tanh\left[\frac{\Delta T_g(t) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right]} \quad \text{A3.22}$$

$$r_\pi(t) = -v_T t + \frac{\Delta T_c}{G} \frac{\tan\left[\frac{\Delta T_g(t) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right] + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}}{1 - \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} \tan\left[\frac{\Delta T_g(t) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right]} \quad \text{A3.23}$$

A noter que ΔT_g est la surfusion du centre du grain, et non de l'interface solide-liquide. Elle est introduite à fin de simplification d'écriture.

Cas de plusieurs grains, facteur d'asymétrie

Dans le cas d'une population de grains dont la formation est dictée par une loi de germination hétérogène simple (les grains apparaissent à une surfusion fixe, ΔT_n , et produisent une densité n_0), la distance moyenne entre deux centres de grains, L , est fixée.

Deux grains voisins, A et B, qui germent sur une même ligne parallèle au flux de chaleur apparaissent à des temps différents. Si le grain A germe au temps $t_n^A = t_n$, le grain B germe au temps $t_n^B = t_n + Lv_T^{-1}$. L'interface du grain A commence à croître au temps t_n en accord avec les équations A3.8 et A3.9. Ces équations sont également valables pour le grain B, pour autant que le temps, t , soit remplacé par $t - L/v_T$.

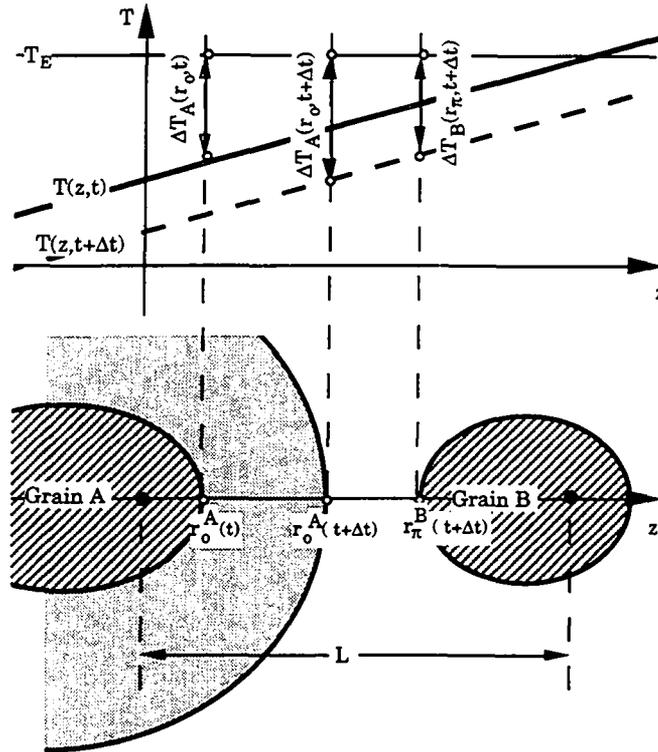


Figure A3.1 Représentation schématique de la croissance de deux grains germant sur une même ligne parallèle au flux de chaleur et distants d'une longueur L .

Les deux grains vont se rencontrer lorsque l'interface du grain A pour $\theta = 0$ entre en contact avec celle du grain B pour $\theta = \pi$.

Le temps, t_r , auquel la rencontre a lieu est donné par:

$$r_0^A(t_r) + r_\pi^B(t_r - L/v_T) = L \quad \text{A3.24}$$

ou

$$\tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r) - \Delta T_n}{\Delta T_c} + \tanh^{-1}\left(\frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}\right)\right] \quad \text{A3.25}$$

$$= \tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r - Lv_T^{-1}) - \Delta T_n}{\Delta T_c} + \tanh^{-1}\left(\frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}\right)\right] \quad \text{A3.26}$$

L'équation A3.26 permet de trouver par une méthode numérique (dichotomie) le temps, t_r , auquel les deux grains se rencontrent ainsi que l'extension du grain A dans la direction $\theta = 0$ et celle du grain B dans la direction $\theta = \pi$. Dans une situation quasi-stationnaire, ces deux valeurs peuvent être associées au même grain car des grains sont formés continûment dans le liquide à une distance moyenne L les uns des autres. A partir de ces deux valeurs, le facteur d'asymétrie, S , est défini de la manière suivante:

$$S = \frac{r_0(t_r)}{r_{\pi}(t_r - L/v_T)} \quad \text{A3.27}$$

Des grains équiaxes seront caractérisés par un facteur d'asymétrie égal à 1 (les grains sont alors symétriques) et des grains colonnaires par un facteur d'asymétrie élevé.

Comportement asymptotique du facteur d'asymétrie

Facteur d'asymétrie $S \rightarrow \infty$

Pour obtenir un facteur d'asymétrie $S \rightarrow \infty$, la valeur $r_{\pi}^B(t_r - Lv_T^{-1})$ doit être égale à zéro lorsque $r_0^A(t_r) = L$. Autrement dit, pour $r_0^A(t_r) = L$, la surfusion ΔT , au site B doit être exactement la surfusion de germination, ΔT_n . Les relations A3.1 et A3.22 permettent de montrer que S est infiniment grand lorsque :

$$T_{eut} + G(L - v_T t_r) = T_n \quad \text{ou} \quad v_T t_r = L + \frac{\Delta T_n}{G} \quad \text{A3.28}$$

et

$$v_T t_r - \frac{\Delta T_c}{G} \frac{\tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right] + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}}{1 + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} \tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right]} = L \quad \text{A3.29}$$

En insérant la relation A3.28 dans A3.29, il vient:

$$\frac{\tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right] + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c}}{1 + \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} \tanh\left[\frac{\Delta T_g(t_r) - \Delta T_n}{\Delta T_c}\right]} = \frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} \quad \text{A3.30}$$

Cette équation ne peut être satisfaite que lorsque :

$$\frac{\Delta T_n}{\Delta T_c} = 1 \quad \text{ou} \quad \Delta T_n = \sqrt{\frac{v_T}{A}} \quad \text{A3.31}$$

En d'autres termes, le facteur d'asymétrie S est infini lorsque les grains germent à une surfusion ΔT_n égale à la surfusion d'un front colonnaire stationnaire avançant à la vitesse v_T des isothermes.

Comportement asymptotique pour: $G \rightarrow 0$, $\dot{T} = Gv_T = \text{Cst}$

Pour $G \rightarrow 0$ mais pour une vitesse de refroidissement constante et finie, $\dot{T} = -Gv_T = \text{cst}$, les relations A3.17 et A3.18 peuvent être développées grâce aux approximations suivantes :

$$\tan(\alpha) = \alpha + \frac{\alpha^3}{3} \text{ et } \tanh(\alpha) = \alpha - \frac{\alpha^3}{3} \text{ lorsque } \alpha \rightarrow 0 \quad \text{A3.32}$$

Ainsi, r_0 est donné par:

$$r_0(t) = v_T t - v_T \frac{t - Av_T G^2 \frac{(t - t_n)^3}{3}}{1 + Av_T G^2 t_n (t - t_n)} \quad \text{A3.33}$$

Comme $(1 + \alpha)^{-1} \cong (1 - \alpha)$ pour des petites valeurs de α , la relation A3.33 peut être transformée en :

$$r_0(t) = A(Gv_T)^2 \frac{(t^3 - t_n^3)}{3} = A(\dot{T})^2 \frac{(t^3 - t_n^3)}{3} \quad \text{A3.34}$$

Cette valeur n'est rien d'autre que le rayon d'un grain eutectique croissant dans un champ de température uniforme décroissant linéairement avec le temps:

$$\begin{aligned} r_0(t) &= \int_{t_n}^t v(\Delta T(t')) dt' = \int_{t_n}^t A \Delta T^2(t') dt' \\ &= A \dot{T}^2 \int_{t_n}^t t'^2 dt' = A \dot{T}^2 \frac{(t^3 - t_n^3)}{3} \end{aligned} \quad \text{A3.35}$$

Le comportement asymptotique de r_π dans cette situation est identique. Il en résulte donc que le facteur d'asymétrie est égal à l'unité.

Le comportement asymptotique pour $G \rightarrow 0$ avec $v_T = \text{cst}$ ($Gv_T \rightarrow 0$) ne donne pas le même résultat car la vitesse de refroidissement étant très faible, l'échelle de temps se dilate en conséquence.

ANNEXE 4 MESURES DE LA SURFACE SOLIDE-LIQUIDE: FONTES GS

Cette annexe rassemble les valeurs de surface de l'interface solide-liquide en cours de solidification mesurées sur trois échantillons:

- photographies de Théret,
- échantillon de TSD, vitesse de tirage 2 mm/min, TSD 1,
- échantillon de TSD, vitesse de tirage 18 mm/min, TSD 2.

Photographies de Théret

f_s	s_{s-l} , avec aust.	s_{s-l} , sans aust.
0.	0.	
0.088		0.166
0.2304	0.301	
0.1616		0.171
0.2912	0.316	
0.2336		0.213
0.3312	0.29	
0.2736		0.19
0.4128	0.305	
0.4176		0.249
0.4768	0.267	
0.6928	0.263	
0.832	0.193	
0.9232	0.0878	
1.	0.	

Sur les cinq premières des neuf images de Théret, deux analyses ont été effectuées, l'une prenant en compte l'ensemble des dendrites primaires d'austénite et la seconde tentant d'en faire abstraction.

La densité surfacique de nodules mesurée en fin de solidification est égale à:

$$N_A^* = 1.1 \cdot 10^8 \text{ [m}^{-2}\text{]}$$

Essai de TSD 1

f_s	s_{s-l}
0.	0.
0.025	0.0276
0.314	0.29
0.595	0.376
0.863	0.25
0.945	0.1308
0.96	0.1114
0.98	0.0676
0.982	0.0638
1.	0.

Les dendrites primaires sont moins nombreuses sur les échantillons de TSD que sur les photographies de Théret. Une seule mesure de la surface solide-liquide par échantillon a donc été réalisée.

La densité surfacique de nodules mesurée en fin de solidification est égale à:

$$N_A^* = 1.25 \cdot 10^8 \text{ [m}^{-2}\text{]}$$

Essai de TSD 2

f_s	s_{s-l}
0.	0.
0.06	0.0734
0.254	0.187
0.6499	0.332
0.7837	0.2712
0.878	0.179
0.939	0.145
1.	0.

La densité surfacique de nodules mesurée en fin de solidification est égale à:

$$N_A^* = 4.83 \cdot 10^8 \text{ [m}^{-2}\text{]}$$

TABLE DES SYMBOLES

a	distance interatomique	[m]
A	coefficient de la relation de Jackson et Hunt	[ms ⁻¹ K ⁻²]
A_A	fraction surfacique transformée	[-]
A_n	coefficient des lois de germination	[m ⁻³ K ⁻²]
A_{out}	surface d'exclusion (raisonnement probabiliste)	[m ²]
A_{tot}	surface de l'échantillon	[m ²]
b	paramètre des résultats de Meijering	[m]
B_i	nombre adimensionnel de Biot	[-]
B_n	coefficients de la somme de Fourier	[-]
c_p	chaleur spécifique massique	[Jkg ⁻¹ K ⁻¹]
C	concentration	
C	facteur de proportionnalité	[-]
C_{eut}	concentration eutectique	
C_l	concentration dans le liquide	[m ⁻³]
C_{st}	constante de proportionnalité de la loi de Stokes	[m ⁻¹ s ⁻¹]
$C_{\alpha/\beta}$	limite de solubilité de l'élément B dans la phase α/β à la température eutectique	
C_∞	concentration loin de l'interface solide-liquide	
C^*	concentration à l'interface solide-liquide	
d	distance	[m]
D	coefficient de diffusion	[m ² s ⁻¹]
D_l	coefficient de diffusion dans le liquide	[m ² s ⁻¹]
E	nombre de grains passés par un point	[-]
e_r	vecteur radial unitaire	
f	fraction volumique	[-]
f	fonction	
f	facteur multiplicatif de la germination hétérogène	[-]
f_s^{renc}	fraction volumique de solide à laquelle la rencontre des grains commence	[-]
f_{gr}	fraction volumique de graphite	[-]
f_l	fraction volumique de liquide	[-]
f^m	fraction massique	[-]
f_s	fraction volumique de solide	[-]
$f_{s,ét}$	fraction volumique de solide de la microstructure étendue	[-]
f_0	fraction volumique de grains isolés	[-]
g	gravité	[ms ⁻²]
G	enthalpie libre molaire	[Jmol ⁻¹]
h	distance par rapport à un plan de coupe	[m]
H	enthalpie volumique	[Jm ⁻³]
H	dérivée de l'enthalpie par rapport au temps, dH/dt	[Jm ⁻³ s ⁻¹]
I	taux de germination	[m ⁻³ s ⁻¹]

I_0	taux de germination imposé	$[m^{-3}s^{-1}]$
$I_{0,hét}$	facteur préexponentiel du taux de germination	$[m^{-3}s^{-1}]$
$I_{0,hom}$	facteur préexponentiel du taux de germination	$[m^{-3}s^{-1}]$
k	coefficient de partage	$[-]$
k	compteur	$[-]$
k_B	constante de Boltzmann, $1.3807 \cdot 10^{-23}$	$[JK^{-1}]$
k_C	constante de proportionnalité de la relation de Cahn	$[m^{-1}]$
k_R	constante de proportionnalité de la relation de Rath	$[m^{-1}]$
k_{SF}	constante de proportionnalité de la relation de Speich et Fisher	$[m^{-1}]$
k_V	constante de proportionnalité de la relation de Vandermeer	$[m^{-1}]$
K	facteur de proportionnalité de la loi de croissance des fontes GS	$[m^2s^{-1}K^{-1}]$
K_c	constante de diffusion chimique	$[Ksm^{-2}]$
K_r	constante de courbure	$[mK]$
l	longueur	$[m]$
L	chaleur latente de fusion volumique	$[Jm^{-3}]$
L	distance entre les centres de germination de deux grains	$[m]$
L_e	nombre adimensionnel de Lewis	$[-]$
L_L	fraction linéique transformée	$[-]$
m	pente du liquidus	$[K]$
n	densité volumique ou surfacique	$[m^{-3}]$ ou $[m^{-2}]$
n	normale unitaire	
n_{max}	densité maximum	$[m^{-3}]$
n_0	densité volumique ou surfacique imposée	$[m^{-3}]$ ou $[m^{-2}]$
N	nombre	$[-]$
N_a	nombre d'Avogadro, $6.022 \cdot 10^{23}$	$[-]$
N_A	densité surfacique	$[m^{-2}]$
N^*_A	densité surfacique de nodules de graphite	$[m^{-2}]$
N_{dir}	nombre de directions de tir	$[-]$
N_g	nombre de grains	$[-]$
N_L	nombre d'intersections par longueur unitaire de ligne test	$[m^{-1}]$
$N_{mé}$	nombre de méridiens	$[-]$
N_{pa}	nombre de parallèles	$[-]$
N_{pdt}	nombre de pas de temps	$[-]$
N_{tot}	nombre total de cellules	$[-]$
N^*	nombre d'atomes dans un germe de taille critique	$[-]$
N_{S^*}	nombre d'atomes à la surface d'un germe critique	$[-]$
N_V	densité volumique	$[m^{-3}]$
p	probabilité ou exposant	$[-]$
p_{isol}	probabilité qu'un grain soit isolé	$[-]$

p_l	probabilité qu'un point soit liquide	[-]
p_n	probabilité de germination	[-]
Pe	nombre adimensionnel de Péclet	[-]
P_p	fraction transformée ponctuelle	[-]
P'	somme du modèle de Jackson et Hunt	[-]
q	exposant	[-]
Q	flux de chaleur	[Jm ⁻² s ⁻¹]
r	rayon, rayon de courbure	[m]
r_{gr}	rayon d'un nodule de graphite	[m]
r_γ	rayon d'un grain de fonte GS	[m]
r^*	rayon critique	[m]
\bar{r}	rayon moyen	[m]
R	constante des gaz parfaits, 8.3144	[Jmol ⁻¹ K ⁻¹]
R	rayon de creuset	[m]
R_c	position radiale dans un creuset	[m]
S_{s-l}	surface solide-liquide normalisée	[-]
S	surface	[m ²]
S	facteur d'asymétrie d'un grain	[-]
$S_{ét}$	surface solide-liquide de la microstructure étendue	[m ²]
S_{s-l}	surface solide-liquide	[m ²]
S_V	surface par volume unitaire	[m ⁻¹]
S_α	largeur d'une demi-lamelle de α	[m]
S_β	largeur d'une demi-lamelle de β	[m]
t	temps	[s]
tx_{isol}	taux de grains isolés	[-]
T	température	[K]
T	vecteur de déplacement	
T_f	température de fusion	[K]
T_g	température de transition vitreuse	[K]
T_{liq}	température du liquidus	[K]
T_{min}	température minimum	[K]
v	vitesse	[ms ⁻¹]
v_n	vitesse normale de l'interface solide-liquide	[ms ⁻¹]
v_r	vitesse radiale de l'interface solide-liquide	[ms ⁻¹]
v_{st}	vitesse limite de chute selon Stokes	[ms ⁻¹]
v_T	vitesse des isothermes	[ms ⁻¹]
V	volume	[m ³]
V_m	volume molaire	[m ³ mol ⁻¹]
V_{out}	volume d'exclusion (raisonnements probabilistes)	[m ³]
V_{tot}	volume total d'un échantillon	[m ³]
V_V	fraction volumique transformée	[-]
x	composition en fraction molaire	[-]
x	l'une des coordonnées du système cartésien	[m]
y	l'une des coordonnées du système cartésien	[m]

z	l'une des coordonnées du système cartésien	[m]
α	facteur multiplicatif	[-]
β	facteur de proportionnalité modèle de KJMA	[s ⁻³] ou [s ⁻⁴]
Γ	fonction gamma	
Γ	facteur de Gibbs-Thompson	[mK]
δ	incrément	
δl	longueur du côté d'une cellule, largeur de la zone morte de la méthode de tir	[m]
δt	durée d'un pas de temps	[s]
δN_g^t	nombre de cellules germées au cours d'un pdt	[-]
Δ	incrément	
ΔG	gain d'enthalpie libre	∅
$\Delta G_{hét}$	gain d'enthalpie libre résultant de la germination hétérogène	∅
ΔG_{hom}	gain d'enthalpie libre résultant de la germination homogène	∅
ΔG_s	gain d'enthalpie libre surfacique	[Jmol ⁻¹ m ⁻²]
ΔG_v	gain d'enthalpie libre volumique	[Jmol ⁻¹ m ⁻³]
$\Delta H_{m,f}$	enthalpie molaire de fusion	[Jmol ⁻¹]
ΔS_f	entropie de fusion	[Jmol ⁻¹ K ⁻¹]
ΔT	surfusion	[K]
ΔT_B	seuil de surfusion de germination	[K]
ΔT_c	surfusion chimique	[K]
ΔT_c	surfusion de croissance colonnaire stationnaire	[K]
ΔT_g	surfusion du centre du grain	[K]
ΔT_k	surfusion cinétique	[K]
ΔT_n	surfusion de germination	[K]
ΔT_r	surfusion de courbure	[K]
ΔT_t	surfusion thermique	[K]
ΔT_0	surfusion moyenne de germination	[K]
ΔT_σ	écart-type de la surfusion de germination	[K]
η	viscosité dynamique	[Pas]
θ	angle	[rad]
κ	conductivité thermique	[Wm ⁻¹ K ⁻¹]
λ	espacement interlamellaire	[m]
λ_{br}	espacement interlamellaire maximum	[m]
λ_0	espacement interlamellaire minimum	[m]
μ	potentiel chimique	[Jmol ⁻¹]
ν	fréquence	[s ⁻¹]
ξ	nombre aléatoire	[-]
ρ	masse volumique	[kgm ⁻³]
σ	énergie d'interface	[Jm ⁻²]
τ	temps adimensionnel	[-]

φ	angle	[rad]
ϕ	paramètre des eutectiques irréguliers	[-]
ϕ	rayon adimensionnel	[-]
ϕ_0	taux de grains isolés	[-]
Ω	angle solide	[stérad]
Ψ	facteur de rencontre des grains	[-]

REFERENCES

T. Aizawa, Imono, **50**, (1978), 33.

P. Alexandre, M. Castro, J. Lacaze, G. Lesoult, M. Rappaz et J.-L. Desbiolles, dans *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes*, vol V, Eds. M. Rappaz, M. R. Özgü and K. W. Mahin, TMS, Warrendale, Pa, (1990), 443.

M. P. Anderson, G. S. Grest et D. J. Srolovitz, *Phil. Mag. B*, **59**, (1989), 293.

M. Avrami, *J. Chem. Phys.*, **8**, (1940), 212.

R. Becker et W. Döring, *Ann. Phys.*, **24**, (1935), 719.

J. D. Bernal, *Nature*, **183**, (1959), 141.

Ch. Berthod, *Modélisation probabiliste de la solidification des fontes à graphite sphéroïdal*, projet ingénieur, Département des Matériaux, EPFL, Lausanne(1993).

W. J. Boettinger et S. R. Coriell, dans *Science and Technology of the Undercooled Melt*, (Eds P. R. Sahm, H. Jones et C. M. Adams), NATO ASI Series E No 114, Martinus Nijhoff, Dordrecht, (1986), 81.

S. Bourban, *Etude de la transition entre les morphologies de croissance dendritique et cellulaire de l'alliage Al-Cu*, Travail de diplôme EPFL, DMX, (1994).

F. J. Bradley, *Metall. Trans.*, **23B**, (1993), 539.

W. H. Brandt, *J. Appl. Phys.*, **16**, (1945), 139.

S. G. R. Brown et J. A. Spittle, dans *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes*, vol V, Eds. M. Rappaz, M. R. Özgü and K. W. Mahin, TMS, Warrendale, Pa, (1990), 395.

M. H. Burden et J. D. Hunt, *J. Cryst. Growth*, **22**, (1974), 328.

J. W. Cahn, *Trans. TMS-AIME*, **239**, (1967), 610.

M. Castro, *Etude expérimentale de la solidification des pièces coulées en fonte à graphite sphéroïdal: influence de la vitesse de refroidissement et de l'inoculation*, Thèse INPL, Nancy, (1991).

B. Chalmers, *Principles of Solidification*, John Wiley & Sons, New York, (1964).

Ch. Charbon, travaux non publiés, (1993).

Ch. Charbon et M. Rappaz, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, **1**, (1993), 455.

Ch. Charbon, A. Jacot et M. Rappaz, *Acta Metall.*, **42**, (1994), 3953.

- X.-G. Chen, *Kristallisation des Aluminium-Silicium-Eutektikums und Anwendung der thermischen Analyse zur Kontrolle der Vereldung*, Thèse, Techn. Hochschule Aachen, (1990).
- G. J. Davies, *Solidification and Casting*, Applied Science Publishers LTD, London, (1973).
- C. H. Desh, *J. Inst. Metals*, **22**, (1919), 241.
- A. J. Drehman et A. L. Greer, *Acta Metall.*, **32**, (1984), 323.
- R. Elliott, *Eutectic Solidification Processing*, Butterworths Monographs in Materials, (1983).
- R. Elliott, *Cast Iron Technology*, Butterwoths, London, (1988).
- S. Engler, *Aluminium*, **46**, (1970), 121.
- S. Engler et K. Göckmann, *Aluminium*, **50**, (1974), 712.
- S. Engler et G. Schleiting, *Giesserei Forschung*, **30**, (1978), 15.
- G. Faivre, dans *Vth International Conference on the Physical Metallurgy of Cast Iron*, Eds J. Lacaze et G. Lesoult, Nancy (France), 1994, à paraître.
- M. C. Flemings, *Solidification Processing*, McGraw-Hill, New York, (1974).
- H. Fredriksson and I. Svensson, dans *The Physical Metallurgy of Cast Iron*, Eds H. Fredriksson and M. Hillert, North-Holland, (1985), 273.
- T. Furu, K. Marthinsen et E. Nes, *Materials Sc. and Techn.*, **6**, (1990), 1983.
- Ch.-A. Gandin et M. Rappaz, *Acta Metall.*, **42**, (1994), 2233.
- E. N. Gilbert, *Ann. Math. Stat.*, **33**, (1962), 958.
- Ph. Gilgien, *Modélisation de la solidification dirigée des superalliages*, Travail de diplôme EPFL, Département des Matériaux, Lausanne, (1990).
- M. F. X. Gigliotti JR, G. A. Colligan and G. L. F. Powell, *Met. Trans.*, **1**, (1970), 891.
- A. M. Gokhale, *Met. Trans.*, **15A**, (1984), 243.
- M. Gremaud, *Solidification rapide: Etude microstructurale des alliages Al-Fe après fusion superficielle par laser*, Thèse EPFL No 885, Lausanne, (1990).
- R. Grugel and W. Kurz, *Met. Trans.* **18A**, (1987), 1137.
- M. Gündüz et J. D. Hunt, *Acta Metall.*, **9**, (1985), 1651.
- K. L. Hanson, *Acta Metall.*, **27**, (1979), 515.
- H. W. Hesselbarth et I.R. Göbel, *Acta Metall.*, **39**, (1991), 2135.
- M. Hillert, *Jernkont. Ann.*, **141**, (1957), 757.

- M. Hillert, *Acta Metall.*, **7**, (1959), 653.
- A. F. A. Hoadley, M. Rappaz and M. Zimmermann, *Met. Trans.* **22B**, (1991), 101.
- R. T. de Hoff et Q. L. Guo, *Met. Trans.*, **16**, (1985), 2007.
- J. D. Hunt, *Mater. Sc. Engng.* **65**, (1984), 75.
- O. Ito et E. R. Fuller JR, *Acta Metall.*, **41**, (1993), 191.
- K. A. Jackson et J.D. Hunt, *Trans. Met. Soc. AIME*, **236**, (1966), 1129.
- A. Jacot, *Modélisation probabiliste de la solidification équiaxe eutectique*, Travail de diplôme EPFL, Département des Matériaux, Lausanne, (1993).
- W. A. Johnson and R. F. Mehl, *Trans. AIME*, **135**, (1939), 416.
- H. Jones et W. Kurz, *Met. Trans.*, **11A**, (1980), 1265.
- H. Jones et W. Kurz, *Z. Metallkde*, **72**, (1981), 792.
- A. Kofler, *J. Aust. Inst. Met.*, **10**, (1965), 132.
- A. N. Kolmogorov, *Izv. Akad. Nauk. USSR-Ser. Matemat.*, **1**, (1937), 355.
- W. Kurz et D. J. Fisher, *International Metals Reviews*, **5/6**, (1979), 177..
- W. Kurz et D. J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, Trans Tech Publications, 3^e édition, (1989).
- J. Lacaze, M. Castro and G. Lesoult, dans *Proceedings Euromat '89*, Eds H. E. Exner and V. Schumacher, Vol. 1, (1989), 147.
- J. Lacaze et G. Lesoult, dans *Advanced Casting and Solidification Technology 1994 (COST 504)*, Eds H. Kleemola et B. Pukl, Commission européenne, Bruxelles, 1994.
- C. Lemaignan, *Acta Metall.*, **29**, (1981), 1379.
- B. Lorenz, *Cryst. Res. Technol.*, **22**, (1987), 869.
- B. Lorenz, *Acta Metall.*, **37**, (1989), 2689.
- A. J. Lovinger and C. C. Gryte, *Journal of Applied Physics*, **47**, (1976), 1999.
- P. Magnin et R. Trivedi, *Acta Metall.*, **39**, (1991), 453.
- P. Magnin, J. T. Mason et R. Trivedi, *Acta Metall.*, **39**, (1991), 469.
- K. W. Mahin, K. Hanson et J.W. Morris JR, *Acta Metall.*, **28**, (1980), 443.
- F. Mampaey, dans *Proceedings EUROMAT '91*, Eds. T. W. Clyne and P. J. Withers, Volume 1: Advanced Processing, (1991), 182.

- F. Mampaey et Z. A. Xu, dans *Advanced Casting and Solidification Technology 1994 (COST 504)*, European Commission, Eds. H. Kleemola et B. Pukl, Bruxelles, 1994.
- A. J. Markworth, *Scripta Metall.*, **18**, (1984), 1309.
- K. Marthinsen, O. Lohne et E. Nes, *Acta Metall.*, **37**, (1989), 135.
- J. W. Marvin, *American J. Botany*, **26**, (1939), 280.
- Binary Alloy Phase Diagrams*, Eds Th. B. Massalski *et al*, ASM, Metals Park, Ohio, (1986).
- K. Matsuura, Y. Itoh, M. Kudoh, T. Ohmi et K. Ishii, *ISIJ*, **34**, (1994), 186.
- I. Maxwell and A. Hellawell, *Acta Metall.*, **23**, (1975), 229.
- J. L. Meijering, *Philips Res. Rep.*, **8**, (1953), 270.
- L. F. Mondolfo, *J. Aust. Inst. Met.*, **10**, (1965), 169.
- J. L. Murray et A. J. McAlister, *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, **5**, (1984), 74.
- J. Ni, J. Feller and C. Beckermann, in *Modelling of Casting*, dans *Welding and Advanced Solidification Processes*, vol V, Eds M. Rappaz, M. R. Özgü and K. W. Mahin, TMS, Warrendale, Pa, (1990), 675.
- T. Noguchi et K. Nagaoka, *Trans. AFS*, **93**, (1985), 115.
- C. Núñez et S. Domingo, *Met. Trans. A*, **19**, (1988), 933.
- A. Ohno, *Solidification*, Springer, Berlin, (1987).
- K. Okazaki et H. Conrad, *Trans. JIM*, **13**, (1972), 198.
- W. Oldfield, *Trans. ASM*, **59**, (1966), 945.
- T. Owadano, *IMONO*, **45**, (1973), 193.
- T. Owadano, K. Yamada et K. Torigoe, *Trans. JIM*, **18**, (1977), 871.
- J. H. Perepezko, dans *Metals Handbook*, vol 15 Casting, 9ème édition, ASM, Metals Park, Ohio, (1988), 101.
- J. H. Perepezko et S. E. Le Beau, dans *Aluminium Transformation - Technology and Applications*, ASM, Metals Park, Ohio, (1982), 309.
- M. Pierantoni, M. Gremaud, P. Magnin, D. Stoll et W. Kurz, *Acta Metall.*, **40**, (1992), 1637.
- C. J. G. Plumer et H. H. Kausch, a paraître, (1994).
- V. V. Podolinsky, Y. N. Taran et W. G. Drykin, *J. Crystal Growth*, **74**, (1986), 57.

- D. A. Porter and K. E. Easterling, *Phase Transformations in Metals and Alloys*, Van Nostrand Reinhold (UK), (1981).
- C. W. Price, *Acta Metall.*, **35**, (1987), 1377.
- M. Rappaz, J. D. Richo et Ph. Thévoz, dans *Proceedings Euromat '89*, Eds H. E. Exner et V. Schumacher, vol. 1, (1989), 135.
- M. Rappaz, *Int. Mat. Rev.*, **34**, (1989), 93.
- M. Rappaz et Ch.-A. Gandin, *Acta Metall.*, **41**, (1993), 345.
- M. Rappaz, Ch. Charbon et R. Sasikumar, *Acta Metall.*, **42**, (1994), 2365.
- B. B. Rath, in *Solid-Solid Phase Transformations*, Eds H. I. Aaronson, D. E. Laughlin, R. F. Sekerka and C. M. Wayman, TMS-AIME, Warrendale, Pa, (1982), 1097.
- F. N. Rhines et B. R. Patterson, *Met. Trans. A*, **13**, (1982), 985.
- J.-D. Richo, *Modélisation numérique de la solidification de la fonte sphéroïdale*, Travail de diplôme EPFL, (1988).
- F. Righetti, T. M. Liebling et A. Mocellin, *Acta Stereol.*, **8/2**, (1989), 459.
- A. Ruegg, *Probabilités et statistiques, Méthodes mathématiques pour l'ingénieur*, Presses Polytechniques Romandes, Lausanne (Suisse), (1985).
- T. O. Saetre, O. Hunderi et E. Nes, *Acta Metall.*, **34**, (1986), 981.
- S. A. Saltykov, dans *Stereology*, Ed. H. Elias, Springer verlag, (1967), 163.
- Ch. Selig, *Etude expérimentale de la transition fonte grise - fonte blanche*, thèse INPL, (1994).
- R. T. Southin et G. A. Chadwick, *Acta Metall.*, **26**, (1978), 223.
- F. Spaepen, *Acta Metall.*, **23**, (1975), 729.
- G. R. Speich and R. M. Fisher, dans *Recrystallisation grain growth and textures*, Ed. H. Margolin, Metals Park, OH, American Society for Metals, (1966), 563.
- J. A. Spittle et S. G. R. Brown, *Acta Metall.*, **37**, (1989), 1803.
- D. M. Stefanescu and C. S. Kanetkar, dans *Computer Simulation of Microstructural Evolution*, Ed. D. J. Srolovitz, TMS, Warrendale, Pe, (1986), 171.
- D. M. Stefanescu and C. S. Kanetkar, *Trans. AFS*, **95**, (1987), paper 68.
- G. C. Stokes, *Trans. Camb. Phil. Soc.*, **9**, (1851), 8.
- K. S. Su, I. Ohnaka, I. Yamauchi et T. Fukusako, dans *The Physical Metallurgy of Cast Iron*, Eds. H. Fredriksson et M. Hillert, Materials Research Society Symposia Proceedings, vol. 34, North-Holland, (1985), 181.

- B. E. Sundquist, R. Bruscatto et L. F. Mondolfo, *J. Inst. Metals*, **91**, (1962-63), 204.
- B. E. Sundquist et L. F. Mondolfo, *Trans. Met. Soc. AIME*, **221**, (1961), 157.
- G. Tammann et A. A. Botschwar, *Z. Anorg. Chem.*, **26**, (1926), 157.
- J. M. Théret, *Etude du déroulement de la solidification des fontes GS*, Thèse, EMP, Paris, (1979).
- E. R. Thompson *et al*, dans *In-Situ Composites*, Conf. Proc. Nat. Acad. Sci., Washington (USA), NMAB 308, **2**, (1973), 105.
- C. V. Thompson et F. Spaepen, *Acta Metall.*, **31**, (1983), 2021.
- W. A. Tiller, dans *Liquid Metals and Solidification*, ASM, Cleveland, Ohio, (1958), 276.
- B. Toloui et A. Hellawell, *Acta Metall.*, **24**, (1976), 565.
- R. Trivedi, P. Magnin et W. Kurz, *Acta Metall.*, **35**, (1987), 971.
- D. Turnbull et J. C. Fisher, *J. Chem. Phys.*, **17**, (1949), 71.
- D. Turnbull, *J. Chem. Phys.*, **18**, (1950), 198.
- E. E. Underwood, *Quantitative Stereology*, Addison-Wesley, (1970).
- R. A. Vandermeer, R. A. Masumura et B. B. Rath, *Acta Metall.*, **39**, (1991), 383.
- C. Vivès, *Met. Trans.*, **23B**, (1992), 189.
- M. Volmer et A. Weber, *Z. Phys. chem.*, **119**, (1926), 227.
- M. Walker et F. J. Bradley, *Met. Trans. B*, soumis.
- F. Weinberg, *Metall. Trans.*, **15B**, (1984), 479.
- S. E. Wetterfall, H. Fredriksson et M. Hillert, *J. Iron Steel Inst.*, **210**, (1972), 323.
- W. M. Williams et C. S. Smith, *J. Metals*, **4**, (1952), 759.
- R. Wlodawer, *The British Foundryman*, **10**, (1967), 395.
- R. Wlodawer, *J. Microscopy*, **95**, (1972), 285.
- C. Zener, *Trans. Met. Soc. AIME*, **167**, (1946), 550.
- P. Zhu et R. W. Smith, *Acta Metall.*, **40**, (1992), 683 et 3369.
- M. Zimmermann, *Solidification rapide de l'eutectique Al-Al₂Cu par refusion laser*, Thèse EPFL No 899, Lausanne, (1990).
- J. Zou, *Simulation de la solidification eutectique équiaxe*, Thèse EPFL No 774, Lausanne, (1988).

Je vous ai dit autrefois, il n'y a pas longtemps, que je me sentais des velléités non pas d'être quelqu'un, ce qui est, selon moi, un non-sens, mais de produire, ce qui me paraît être la seule excuse de notre pauvre vie.

E. Fromentin, *Dominique*.

LISTE DES PUBLICATIONS

Articles

Ch. Charbon et M. Rappaz, *3D Probabilistic Modelling of Equiaxed Eutectic Solidification*, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.*, **1**, (1993), 455.

M. Rappaz, Ch. Charbon, R. Sasikumar, *About the Shape of Eutectic Grains Solidifying in a Thermal Gradient*, *Acta Metall.*, **42**, (1994), 2365.

Ch. Charbon, A. Jacot et M. Rappaz, *3D Stochastic Modelling of Equiaxed Solidification in the Presence of Grain Movement*, *Acta Metall.*, **42**, (1994), 3953.

Ch.-A. Gandin, Ch. Charbon et M. Rappaz, *Stochastic Modelling of Solidification Grain Structures*, soumis à ISIJ, (1995).

Actes de colloque

J. Ampuero, Ch. Charbon, A. F. A. Hoadley et M. Rappaz, *Modeling of Microporosity Evolution During the Solidification of Metallic Alloys*, dans *Materials Processing in the Computer Age*, Eds V. R. Voller, M. S. Stachowicz et B. G. Thomas, TMS, Warrendale, Pe, USA, (1991), 377.

Ch. Charbon, A. Jacot et M. Rappaz, *Three-dimensional Probabilistic Modelling of Equiaxed Eutectic Solidification in the Presence of Convection*, *Materials Science and Engineering*, **A173**, (1993), 143.

M. Rappaz, Ch.-A. Gandin et Ch. Charbon, *Probabilistic Modeling of Grain Formation in Solidification Processes*, MCWASP VI, Eds T. S. Piwonka, V. Voller and L. Katgerman, TMS, Warrendale, Pe, USA, (1993).

Ch. Charbon et M. Rappaz, *3-Dimensional Modelling of Eutectic Solidification*, Cost 504 Advanced Casting and Solidification Technology, Eds H. Kleemola et B. Pukl, European Commission, Luxembourg, (1994).

Ch. Charbon et M. Rappaz, *3D Modelling of Nodular Cast Iron Solidification*, Nancy, Vth International Conference on the Physical Metallurgy of Cast Iron, Eds J. Lacaze et G. Lesoult, à paraître, (1995).

Conférence sans actes de colloque

Ch. Charbon, Ch.-A. Gandin et M. Rappaz, *3D Modelling of Microstructure Formation in Solidification Processes*, Junior-Euromat, Lausanne, Suisse, (1992).

... accepter son destin et secondairement l'aimer, pour la seule raison qu'il est notre destin et dans toutes ses conséquences. Car c'est en nous que réside la faculté d'en tirer parti, les choses n'étant rien par elles-mêmes, mais pouvant être tout par ce que nous en faisons, ...

C.-F. Ramuz, *Découverte du monde*.

Curriculum-Vitae

Nom	Charbon
Prénom	Christian
Naissance	22 mars 1967 à Lausanne
Originaire de	Treytorrens (Payerne), VD
Etat-civil	Célibataire
Nationalité	Suisse

Formation

02.91	Ingénieur diplômé EPF en science des matériaux
1985-1991	Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne.
06.85	Bachelier ès Sciences
1983-1985	Gymnase cantonal du Belvédère, Lausanne.
06.83	Certificat d'études secondaires mathématiques-sciences
1978-1983	Collège de Morges.

Expérience professionnelle

1991-1994	Candidat au doctorat à l'EPFL, laboratoire de métallurgie physique (Prof. W. Kurz), groupe de simulation numérique (Prof. M. Rappaz).
1989	Stage de trois mois chez Danfoss Inc. à Sonderborg (DK), étude de la résistance à la corrosion des céramiques.

Distinctions

02.91	Prix de la Schweizerische Verband für Material und Technik (SVMT) récompensant la meilleure moyenne générale au diplôme d'ingénieur en science des matériaux EPFL.
-------	--

Situation militaire

Chef de section, officier explorateur.

Loisirs

Course de fond, football, chant choral, littérature d'expression française.

