



**HAL**  
open science

## Directions de croissance et morphologie des microstructures en solidification cristalline directionnelle.

Julien Deschamps

► **To cite this version:**

Julien Deschamps. Directions de croissance et morphologie des microstructures en solidification cristalline directionnelle.. Physique [physics]. Université de Provence - Aix-Marseille I, 2007. Français. NNT: . tel-00202318

**HAL Id: tel-00202318**

**<https://theses.hal.science/tel-00202318v1>**

Submitted on 5 Jan 2008

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

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

UNIVERSITÉ DE PROVENCE AIX-MARSEILLE I  
Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre

# THÈSE

présentée pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE PROVENCE

*Discipline : Systèmes Complexes*

*École doctorale : Physique, Modélisation et Sciences pour l'Ingénieur*

par **Julien DESCHAMPS**

le 14 Juin 2007

## Directions de croissance et morphologie des microstructures en solidification cristalline directionnelle

Directeur de thèse : **A. POCHEAU**

### JURY :

<b>S. Akamatsu</b>	
<b>J. M. Debierre</b>	
<b>G. Faivre</b>	<i>Rapporteur</i>
<b>M. Georgelin</b>	
<b>D. Gobin</b>	<i>Président</i>
<b>P. Molho</b>	<i>Rapporteur</i>
<b>A. Pocheau</b>	<i>Directeur</i>







UNIVERSITÉ DE PROVENCE AIX-MARSEILLE I  
Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre

# THÈSE

présentée pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE PROVENCE

*Discipline : Systèmes Complexes*

*École doctorale : Physique, Modélisation et Sciences pour l'Ingénieur*

par **Julien DESCHAMPS**

le 14 Juin 2007

## Directions de croissance et morphologie des microstructures en solidification cristalline directionnelle

Directeur de thèse : **A. POCHEAU**

### JURY :

<b>S. Akamatsu</b>	
<b>J. M. Debierre</b>	
<b>G. Faivre</b>	<i>Rapporteur</i>
<b>M. Georgelin</b>	
<b>D. Gobin</b>	<i>Président</i>
<b>P. Molho</b>	<i>Rapporteur</i>
<b>A. Pocheau</b>	<i>Directeur</i>



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Alain Pocheau qui a été mon directeur de thèse et qui m'a donné l'opportunité de réaliser ce travail dans des conditions optimales : malgré ses obligations de directeur du laboratoire, il a été d'une très grande disponibilité ; il a su me guider au mieux tout au long de ces trois années. Lors de nos nombreuses discussions, sa grande culture scientifique m'a permis de m'ouvrir à de nombreuses facettes de la physique. Je lui dois beaucoup dans la qualité du travail accompli.

Je tiens également à remercier vivement Marc Georgelin qui a co-encadré ma thèse : il a été très impliqué dans ce travail et a rendu cette étude très dynamique : il m'a toujours impressionné par sa rapidité à comprendre un problème et à en proposer des solutions. Il m'a beaucoup soutenu et chaque moment passé à travailler ensemble a été très fructueux et très agréable.

Je remercie les rapporteurs de cette thèse Gabriel Faivre et Pierre Molho pour leurs nombreuses remarques constructives. Merci également à Dominique Gobin pour avoir présidé le jury et avoir porté un regard objectif sur le travail accompli. Je remercie Silvère Akamatsu et Jean-Marc Debierre qui ont accepté de compléter le jury.

Je tiens également à remercier Simona Bodea et Marc Léonetti pour leur bonne humeur, leur gentillesse et l'intérêt qu'ils ont porté à mon étude. Je tiens également à remercier Christophe Clanet pour les nombreuses discussions que nous avons eu et pour m'avoir en partie donné envie de faire de la recherche.

Pour mener à bien ce travail, j'ai eu la chance d'être assisté par le personnel technique du laboratoire qui a rendu possible l'évolution du dispositif expérimental afin de réaliser mes expériences. Je pense notamment à Jacky qui est d'une patience et d'une gentillesse extrême, à Franck qui est d'un grand dynamisme, à Raymond et Mathieu qui ont toujours su trouver des solutions à mes problèmes. J'ai également pensé pour ceux qui ont quitté le laboratoire et qui ont participé au bon déroulement de la thèse : je pense notamment à Sylvain, Fabrice et Jean-Paul. Ceux qui les remplacent, Hubert et Eric, n'ont rien à leur envier tant par leur disponibilité que par leur gentillesse.

Je tiens à saluer toutes les personnes de l'administration et de l'entretien qui ont participé à la bonne ambiance que j'ai ressentie au sein du laboratoire. Je pense en particulier aux "filles" : Delphine, Lucienne, Claudine, Cathy, Sophie, Marie-Pierre, Guilène et Judith.

Un grand merci aux thésards qui ont croisé mon chemin et dont certains sont devenus des amis : Xabier, François, Clément, Laurent ...

J'ai une pensée amicale pour ceux qui m'ont accompagné ou que j'ai accompagné pendant les nombreuses sorties sportives : Anne-Marie, Laurence, Fabienne, Christophe, Guilbert, Patrice, Stephen...

Merci à tous ceux qui n'ont jamais su exactement ce que je faisais ni pourquoi je le faisais mais qui m'ont toujours encouragé et épaulé : Ma Famille, mes amis de la plaine (du Forez), ceux de l'ESM2.

Enfin, j'ai une pensée émue pour Gwénaëlle qui a toujours été à mes côtés, qui m'a supporté et aidé de la meilleure façon qui soit : je lui dit un grand Merci.





# Table des matières



# Introduction

La plupart des métaux de notre environnement sont le produit d'un processus de solidification cristalline induit par la progression d'une interface séparant les phases liquide et solide. Les déformations et la dynamique de cette frontière engendrent des structures qui, *in fine*, se retrouvent imprimées dans le solide et modulent ainsi en partie ses caractéristiques physiques. On imagine alors tout l'enjeu qu'il y a à comprendre et à maîtriser la morphologie et l'évolution de l'interface de solidification.

En solidification directionnelle, le gradient de température et la vitesse moyenne de croissance sont imposés au front de solidification. La majorité des travaux expérimentaux, numériques et théoriques menés dans cette discipline ont souvent été réalisés dans des configurations modèles, éloignées des conditions naturelles ou industrielles. Il apparaît utile de les compléter en considérant la solidification dirigée dans des conditions de croissance plus réalistes (grains quelconques, fronts courbés, tailles inhomogènes...). Dans ce but, un paramètre essentiel à prendre en compte est l'anisotropie cristalline induite par le réseau cristallin et dont les conséquences vis-à-vis de la direction de croissance et la morphologie des cellules et dendrites sont primordiales.

En particulier, la direction de croissance des structures évolue entre deux directions principales de croissance : une direction fixée à l'échelle microscopique par les axes du cristal, une direction fixée à l'échelle macroscopique par le gradient de température. Afin d'éclaircir ce comportement, nous menons une étude expérimentale détaillée de l'évolution de la direction de croissance des structures et de ses implications morphologiques. Cette étude est d'abord menée sur des réseaux cellulaires et dendritiques homogènes avant d'être étendue à des configurations inhomogènes plus naturelles. Pour cela nous utilisons majoritairement un alliage à base de succinonitrile dont la croissance est non facettée, comme celle des métaux. Le matériau est utilisé en échantillons minces permettant une visualisation non-intrusive de la dynamique de l'interface tout en s'affranchissant des courants convectifs.

Le chapitre 1 présente les principaux effets liés à l'anisotropie dans divers systèmes de croissance, notamment en solidification directionnelle. On y expose ensuite la modélisation de base de la croissance directionnelle en soulignant les aspects liés à l'anisotropie.

Le dispositif expérimental existant au début de la thèse est présenté au chapitre 2 ainsi que les modifications qui lui ont été apportées afin de conduire les expériences. Les différents paramètres du problème de croissance sont également

introduits.

Le chapitre 3 est consacré à la caractérisation complète du comportement en orientation des structures de succinonitrile en réponse à des variations de vitesse du front, de taille des structures et d'angle d'ouverture défini comme l'angle entre la direction du gradient thermique et celle de l'anisotropie. Une loi d'orientation pour des réseaux de cellules et de dendrites homogènes en taille et en gradient thermique est alors déterminée.

Ce résultat est étendu au chapitre 4 en variant d'une part l'intensité du gradient thermique et d'autre part la nature de l'anisotropie cristalline à travers l'utilisation d'autres matériaux que le succinonitrile. A l'issue de cette étude, une nouvelle échelle morphologique des structures est définie, permettant d'obtenir une réponse en orientation universelle, ne dépendant ni du matériau, ni de l'angle d'ouverture.

Au chapitre 5, les gammes de stabilité sont étudiées en fonction de l'angle d'ouverture, du gradient thermique et de la vitesse de croissance des structures.

Ce résultat et celui concernant les directions de croissance sont appliqués à des structures inhomogènes au chapitre 6. En particulier, les tailles des structures, l'angle d'ouverture et l'intensité du gradient thermique sont successivement et indépendamment variés le long du front afin de tester la validité de l'application aux configurations inhomogènes des résultats obtenus sur les structures homogènes.

L'étude sur la direction de croissance des structures nous conduit ainsi à l'obtention d'une loi expérimentale universelle de croissance, indépendante de la morphologie des structures et des alliages utilisés. Cette loi et les gammes de stabilité des structures obtenues pour des réseaux homogènes en taille sont également validées par leurs applications locales sur des fronts en configurations plus naturelles. Les éléments sont ainsi réunis pour permettre la prédiction de l'évolution d'un réseau quelconque de dendrites le long de fronts très divers.

# Chapitre 1

## Solidification directionnelle et anisotropie

Certains systèmes physiques à croissance d'interface présentent des caractéristiques anisotropes qui se signalent par des morphologies particulières. Ceci est notamment le cas en solidification cristalline où l'existence d'une anisotropie dans le réseau cristallin induit une anisotropie des propriétés de tension de surface et de sous-refroidissement cinétique, et ainsi la croissance de dendrites selon certains axes de symétrie du cristal. Celles-ci donnent lieu à la formation de microstructures qui s'impriment dans la phase solide et influent sur certaines de ses caractéristiques physiques. On comprend alors l'importance de l'anisotropie pour ce type de système.

Dans un premier temps, nous présentons divers systèmes physiques et biologiques auxquels une anisotropie d'origine externe est imposée. Nous détaillons également certaines morphologies caractéristiques obtenues en solidification. En second lieu, nous abordons la solidification et sa modélisation, notamment en détaillant ses équations ainsi que certains comportements qualitatifs essentiels. Nous y décrivons enfin les modifications à apporter à la modélisation pour y inclure l'anisotropie cristalline.

## 1.1 Effets d'anisotropie

Un système physique anisotrope possède des caractéristiques variables en fonction des directions de l'espace. L'anisotropie engendre, notamment dans les systèmes à croissance d'interface, des dynamiques d'évolutions spécifiques conduisant à des morphologies d'interfaces très variées. Il existe un certain nombre de systèmes physiques et biologiques dont l'anisotropie est soit intrinsèque (cristaux) soit extrinsèque (croissance de bactéries sur réseau) de sorte qu'il est instructif d'en observer les effets afin d'en jauger toute l'importance.

### 1.1.1 Effets d'anisotropie dans divers systèmes physiques et biologiques

Nous décrivons ici trois systèmes auxquels est imposée une anisotropie extérieure.

- En électrodéposition, le fait d'imposer une différence de tension entre deux électrodes plongées dans un bain électrolytique, entraîne la croissance de branches désordonnées entre les électrodes [?]. Si on grave sur le substrat des lignes microscopiques de Téflon dirigées d'une électrode à l'autre, il existe une certaine gamme de tension et de concentration en électrolyte qui permet l'obtention de formes dendritiques [?] (Fig. ??a). Ici, l'anisotropie est imposée par les sillons de Téflon qui ont pour effet de stabiliser les pointes des dendrites. L'application d'un champ magnétique conduit également à une structuration en dendrites croissants dans une direction particulière [?] (Fig. ??b).

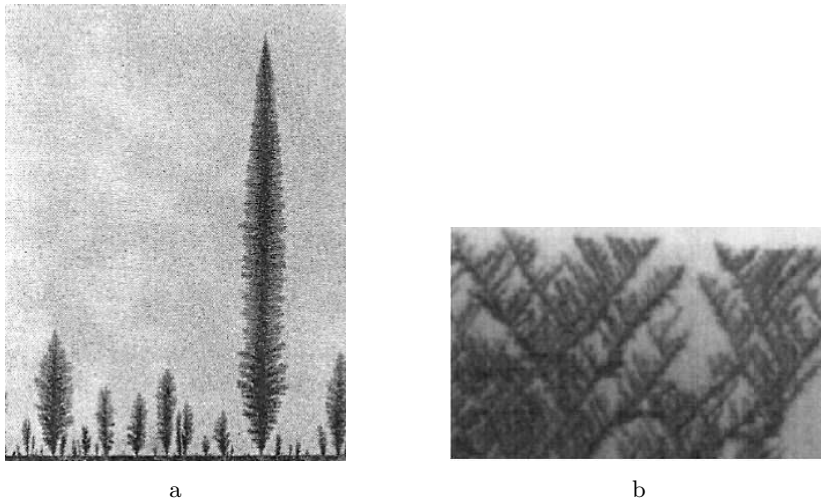


FIG. 1.1: Formes dendritiques en électrodéposition. (a) Dans un bain électrolytique de concentration  $c$ , on place deux électrodes opposées entre lesquelles est appliquée une différence de tension  $\Delta V$ . On grave sur le substrat des sillons microscopiques. Dans une certaine gamme de paramètres, on assiste à une structuration en dendrites orientées selon la direction des sillons [?]. (b) Dendrites en électrodéposition lorsqu'on impose un champ magnétique dans le plan de l'échantillon de la gauche vers la droite [?].

- En biologie, les colonies de bactéries croissent et progressent en fonction de la concentration en nourriture et de leur diffusion sur le substrat plus ou moins rigide. L'interface ainsi formée présente la morphologie désordonnée de la figure ?? .a. En imprimant un réseau régulier qui modifie la résistance mécanique locale du substrat, on assiste à l'organisation de l'interface sous forme dendritique pointant les directions principales du réseau [?] (Fig. ?? .b,c). Cela peut ainsi conduire à des formes développées selon 4 axes (Fig. ?? .b) ou 6 axes (Fig. ?? .c).

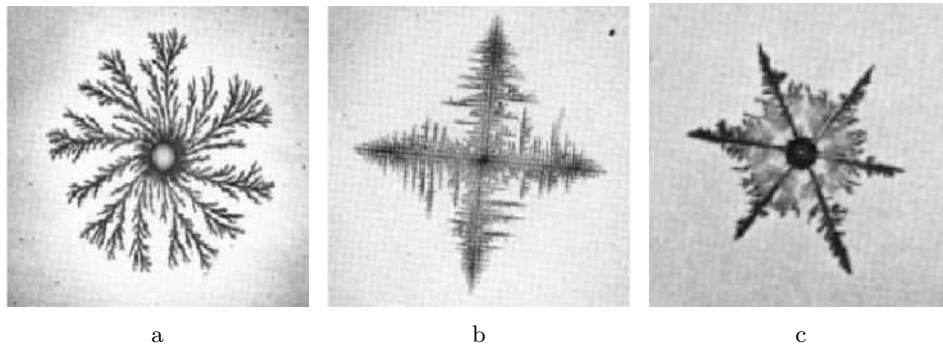


FIG. 1.2: Effet d'anisotropie sur des colonies de bactéries [?]. Les bactéries se reproduisent dans une boîte de Pétri sur un substrat plus ou moins rigide : l'agar. Elles définissent un front dont la dynamique est couplée à celle de diffusion de la concentration en nourriture dans la colonie. (a) Croissance fractale en l'absence d'anisotropie. (b) Croissance dendritique en présence d'un réseau carré. (c) Croissance dendritique en présence d'un réseau hexagonal.

- En digitation visqueuse, on pousse un fluide peu visqueux dans un fluide plus visqueux entre deux plaques de verre, ce qui a pour effet de déstabiliser leur interface et conduire à la formation de doigts (Fig. ?? .a). Si un réseau est gravé sur une plaque de cette cellule de Hele-Shaw, on observe des dendrites qui croissent dans les directions imposées par le réseau [?] (Fig. ?? .b). Des morphologies similaires à celles observées en solidification directionnelle sont alors obtenues lorsqu'on effectue les mêmes expériences pour une éjection de fluide le long d'une ligne (Fig. ?? .c,d).

Les trois systèmes évoqués ci-dessus exhibent des formes similaires lorsqu'on leur impose une anisotropie. En particulier, l'anisotropie donne lieu à des directions particulières de croissance directement reliées aux directions spécifiques du cristal ou du substrat. Les effets des réseaux imposés en électrodéposition, en croissance de bactérie, en digitation visqueuse ou bien en croissance de cristaux liquides [?] mettent ainsi en lumière toute l'importance de l'anisotropie dans ces systèmes physiques.



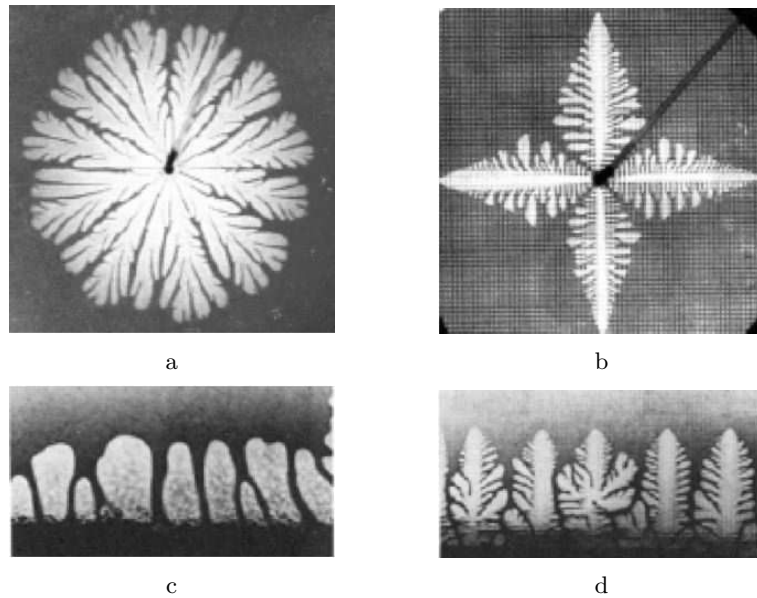


FIG. 1.3: Effet d'anisotropie en digitation visqueuse. Un fluide peu visqueux est poussé dans un fluide plus visqueux dans une cellule de Hele-Shaw. (a) Ejection en un point sans anisotropie. (b) éjection en un point avec une anisotropie forcée par un réseau carré gravé sur une des plaques [?]. Ejection le long d'une ligne horizontale sans anisotropie (c) et sur un réseau carré (d) [?].

### 1.1.2 Effets d'anisotropie en solidification

Outre les systèmes auxquels une anisotropie est imposée par le milieu, il existe également des systèmes pour lesquels l'anisotropie est intrinsèque. Ainsi, lors de la solidification de cristaux métalliques ou organiques, certaines propriétés importantes de l'interface solide/liquide se révèlent anisotropes.

On distingue deux grandeurs anisotropes lors de la solidification de cristaux, à savoir l'anisotropie de tension de surface et l'anisotropie cinétique. La première donne lieu à une rigidité de l'interface variable selon les directions de sa normale, tandis que la seconde joue un rôle similaire sur les vitesses de croissance à sous-refroidissement fixé ou sur le sous-refroidissement à vitesse de croissance fixée (cf. paragraphe 1.2.1). Ces deux anisotropies coexistent pour chaque matériau de manière plus ou moins prononcée [?]. Comme pour les systèmes physiques évoqués ci-dessus, elles se révèlent indispensables pour la stabilisation des structures en solidification libre ou directionnelle [?, ?].

L'anisotropie cristalline est la conséquence du réseau cristallin adopté par les matériaux solides et se manifeste par exemple lors de l'observation d'un flocon de neige. Bien que le cristal de glace se solidifie en réseau hexagonal dans un environnement à trois dimensions, celui-ci présente une forme étoilée bidimensionnelle [?]. Dans le plan du flocon, l'anisotropie de tension de surface domine et a pour conséquence la forme branchée où chaque pointe de dendrite croît selon une direction principale du réseau. Par ailleurs, l'anisotropie cinétique engendre le caractère bidimensionnel du cristal en imposant une croissance lente dans la direction perpendiculaire à la forme étoilée (Fig. ?? .a,b).

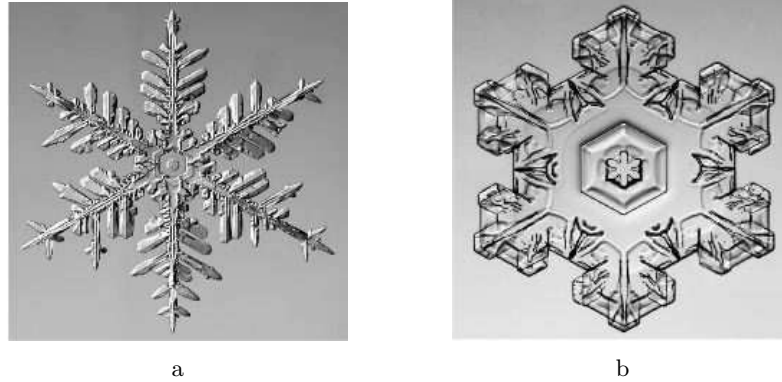


FIG. 1.4: Manifestation des anisotropies de tension de surface et cinétique sur les flocons de neige [?]. La géométrie des flocons de neige semble être bidimensionnelle alors que les cristaux de glace croissent dans un espace tridimensionnel. Dans le plan de croissance étoilée, c'est l'anisotropie de tension de surface qui domine en procurant la symétrie hexagonale au cristal. Dans la direction perpendiculaire à ce plan, la croissance est limitée par la cinétique de croissance due à l'anisotropie cinétique.

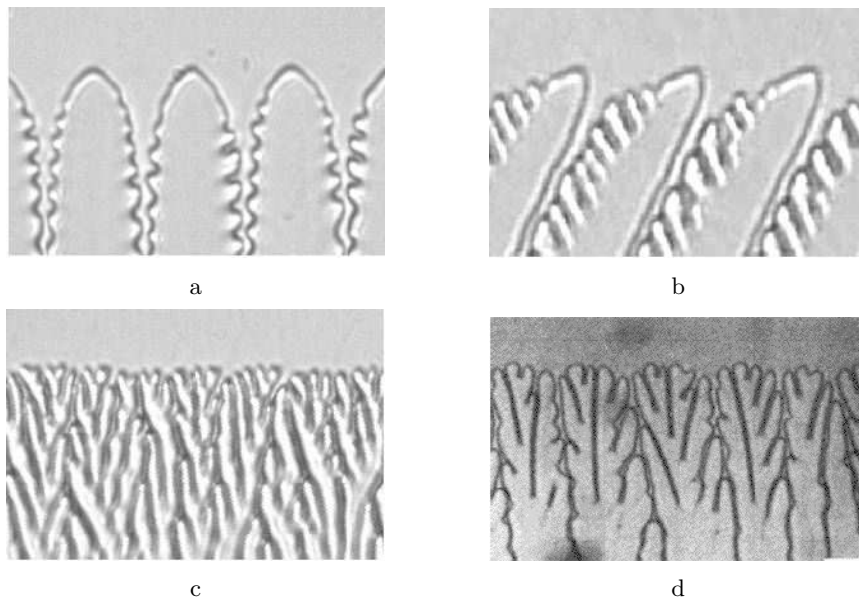


FIG. 1.5: Différentes morphologies en solidification directionnelle dues aux effets d'anisotropie. Elles sont produites dans le dispositif expérimental pour (a), (b) et (c) et dans un autre dispositif pour (d) [?, ?]. (a) L'axe  $[1\ 0\ 0]$  du cristal est orienté dans le plan de l'échantillon parallèlement au gradient thermique. On observe des dendrites symétriques. (b) L'axe  $[1\ 0\ 0]$  est incliné de  $30^\circ$ , les dendrites sont alors asymétriques et inclinées ici de  $17^\circ$ . (c) Pour une orientation de  $45^\circ$ , on obtient un mode dit "dégénéré". (d) L'axe  $[1\ 1\ 1]$  est aligné avec le gradient de température, le front adopte alors la morphologie dite en "algues" [?].

## 1. Solidification directionnelle et anisotropie

---

En solidification directionnelle, où on force un monocristal à se solidifier à une vitesse imposée dans un gradient thermique, on trouve également tout un panel de morphologies témoignant de l'anisotropie cristalline. En particulier :

- Lorsque la direction  $[1\ 0\ 0]$  d'un cristal cubique est alignée avec le gradient de température, le front s'organise en cellules ou dendrites symétriques (Fig. ??a).
- Lorsque la direction  $[1\ 1\ 1]$  du cristal est alignée avec le gradient de température, il n'existe plus, dans une certaine gamme de paramètre, de dendrites mais un mode dit "algues" composé de structures instationnaires [?, ?] (Fig. ??d).
- Une orientation de l'axe  $[1\ 0\ 0]$  de  $45^\circ$  par rapport au gradient thermique exhibe un mode dit "dégénéré" [?, ?] composé de petites structures se coupant en permanence à la pointe (Fig. ??c).
- Lorsque l'axe  $[1\ 0\ 0]$  du cristal est orienté entre  $0$  et  $45^\circ$ , le front s'organise à nouveau en dendrites asymétriques, inclinées et présentant des branchements principalement sur un flanc (Fig. ??b). Mais le plus étonnant provient de la direction d'orientation de ces dendrites puisqu'elles ne sont ni orientées selon le gradient thermique ni selon la direction  $[1\ 0\ 0]$  mais selon une direction intermédiaire qui semble varier avec les paramètres du système [?, ?, ?, ?, ?, ?, ?].

Cette dernière caractéristique est essentielle car la micro-ségrégation observée dans les solides dont dépendent ses caractéristiques physiques sont directement reliées aux directions de croissance des structures ainsi qu'à leur morphologie. Notre étude sera alors dédiée à la détermination de la direction de croissance des structures de solidification en fonction des divers paramètres du système et dans des conditions de croissance très diverses.

## 1.2 Solidification directionnelle

La solidification dirigée consiste à faire croître un solide cristallin depuis un mélange liquide dans un gradient de température  $\mathbf{G}$  maîtrisé et à une vitesse  $\mathbf{V}$  contrôlée. Lors de la croissance, il y a rejet de chaleur latente et de soluté à l'interface liquide/solide dans la phase liquide, puis diffusion dans le liquide et le solide. L'interface constitue donc une frontière évolutive pour les domaines liquide et solide. Pour ces raisons, sa dynamique correspond à un problème à frontière libre.

### 1.2.1 La modélisation

La solidification directionnelle est modélisée par un système d'équations différentielles qui expriment les évolutions des champs de concentration et de température dans chaque phase ainsi que les relations de passage à la traversée de l'interface. Elles sont souvent établies dans le cadre des approximations suivantes :

**a** : l'interface est à l'équilibre thermodynamique local.

**b** : la diffusion de soluté dans le solide est négligeable devant celle dans le liquide. Le champ de concentration est alors gelé dans le solide.

**c** : le champ de température est considéré comme quasi-statique du fait de la diffusion rapide de la chaleur en comparaison de celle du soluté.

Nous considérons ci-dessous un alliage binaire de concentration initiale  $c_0$  dont le diagramme de phase est représenté sur la figure ???. Sur le schéma,  $m$  représente la pente du liquidus et  $k$ , le coefficient de partage. Le mélange est forcé à se solidifier selon la direction  $z$  à une vitesse  $\mathbf{V} = V \cdot \mathbf{e}_z$  dans un gradient de température  $\mathbf{G} = G \cdot \mathbf{e}_z$ .

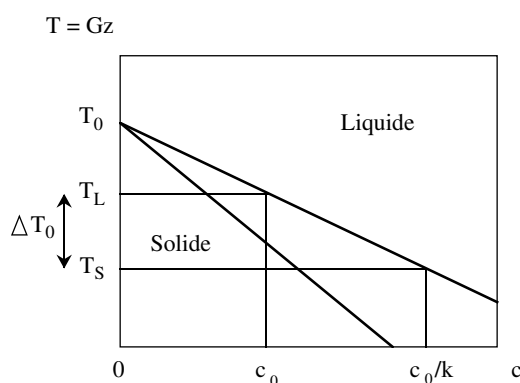


FIG. 1.6: Diagramme de phase d'un alliage binaire dilué.  $T_0$  est la température de fusion du corps pur.  $c_0$  est la concentration du liquide homogène.  $T_L$  et  $T_S$  sont les températures du liquidus et du solidus à la concentration  $c_0$ . La pente du liquidus est  $m$  et  $k$  désigne le coefficient de partage, rapport des pentes du solidus et liquidus.

## 1. Solidification directionnelle et anisotropie

---

L'hypothèse (c) indique que le facteur limitant pour la croissance est la dynamique de diffusion du soluté. L'hypothèse (b) implique alors une dynamique de diffusion/advection de la concentration dans la phase liquide. En nous plaçant dans la référentiel du laboratoire animé d'une vitesse de translation  $-V$  par rapport à celui du liquide, ces hypothèses impliquent :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\Delta c + V\frac{\partial c}{\partial z} \quad (1.1)$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion solutale.

De même, l'hypothèse (b) conduit à une équation de bilan au niveau de l'interface entre le rejet de soluté et sa diffusion dans le liquide :

$$D\nabla c|_{i \cdot \mathbf{n}} = (c_i - c_s)\mathbf{V}_i \cdot \mathbf{n} \quad (1.2)$$

où le membre de droite symbolise le rejet et le membre de gauche, la diffusion. On indice par  $i$  les grandeurs relatives à l'interface et  $\mathbf{n}$  désigne la normale à l'interface.

L'hypothèse (a) permet de préciser l'état thermodynamique à l'interface par l'équation de Gibbs-Thomson ainsi qu'une relation donnant la concentration à l'interface (Fig. ??) :

$$T_i = T_0 - mc_i - \gamma\frac{T_0}{QR} \quad (1.3)$$

$$c_s = kc_i \quad (1.4)$$

L'équation de Gibbs-Thomson (1.3) décrit l'écart de la température de l'interface à la température de fusion  $T_0$  du corps pur. Cette différence est due à deux effets : le premier terme  $mc_i$  (Fig. ??), traduit la présence de soluté où  $m$  est la valeur absolue de la pente du liquidus ; le second terme  $\gamma\frac{T_0}{QR}$ , est relatif à la courbure de l'interface où  $\gamma$  représente la tension superficielle,  $Q$  la chaleur latente par unité de volume et  $R$  le rayon de courbure positif lorsque le solide bombe vers le liquide.

Ce groupe d'équations est complété par la condition aux limites de concentration loin de l'interface :  $c = c_0$  à  $z = \infty$ .

L'écart à l'équilibre thermodynamique est modélisé par l'introduction dans l'équation de Gibbs-Thomson du sous refroidissement cinétique  $\mathbf{V}_i \cdot \mathbf{n}/\mu$  :

$$T_i = T_0 - mc_i - \gamma\frac{T_0}{QR} - \frac{\mathbf{V}_i \cdot \mathbf{n}}{\mu} \quad (1.5)$$

où  $\mathbf{V}_i \cdot \mathbf{n}$  est la vitesse normale de l'interface et  $\mu$  le coefficient cinétique.

### 1.2.2 Analyse qualitative

Ce système d'équations permet de résoudre le champ de concentration pour un front plan poussé à une vitesse  $V$  puis d'en effectuer l'étude de stabilité linéaire. Celle-ci montre que le front plan est instable pour des vitesses supérieures à une certaine vitesse critique,  $V_c$  [?]. Ceci correspond à un effet de resserrement de lignes d'iso-concentration suite à une perturbation du front. Le flux de diffusion de concentration est alors augmenté ce qui par la relation (1.2) a pour conséquence

d'accroître l'avancée du front (Fig. ??). La diffusion a donc un effet déstabilisant. En revanche, le gradient thermique, qui impose des isothermes planes à l'avant du front, a un effet stabilisant. La tension superficielle stabilise également le front en rendant coûteux en terme de sous-refroidissement le développement de l'aire de l'interface. A l'issue de l'instabilité primaire, le front se restabilise par des effets non-linéaires en un réseau de structures appelées cellules (Fig. ??a). Lorsqu'on augmente encore la vitesse, les flancs des cellules deviennent à leur tour instables et présentent des branchements répétitifs qui défilent le long de leur flancs. Les structures ainsi formées sont appelées dendrites (Fig. ??b).

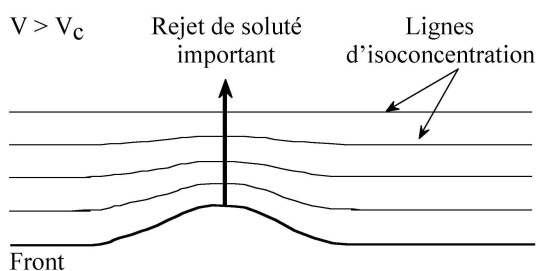


FIG. 1.7: Front plan de solidification perturbé. En situation instable, les lignes d'isoconcentration sont resserrées au niveau de la bosse. Elles facilitent ainsi le dégagement de soluté ce qui favorise la croissance.

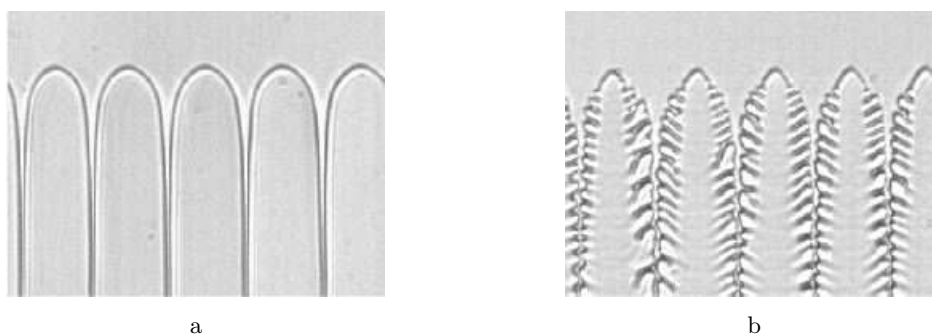


FIG. 1.8: Formes courantes du front de solidification restabilisé. (a) Cellules pour le succinonitrile à basse vitesse  $V = 5\mu m.s^{-1}$ . (b) Dendrites lorsque la vitesse est plus importante,  $V = 40\mu m.s^{-1}$ . On note l'apparition de branchement latéraux. Les deux images sont obtenues pour  $G = 140K.cm^{-1}$ .

Trois échelles de longueurs émergent du modèle de croissance :

- La longueur de diffusion  $l_d = D/V$  qui est la taille sur laquelle la diffusion l'emporte sur l'advection. C'est également la taille du bourrelet de soluté rejeté à l'avant du front plan lors de son avancée.
- La longueur thermique  $l_T = \frac{\Delta T_0}{G}$  qui correspond à la distance sur laquelle la température change de  $\Delta T_0 = \frac{1-k}{k} m c_0$  (Fig. ??).

## 1. Solidification directionnelle et anisotropie

---

- La distance capillaire  $d_0 = \frac{\gamma T_0}{\Delta T_0 Q}$  qui jauge les effets de tension de surface.

En théorie, le front plan est instable pour des valeurs de  $l_d$  comprises entre  $d_0$  qui est de l'ordre de  $10^{-8}m$  et  $l_T$  qui est de l'ordre de  $10^{-3}m$ . Il est donc susceptible de générer des tailles sur une plage d'extension relative  $10^5$ . D'un point de vue numérique, il devient alors assez difficile et très coûteux en temps de calcul de résoudre le système sur toutes ces échelles de longueur. Il est notamment délicat de résoudre l'épaisseur de l'interface. Il y a encore une dizaine d'années, il était impossible de calculer complètement une seule dendrite en trois dimensions avec des paramètres réalistes. Actuellement, les méthodes de champ de phase [?] qui consistent à épaissir artificiellement l'interface pour mieux simuler sa dynamique, permettent de résoudre de nombreux problèmes de solidification [?, ?].

Bien que l'analyse linéaire du modèle prévoie une gamme de tailles de dendrites très étendue, les tailles observées expérimentalement ne sont pas aussi variées. La différence entre la gamme de tailles observée et la gamme prédite s'explique en partie par les instabilités secondaires subies par les structures (cf. chapitre 5).

## 1.3 L'anisotropie en solidification directionnelle

De nombreux développements théoriques ont été menés dans les années 1980 en solidification libre où ni le gradient thermique, ni la vitesse de croissance ne sont imposés. Ces modèles [?, ?, ?, ?, ?] indiquent qu'en absence de tension superficielle, il n'existe pas de formes dendritiques stationnaires de l'interface. En présence de tension superficielle, le système possède une infinité de solutions. Ce n'est qu'en introduisant l'anisotropie capillaire dans le modèle théorique qu'on sélectionne une unique solution stable [?].

En solidification directionnelle, une très faible anisotropie capillaire effective dans le plan de croissance (voir chapitre 2) a pour conséquence de déstabiliser le front dendritique en mode dit en "algues" ou en doublons [?, ?, ?]. A plus haute anisotropie, le front présente une structuration dendritique stationnaire.

L'anisotropie joue donc un rôle capital dans l'existence même de la dendrite. Au delà, il apparaît sur la figure 1.5 que l'anisotropie a aussi un impact très grand sur les directions de croissance et les formes des structures. Afin de mesurer qualitativement son importance en solidification directionnelle, nous décrivons ci-dessous la modification apportée par l'anisotropie cristalline à la modélisation présentée dans le paragraphe précédent, en prenant l'exemple spécifique du matériau utilisé dans l'expérience, le succinonitrile.

### 1.3.1 Modifications dues à l'anisotropie

L'anisotropie cristalline intervient au niveau de l'équation de Gibbs-Thomson et a essentiellement un effet sur la tension de surface  $\gamma$  et sur le coefficient cinétique  $\mu$ , tous deux dépendant de l'orientation de la normale  $\mathbf{n}$  à l'interface par rapport au réseau cristallin.

L'équation de Gibbs-Thomson est le fruit d'une minimisation de l'énergie libre du système où l'énergie de surface s'écrit dans le cas isotrope  $\int \gamma dS$  pour une surface  $S$  entre les deux phases. Lorsqu'on prend en compte l'anisotropie de la tension de surface, le terme  $\int \delta\gamma dS$  s'ajoute au terme précédent où  $\delta\gamma$  représente la variation de tension de surface.

Pour le calculer, on se place à trois dimensions où  $(x_1, x_2)$  représentent les axes curvilignes principaux de la surface ayant pour origine le point O. Chaque point de la surface est repéré par les angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  et présente les rayons de courbure associés  $R_1$  et  $R_2$  (Fig. ??). On considère alors une déformation de l'interface autour du point O (Fig. ??) représentée par la distance  $\xi(x_1, x_2)$  entre l'interface non déformée et l'interface déformée. Or  $\gamma$  dépend des deux angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  :

$$\delta\gamma = \frac{\partial\gamma}{\partial\theta_1}\delta\theta_1 + \frac{\partial\gamma}{\partial\theta_2}\delta\theta_2$$

Avec, d'après la figure ??,  $\delta\theta_i = \frac{\partial\xi}{\partial x_i}$ , où  $i = [1; 2]$ . Ainsi :

$$\delta\gamma = \frac{\partial\gamma}{\partial\theta_1} \frac{\partial\xi}{\partial x_1} + \frac{\partial\gamma}{\partial\theta_2} \frac{\partial\xi}{\partial x_2}$$

En intégrant par partie et en remarquant que les termes de bords s'annulent en moyenne, il vient alors :

$$\int \delta\gamma dS = - \int \xi dS \left( \frac{\partial^2\gamma}{\partial x_1 \partial\theta_1} + \frac{\partial^2\gamma}{\partial x_2 \partial\theta_2} \right)$$



## 1. Solidification directionnelle et anisotropie

Soit avec  $\frac{\partial}{\partial x_i} = \frac{1}{R_i} \frac{\partial}{\partial \theta_i}$  :

$$\int \delta\gamma dS = - \int \xi dS \left( \frac{1}{R_1} \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta_1^2} + \frac{1}{R_2} \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta_2^2} \right)$$

L'équation de Gibbs-Thomson corrigée vaut alors :

$$T = T_0 - mc_i - \left( \left( \gamma + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta_1^2} \right) \frac{1}{R_1} + \left( \gamma + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta_2^2} \right) \frac{1}{R_2} \right) \frac{T_0}{Q} - \frac{\mathbf{V} \cdot \mathbf{n}}{\mu}$$

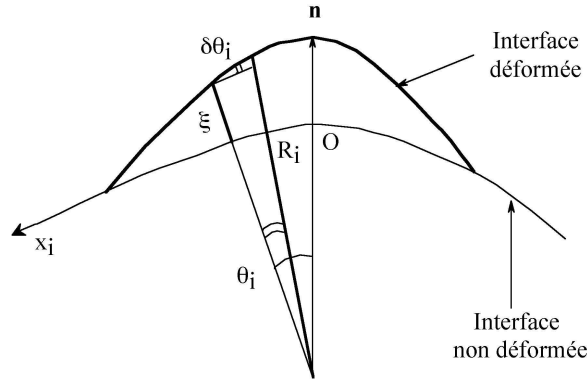


FIG. 1.9: Représentation à deux dimensions des effets d'une évolution de l'interface. Cela implique une élévation  $\xi$  dans la direction normale à  $x_i$ . Le calcul montre que la contribution dans la variation d'énergie libre due à la variation de l'interface est  $\frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta_i^2}$ .

### 1.3.2 Modélisation de l'anisotropie

A deux dimensions et par des considérations de symétrie liées à la géométrie d'un réseau carré, la tension de surface est souvent modélisée par :

$$\gamma(\mathbf{n}) = \gamma'_0 (1 + \epsilon' (n_x^4 + n_y^4))$$

où  $n_x$  et  $n_y$  sont les composantes dans la base  $(x, y)$  de la normale  $\mathbf{n}$  à l'interface,  $\gamma'_0$  la tension de surface moyenne et  $\epsilon'$  le facteur, positif, d'anisotropie de tension superficielle. On nomme  $\theta$  l'angle entre  $\mathbf{n}$  et  $\mathbf{x}$  :  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{x} = \cos(\theta)$ . On obtient alors :

$$\gamma(\theta) = \gamma_0 (1 + \epsilon_c \cos 4\theta)$$

où  $\gamma_0 = \gamma'_0 (1 + 3\epsilon'/4)$  et  $\epsilon_c = \epsilon'/(4 + 3\epsilon')$ . Alors, la contribution dans l'équation de Gibbs-Thomson est [?, ?, ?, ?] :

$$\gamma + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta^2} = \gamma_0 (1 - 15\epsilon_c \cos 4\theta) \quad (1.6)$$

En solidification libre *i. e.* en milieu métastable sous-refroidi sans gradient de température, on considère que les dendrites croissent dans la direction où le coefficient  $\gamma + \frac{\partial^2 \gamma}{\partial \theta^2}$ , appelé aussi rigidité de l'interface, est minimal. Celle-ci est

### 1.3. L'anisotropie en solidification directionnelle

souvent la direction  $[1\ 0\ 0]$ , mais il a été montré récemment que des termes additionnels dans le développement de  $\gamma(\mathbf{n})$  peuvent conduire à d'autres conclusions [?].

L'anisotropie cinétique est modélisée de manière similaire [?] :

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{\mu_0}(1 - \epsilon_k \cos 4\theta) \quad (1.7)$$

D'autres types de modélisation existent [?]. Les deux anisotropies coexistent au sein des matériaux, mais leurs effets conjugués sont difficiles à évaluer. T. Ihle montre que lorsque les positions des minima des anisotropies de tension de surface et cinétique sont différentes de  $\pi/4$ , la direction de croissance des dendrites peut être imposée par la direction du minimum du coefficient cinétique [?] plutôt que par la direction du minimum de la rigidité de surface. Il observe même des oscillations entre les deux directions.

Nous donnons ci-dessous pour certains matériaux, les valeurs des coefficients de tension superficielle entre solide et liquide, des coefficients cinétiques et de leurs anisotropies respectives (Tab. ??).

Matériaux	Tension de surface ( $J.cm^{-2}$ )	Anisotropie superficielle (%)	Coefficient cinétique ( $\mu m.s^{-1}K^{-1}$ )	Anisotropie cinétique (%)
SCN	$8.9 \times 10^{-7}$ [?]	0.5 [?, ?]	faible	?
PVA	$2.8 \times 10^{-7}$ [?]	0.6 [?] 5 [?]	fort	?
$H_2O$	$2.8 \times 10^{-6}$ [?]	0.1 à 0.3 [?]	faible	?
$CBr_4$	$6.6 \times 10^{-7}$ [?]	0.4 [?] 0.8 [?]	220 [?]	12 [?]

TAB. 1.1: Tableau récapitulatif des valeurs des tensions de surface entre solide et liquide, des coefficients cinétiques et de leurs anisotropies respectives.

D'autres valeurs sont connues pour les métaux [?, ?, ?, ?], mais celles représentées ci-dessus suffisent pour remarquer que les anisotropies de tension de surface sont très faibles. Cependant, les remarques faites au paragraphe 1.3.2 sur les conséquences morphologiques d'une variation de la direction d'anisotropie montrent que l'anisotropie, bien que faible, joue un grand rôle, notamment à l'échelle mésoscopique des dendrites.

## 1.4 Conclusion

L'anisotropie est présente dans un grand nombre de systèmes de croissance, notamment en solidification cristalline où les propriétés physiques de l'interface entre le liquide et le solide sont modifiées en fonction de son orientation relative vis-à-vis des directions propres du réseau cristallin. En solidification directionnelle, cela conduit à des morphologies et des directions de croissance des cellules et dendrites qui varient selon l'orientation du cristal vis-à-vis de la direction du gradient thermique imposé. Pour autant, les variations quantitatives induites par anisotropie semblent négligeables dans le modèle de croissance d'interface. Ceci nous conduit à proposer ici une étude expérimentale détaillée visant à comprendre et caractériser la direction de croissance des cellules et dendrites lorsque les axes du cristal et la direction du gradient thermique forment un angle non nul. Les implications morphologiques dues à ces directions de croissance variables sont également considérées.

## Chapitre 2

# Dispositif expérimental

L'étude de la solidification directionnelle vise, outre un aspect purement fondamental, à comprendre comment se solidifient les alliages métalliques en présence d'un gradient de température. Or, l'étude de la solidification de métaux n'est pas chose aisée. Elle demande un appareillage lourd et sophistiqué pour deux raisons : la température de fusion des métaux est généralement très élevée (plusieurs centaines de kelvins) et ils sont opaques à la lumière. Il est alors difficile de suivre *in-situ* la dynamique de l'interface sans dispositifs encombrants et coûteux. Il a ainsi paru utile de trouver des matériaux de substitution aux métaux, permettant d'observer en temps réel des comportements similaires avec un dispositif expérimental plus léger.

Ce chapitre est principalement axé sur la description des matériaux modèles et du dispositif expérimental utilisés ici pour conduire l'étude. Il se compose de plusieurs parties dont la première détaille les matériaux utilisés pour nos expériences à savoir principalement le succinonitrile et secondairement l'acide pivalique et l'eau. La seconde partie décrit la méthode de fabrication des échantillons minces utilisés pour l'obtention d'une croissance bidimensionnelle. Les deux parties suivantes sont composées de la présentation du dispositif expérimental classique et de la méthode de sélection de l'orientation cristalline. Afin de mener les expériences sur les directions de croissance des structures, nous apportons, dans la cinquième partie, certaines modifications au système expérimental existant. Enfin, la dernière partie est consacrée à l'identification des variables du système et à leur méthode de mesure.

### 2.1 Les matériaux

Les cristaux plastiques comme le succinonitrile, l'acide pivalique ou le tétrabromure de carbone ont une température de fusion basse et sont transparents. Ceci en fait de bons candidats pour une observation *in situ* de l'interface de solidification.

Dans cette étude, nous avons utilisé très largement un alliage de succinonitrile, mais aussi quelquefois, des alliages d'acide pivalique ou d'eau. Nous présentons ci-dessous les caractéristiques physiques de chacun.

#### 2.1.1 Le succinonitrile

Le succinonitrile est un cristal plastique transparent de formule chimique  $NCCCH_2CH_2CN$  et dont la structure cristalline est cubique centrée. A pression ambiante, sa température de fusion de corps pur est  $T_0 = 58.1^\circ C$  [?]. Par ailleurs, sa cinétique d'attachement est suffisamment rapide pour conduire, aux températures ambiantes, à une interface rugueuse. Il présente ainsi les caractéristiques essentielles pour simuler la croissance des métaux tout en s'affranchissant des inconvénients liés aux températures élevées ou aux méthodes d'observations délicates.

Le succinonitrile est fourni par le fabricant Sigma Aldrich. Nous l'utilisons tel quel ce qui garantit un mélange identique d'expériences en expériences. Ce mélange contient majoritairement 0.4% d'éthylène et ne révèle par RMN ou SIR aucune liaison chimique relative à une autre impureté [?].

L'anisotropie de tension de surface du succinonitrile est très faible (0.5%) et sa tension de surface  $\gamma_0$  vaut  $8.9 \times 10^{-7} J.cm^{-2}$ . Le coefficient de diffusion solutale  $D$  de notre soluté, a été mesuré à la valeur [?] :

$$D = 1.35 \times 10^{-5} cm^2.s^{-1}$$

#### 2.1.2 L'acide pivalique

L'acide pivalique est également un cristal plastique transparent, de formule chimique  $(CH_3)_3CCO_2H$ . Il se solidifie en un réseau cubique face centrée. A pression ambiante, sa température de fusion de corps pur est  $T_0 = 35^\circ C$ . Il présente par ailleurs une cinétique d'attachement plus lente que le succinonitrile et qui conduit, à haute vitesse de croissance, à des dendrites facettées [?, ?]. L'anisotropie de tension de surface est mal connue. Dans la littérature, sa valeur s'étend entre 0.6% [?] et 5% [?]. Elle est tout de même différente de celle du succinonitrile tandis que sa tension de surface est trois fois plus faible,  $\gamma_0 = 2.8 \times 10^{-7} J.cm^{-2}$ .

L'acide pivalique est fourni par Sigma Aldrich à une pureté annoncée de 99.9%. Il est souvent utilisé dans la littérature avec comme soluté l'éthanol, pour lequel de nombreuses valeurs du mélange sont tabulées [?, ?, ?, ?]. Ici, nous avons réalisé le mélange avec 0.5% d'éthanol en volume. La température de fusion obtenue est  $30^\circ C$ . Le coefficient de diffusion a été mesuré par P. Bouissou [?] :

$$D = 2.5 \times 10^{-6} cm^2.s^{-1} \pm 0.5 \times 10^{-6} cm^2.s^{-1}$$

### 2.1.3 L'eau

La croissance des deux matériaux précédents présente peu d'intérêt propre hormis pour les études modèles de laboratoire. En revanche, le troisième corps utilisé, l'eau, s'avère omniprésent dans la vie courante.

Les propriétés de l'eau diffèrent largement de celles des deux autres matériaux. En particulier, l'eau se solidifie en un réseau hexagonal qui conduit à des germes de solidification à six branches au lieu de quatre pour un réseau cubique. Par ailleurs, sa direction de croissance  $[0\ 0\ 0\ 1]$  est fortement pilotée par la cinétique alors que dans le plan  $(0\ 0\ 0\ 1)$ , la diffusion domine.

Nous utilisons comme soluté un sucre, le glucose, les grandeurs caractéristiques des mélanges eau-glucose étant bien répertoriées dans la littérature [?, ?].

D'un point de vue pratique, le point de fusion de l'eau pure,  $0^\circ C$ , impose un système de refroidissement spécifique qui sera exposé au paragraphe 2.3.1.

Nous diluons le glucose dans de l'eau distillée à une concentration de 0.5% en masse. La tension de surface est alors  $\gamma_0 = 2.8 \times 10^{-6} J.cm^{-2}$  [?] et la température de fusion,  $-2^\circ C$ . D'après les données de M. F. Butler, le coefficient de diffusion solutale vaut [?] :

$$D = 6.9 \times 10^{-6} cm^2.s^{-1}$$

## 2.2 Les échantillons

Nous décrivons ici la fabrication des échantillons à l'intérieur desquels les différents matériaux sont confinés. Il existe trois catégories d'échantillons : les échantillons dits "classiques" utilisés pour la majorité des expériences, les échantillons spéciaux dont l'utilisation vise à perturber le front localement et les échantillons de mesure du gradient de température.

### 2.2.1 Les échantillons classiques

Les échantillons doivent être résistants, transparents et étanches. Cette dernière propriété est notamment nécessaire pour des raisons de sécurité liées à la nature toxique du succinonitrile. Il faut aussi qu'ils soient très bons conducteurs thermiques et qu'ils soient peu encombrants. Par ailleurs, nous souhaitons nous affranchir des effets de convection en phase liquide qui occasionneraient des variations de concentration à l'avant de l'interface et perturberaient la solidification [?, ?, ?, ?, ?]. Pour cela, nous fabriquons des échantillons suffisamment minces pour inhiber les courants convectifs. Ces échantillons, mimant une croissance bi-dimensionnelle sans convection, se rapprochent ainsi des expériences de solidification en micro-gravité encouragées par le CNES.

Ainsi, nous utilisons deux plaques de verre de dimension ( $200 \times 50 \times 0.8 \text{ mm}^3$ ) et ( $150 \times 45 \times 0.5 \text{ mm}^3$ ) entre lesquelles le matériau est emprisonné. Nous contrôlons l'état des arêtes qui peuvent être source de fractures une fois l'échantillon sollicité en température. Pour parer à cela, nous les ponçons avec du papier de verre afin de diminuer la taille des aspérités. Après nettoyage, nous espaçons les deux plaques de verre sur leurs longueurs par des cales de Mylar d'épaisseur contrôlée (de  $50 \mu\text{m}$  à  $100 \mu\text{m}$ ). Nous disposons également deux petites cales aux extrémités afin de réduire la flexion des plaques (Fig. ??). Après avoir serré l'ensemble du disposi-

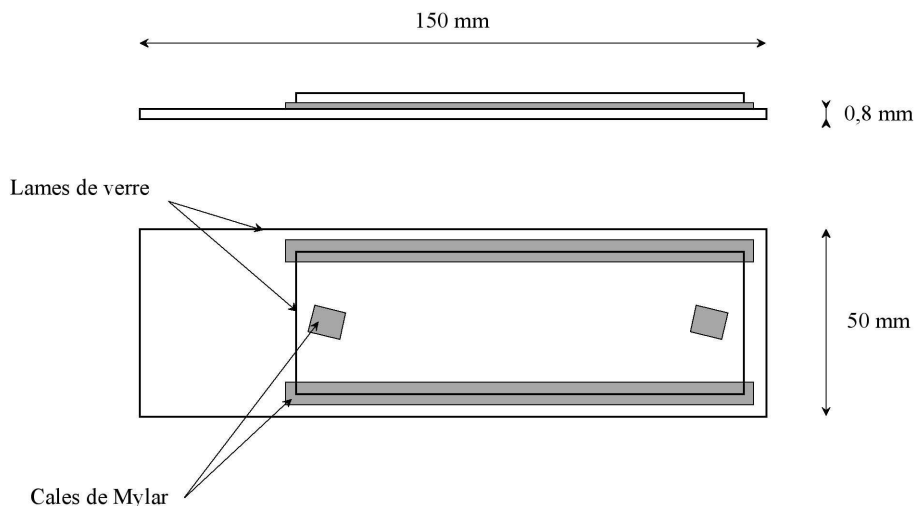


FIG. 2.1: Schéma d'un échantillon. Les deux plaques de verre sont espacées de  $50 \mu\text{m}$  à  $100 \mu\text{m}$  par des cales de Mylar. Les deux longueurs sont ensuite scellées par de la colle Araldite. Une fois l'échantillon rempli par capillarité du matériau liquide, il est clos hermétiquement sur ses largeurs.

tif, nous collons les deux longueurs de l'échantillon avec de l'Araldite résistant à hautes températures. Les deux largeurs ne sont pas collées afin de pouvoir insérer le matériau sous forme liquide.

Une fois l'ensemble sec, 24h plus tard, nous remplissons par capillarité l'espace libre entre les plaques de verre avec le matériau liquide, à  $65^{\circ}C$  pour le succinonitrile, à  $45^{\circ}C$  pour l'acide pivalique et à température ambiante pour l'eau. Pour les deux premiers matériaux, le remplissage s'effectue à l'aide d'un dispositif chauffant spécifique. Une fois la totalité du volume entre les plaques de verre remplis, les échantillons de succinonitrile et d'acide pivalique sont ramenés à la température ambiante où ils se solidifient. L'excès de produit laissé lors du remplissage sur les largeurs des plaques de verre est alors enlevé. Une fois l'échantillon propre, les deux largeurs sont alors scellées à l'Araldite. Pour l'eau, le protocole est différent, car il serait difficile de coller les deux largeurs alors que l'eau est encore liquide. Il serait tout aussi compliqué de coller l'échantillon refroidi en dessous de  $0^{\circ}C$  car le temps de séchage serait alors fortement augmenté. Nous choisissons donc de laisser les deux largeurs à l'air libre pour les échantillons d'eau sucrée.

### 2.2.2 Les échantillons spéciaux

Outre les échantillons classiques, d'autres échantillons plus originaux ont été confectionnés dans le but de permettre l'excitation locale du front par perturbations thermiques. Pour cela, un fil électrique est inséré sur toute la longueur de l'échantillon afin d'exciter le front par effet Joule.

Les fils utilisés ont un diamètre de 15 à  $25\mu m$ . Chaque fil est soudé à ses extrémités à un fil électrique plus gros de manière à faciliter les raccords électriques extérieurs. Lors de la mise en place des cales de Mylar de  $50\mu m$ , ce fil est tendu entre les deux plaques de verre de manière à être le plus rectiligne possible. Il est alors collé au niveau des deux points de soudure sur les plaques de verre en prenant garde à ce que la hauteur formée de la soudure et de la colle ne dépasse pas la hauteur de la lame supérieure de verre. Il est ensuite rempli de manière classique puis scellé (Fig. ??).

### 2.2.3 L'échantillon de mesure

Deux thermocouples ont été insérés dans un échantillon afin de mesurer la distribution de température et accéder à la valeur du gradient de température  $G$ . Deux thermocouples de type K avec une tête de diamètre  $25\mu m$  sont ainsi placés dans l'échantillon tandis que leurs quatre fils sortant sont fixés par collage. Les thermocouples sont positionnés de manière à ce que l'échantillon, tel quel puis retourné, permette de mesurer la température en trois points du dispositif (Fig. ??).



## 2. Dispositif expérimental

---

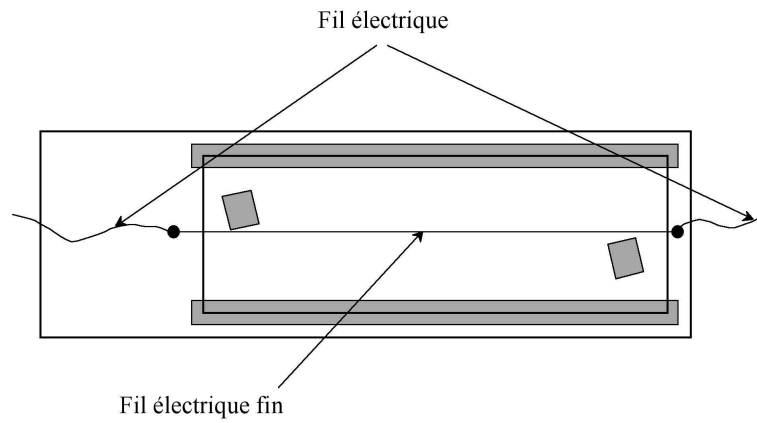


FIG. 2.2: Echantillon spécial. Il s'agit d'un échantillon à l'intérieur duquel un fil métallique est inséré par collage sur le verre. Le fil permet d'exciter le front localement en envoyant des signaux de tension, à courant fixé.

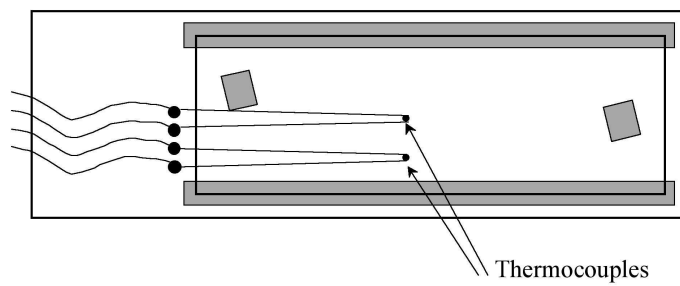


FIG. 2.3: Echantillon de mesure. Il s'agit d'un échantillon contenant deux thermocouples permettant la mesure de la température dans l'échantillon puis du gradient thermique  $G$ .

## 2.3 Le dispositif expérimental classique

L'observation *in situ* de l'interface de solidification nécessite un dispositif expérimental capable de générer un gradient de température et de déplacer l'échantillon tout en visualisant l'interface. Le dispositif original de croissance directionnelle a été introduit par K.A. Jackson, J. D. Hunt et H. Brown [?]. Au début de la thèse, un tel dispositif existait, mis au point par A. Pocheau, J. Minelli et M. Georgelin [?] qu'il a fallu cependant adapter aux besoins de nos expériences sur les directions de croissance. Nous présenterons les modifications apportées au système au paragraphe 2.5.

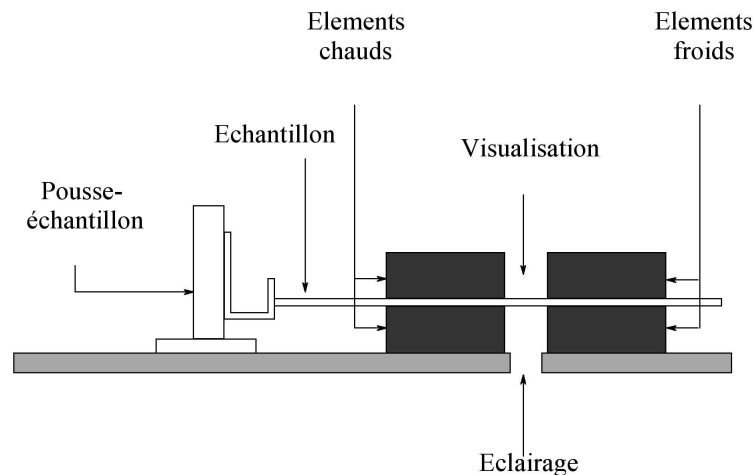


FIG. 2.4: Schéma du dispositif expérimental. Le pousse-échantillon est mis en mouvement par une vis sans fin qui est mue par un moteur à micro-pas.

Le principe du dispositif expérimental peut se résumer assez simplement : pousser à vitesse contrôlée un échantillon dans un gradient thermique maîtrisé autorisant la visualisation. Ceci conduit au dispositif expérimental dont le schéma de base est reporté en figure ?? . Sa description détaillée est rapportée dans l'article [?] et dans la thèse de M. Georgelin [?]. Nous le décrivons ci-dessous avec les autres moyens techniques utilisés.

### 2.3.1 Le système thermique

Le système doit produire un champ thermique de gradient constant dans l'échantillon et incluant le point de fusion du matériau. Pour cela, l'échantillon est mis en contact avec des éléments froids d'un côté, et chauds de l'autre, distants d'un gap  $d$  (Fig. ??).

La partie chaude est obtenue grâce à des feuilles de résistance électrique emprisonnées dans des blocs de cuivre. Le contact thermique entre le métal et les feuilles de résistance est assuré par de la graisse haute température. Les résistances sont contrôlées et alimentées par des régulateurs Eurotherm. Ainsi, un thermocouple logé dans les blocs fournit la température de chauffage au système de régulation qui, *via* un algorithme PID, maintient celle-ci constante et égale à la consigne.

## 2. Dispositif expérimental

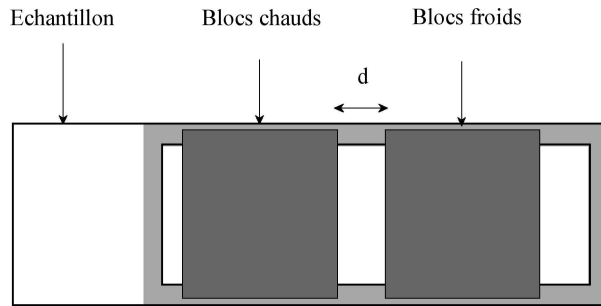


FIG. 2.5: Dispositif pour la création du gradient thermique. L'échantillon est inséré dans un système de blocs métalliques, chauds et froids, assurant un très bon contact thermique. Leurs températures sont contrôlées très précisément et les deux ensembles (chaud et froid) sont espacés d'une distance  $d$  ce qui permet une variation du gradient thermique  $G$ .

La partie froide est constituée de blocs métalliques en dural. A l'intérieur de ces blocs, de l'eau refroidie circule à l'aide d'une pompe réfrigérante extérieure dans le but d'évacuer la chaleur dégagée par les éléments Peltier logés dans ces blocs. Ceux-ci sont commandés par des régulateurs identiques à ceux employés pour le chauffage. Le système de régulation permet un contrôle des températures à  $0.1^{\circ}C$  près. Pour varier  $d$ , on insère différentes tailles de cales de Plexiglas entre les blocs chauds et froids.

Le système thermique est par ailleurs utilisé de manière adaptée à chaque matériau :

- Pour le succinonitrile, les températures sont fixées en général à  $100^{\circ}C$  et  $10^{\circ}C$ . Pour un gap  $d$  de 5 à 10mm, ceci conduit à des gradients variant de  $70K.cm^{-1}$  à  $140K.cm^{-1}$ .
- Pour l'acide pivalique, les gradients recherchés sont plus faibles de manière à conserver une vitesse de déstabilisation du front plan de l'ordre de quelques  $\mu m.s^{-1}$ . Les blocs sont à température de  $55^{\circ}C$  et  $10^{\circ}C$  et engendrent un gradient thermique  $G = 45K.cm^{-1}$ .
- Pour le mélange eau-glucose, la réalisation du gradient thermique est plus délicate car le mélange se solidifie aux alentours de  $-2^{\circ}C$ . Ceci requiert de refroidir les fours très en dessous de  $0^{\circ}C$ , chose impossible avec de l'eau dans le système de refroidissement. Cela conduit à utiliser l'alcool comme fluide frigorigène avec pour résultat un refroidissement de la partie froide à  $-8^{\circ}C$ . L'autre four est maintenu à  $9^{\circ}C$  ce qui donne  $G = 18K.cm^{-1}$ .

Les gradients de température sont mesurés en translatant l'échantillon équipé des deux thermocouples à vitesse contrôlée  $V$  (Fig. ??). Ceux-ci fournissent ainsi sur table traçante l'évolution de la température entre les blocs à cette vitesse ; on en déduit le gradient thermique de l'interface.

### 2.3.2 Le système de poussée de l'échantillon

L'échantillon doit être en translation à vitesse contrôlable dans le référentiel du laboratoire. Pour générer ce mouvement, nous utilisons un moteur pas-à-pas

excité par une tension en créneaux. Le moteur met en rotation un arbre sur lequel une vis sans fin est fixée. Enfin le mouvement de rotation de la vis est transformé en translation et pousse l'échantillon *via* le pousse-échantillon.

Dans un premier temps, le moteur à micro-pas est piloté par un Apple IIe qui possède une horloge interne et délivre les créneaux de commande. Le moteur possède 6400 pas par tour et les chocs de chaque fin de pas sont amortis par courant de Foucault. Le pilotage ainsi que le moteur sont suffisamment précis pour assurer un mouvement quasi-continu.

Le mouvement de rotation de l'arbre entraîne une vis à bille NSK de grande précision et de pas  $5\text{mm}$ . Celle-ci est muni d'un écrou à recirculation de billes relié à un module mobile sur un rail aligné avec l'axe de la vis. L'ensemble permet ainsi de transformer le mouvement de rotation en translation. Celui-ci est transmis au pousse-échantillon par une tige rigide.

La difficulté majeure de la partie mécanique consiste en l'obtention d'une grande régularité de translation nécessaire à la réalisation de vitesses de quelques  $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  précises à quelques pourcents sur de longues durées.

En trois années de thèse, il a été nécessaire de remplacer certaines pièces, vérifier la totalité du système mécanique et rechercher très précisément la configuration qui minimisait les modulations de vitesse. Leurs mesures se font à l'aide d'un dispositif qui renseigne sur la position du pousse-échantillon au cours du temps. Le dispositif utilisé est un interféromètre de Michelson laser. Le corps du Michelson est solidaire du carter du dispositif. Le miroir mobile est fixé sur le pousse-échantillon. Nous avons donc accès à la position de l'échantillon *via* un interfacement sur l'Apple IIe à une précision suffisante. Une fois le réglage complet du système de vitesse réalisé, la vitesse est contrôlée à 3% près sur des durées arbitraires. Les vitesses que nous utilisons lors de nos expériences, tous matériaux confondus, s'échelonnent de 1 à  $50\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### 2.3.3 Le système optique

Une des difficultés expérimentales importantes en solidification directionnelle consiste en l'obtention d'images de l'interface de bonne qualité. Une fois l'échantillon plongé dans le gradient de température, le front est localisé entre les blocs de température. Ceci requiert notamment un dispositif d'éclairage et d'observation de bonne qualité optique, mais non perturbant.

Une source de lumière blanche envoie un faisceau lumineux incident perpendiculaire sur l'interface. Celle-ci réfracte et diffracte la lumière et forme une image sur un dispositif de microscope éclaté. Celui-ci possède une grande frontale permettant une visualisation délocalisée donc non perturbative du front. Un objectif de  $50\text{mm}$  d'appareil photo et un capteur CCD de caméra vidéo composent ce dispositif. Le dispositif optique a nécessité de longs réglages d'alignements des différents composants afin d'obtenir une image du front nette, uniformément éclairée et non déformée.

Deux caméras différentes ont été utilisées afin de recueillir les images des fronts : une analogique et une numérique. Les images issues de la caméra analogique sont enregistrées sur un magnétoscope ou un graveur de DVD puis envoyées

## 2. Dispositif expérimental

---

simultanément ou en différé sur un ordinateur Mac G3. La camera numérique permet l'acquisition d'images *via* un ordinateur Mac G5 et le logiciel BTV pro. Chaque film est ensuite traité sous le logiciel NIH image version 1.63.

## 2.4 Sélection de l'orientation cristalline

Afin de pouvoir étudier l'inclinaison des structures de solidification, il faut déterminer précisément l'orientation cristalline du matériau. Pour cela, nous caractérisons l'orientation du cristal au sein de l'échantillon, puis nous présentons la méthode permettant de sélectionner un monograin.

### 2.4.1 L'orientation cristalline

Les trois matériaux étudiés forment des cristaux en phase solide de maille cubique pour les deux matériaux plastiques et de maille hexagonale pour l'eau. Ceci conduit à une structure solide anisotrope et donc à des directions spécifiques de croissance. En particulier, pour le succinonitrile, la structure cristalline est définie par un trièdre pointant les directions principales de la maille cubique élémentaire. L'axe  $[1\ 0\ 0]$  de ce trièdre correspond alors vraisemblablement [?] à une direction principale de croissance du matériau.

Nous souhaitons réaliser une étude systématique des effets de l'orientation de la direction principale de croissance par rapport à celle de  $G$ . Pour cela, nous choisissons de tourner la direction de  $G$  plutôt que celle de l'axe  $[1\ 0\ 0]$  [?].

Lorsqu'on solidifie un matériau sans précautions particulières, on observe une multitude de grains d'orientations cristallines différentes le long du front. Cependant, un échantillon mono-grain est préféré à un multi-grains qui occasionnerait de nombreux changements d'orientation.

### 2.4.2 Dégazage de l'échantillon

Une fois l'échantillon rempli par le matériau, ce dernier va dégazer et générer une grande quantité de bulles très gênantes pour la solidification et la visualisation du front. Puisqu'il n'est pas possible de les chasser hors de l'échantillon désormais scellé, il faut donc les confiner dans un coin de celui-ci, hors du champ d'étude. Pour cela, nous disposons de deux méthodes. La première consiste à taper très légèrement sur l'échantillon chauffé au-dessus du point de fusion du matériau, afin de créer des mouvements hydrodynamiques entraînant les bulles. La seconde méthode utilise la migration des bulles dans un gradient thermique vers le côté chaud. Ces deux méthodes permettent d'accumuler les bulles loin de la zone utile de l'échantillon. Toujours est-il que le dégazage d'un échantillon est long. Il faut en effet recommencer l'opération pendant plusieurs jours avec des phases de repos assez longues pour permettre à l'échantillon de dégazer suffisamment.

### 2.4.3 Méthode de sélection d'un grain et de son orientation

Une fois l'échantillon dégazé, on s'attache à sélectionner un grain d'une certaine orientation en prévision d'expériences ciblées. Le protocole de sélection de l'orientation d'un mono-grain est expliqué ci-dessous pour les deux cristaux cubiques puis pour l'eau.

#### Sélection d'un grain

La première étape de la sélection du grain s'opère à l'extérieur du dispositif de solidification. On place l'échantillon sur une plaque chauffante à une température

## 2. Dispositif expérimental

supérieure au point de fusion du matériau puis on le solidifie à température ambiante hors du contact avec la plaque. On est alors en condition de croissance libre au centre de l'échantillon où des germes apparaissent sous forme étoilée, chaque branche pointant *a priori* une direction préférentielle cristalline [?]. On répète cependant l'opération jusqu'à l'obtention d'une étoile à quatre branches régulières dont une pointant dans la direction voulue. Nous réchauffons alors l'échantillon solidifié par contact progressif avec la plaque pour fondre le matériau jusqu'au germe sélectionné que l'on fait croître de nouveau. Celui-ci s'agrandit ainsi par étapes successives jusqu'à envahir l'ensemble de l'échantillon. Nous obtenons alors un monocristal d'orientation voisine de celle désirée. Ses directions de croissance sont mesurées à une précision de  $2^\circ$ .

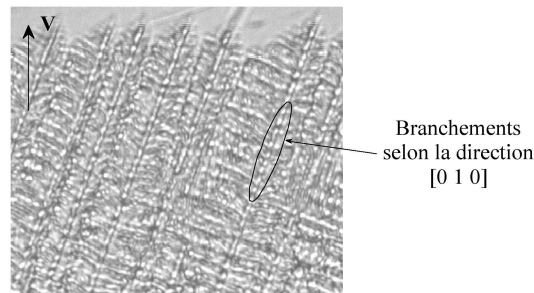


FIG. 2.6: Dendrites croissant à grande vitesse. Elles présentent en particulier des branchements dans la direction de l'axe  $[0\ 1\ 0]$  hors du plan de l'échantillon. Pour déterminer l'orientation du grain, on mesure d'abord les angles de plusieurs dendrites afin de s'assurer de l'absence de joints de grains puis on moyenne les angles obtenus afin de déterminer l'orientation définitive. Ici l'orientation des dendrites mesurée par rapport à  $\mathbf{V}$  est  $20.3^\circ$  à  $0.2^\circ$  près.

### Mesure de l'orientation

Une meilleure précision sur l'orientation et sur la direction des autres axes principaux est cependant nécessaire. Pour cela, nous plaçons l'échantillon dans le dispositif expérimental et nous réalisons une solidification rapide en refroidissant de manière externe l'échantillon par soufflage. Le front se déstabilise alors rapidement en dendrites de grandes vitesse de croissance (environ  $500\mu m.s^{-1}$ ). On se retrouve alors à nouveau en croissance quasi-libre. L'observation des branchements hors du plan de l'échantillon permet de vérifier si l'orientation de l'axe  $[0\ 1\ 0]$  est bien perpendiculaire au plan de l'échantillon (Fig. ??). On valide alors le grain ; à défaut, on l'annihile. On conçoit ainsi que l'obtention d'un grain est une opération longue et délicate et qu'il est compliqué d'obtenir une orientation voulue à l'avance. La mesure de l'orientation obtenue par cette méthode est précise à  $0.2^\circ$ .

### Sélection de l'orientation pour l'eau

Le protocole décrit ci-dessus est valable pour le succinonitrile et pour l'acide pivalique, mais n'est pas applicable à l'eau car il est difficile techniquement

de conserver des échantillons à l'état solide dans une pièce à température ambiante. Pour ce matériau, nous ne sélectionnons donc pas de grain avant une expérience. Le grain d'étude est alors choisi *in situ* parmi les nombreux grains générés au hasard. Cependant, comme il n'est pas possible ici de refroidir brutalement l'échantillon pour obtenir une croissance rapide, l'orientation du grain n'est connue qu'à environ  $2^\circ$  près. Son suivi est très difficile et il est compliqué de réaliser des expériences longues étant donnée l'évolution des joints de grain. Sa dynamique propre est enfin perturbée par celle des autres grains de sorte que ses évolutions sont observées sur des périodes plus courtes que pour les autres matériaux.



## 2.5 Dispositif expérimental adapté

Le système de solidification directionnelle que nous venons de présenter est dédié à l'étude des structures de croissance pour des orientations de grain données. Son utilisation à l'étude des directions de croissance pour des orientations diverses nécessite d'y apporter des modifications décrites ci-dessous. Celles-ci consistent à varier de manière contrôlée la direction du gradient thermique ou de l'axe de l'échantillon.

### 2.5.1 Modification du champ thermique

Modifier l'orientation du gradient thermique commande de tourner la direction des fours. Or, ceux-ci sont usinés et encastrés précisément dans le bâti de l'expérience afin de définir des surfaces parallèles et coplanaires entre fours chaud et froid et entre surfaces supérieure et inférieure. Dans le cadre du montage actuel, il n'est donc pas possible de les tourner. Plutôt que d'en rebâtir de nouveaux pour chaque nouvelle direction choisie, il est apparu plus versatile de leur affecter des extensions prolongeant par conductivité les fours jusqu'à une nouvelle géométrie adaptée. Les éléments thermiques existants ont une base carrée. Des plaques en cuivre sont alors fabriquées à l'atelier pour s'adapter exactement sur ces surfaces mais en présentant une excroissance triangulaire correspondant à la nouvelle orientation souhaitée (Fig. ??). Ces plaques, facilement interchangeables, sont au nombre de quatre pour chaque orientation. Sept jeux de plaques ont été utilisés pour obtenir des angles de  $5^\circ$ ,  $10^\circ$ ,  $20^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $60^\circ$  et  $85^\circ$ .

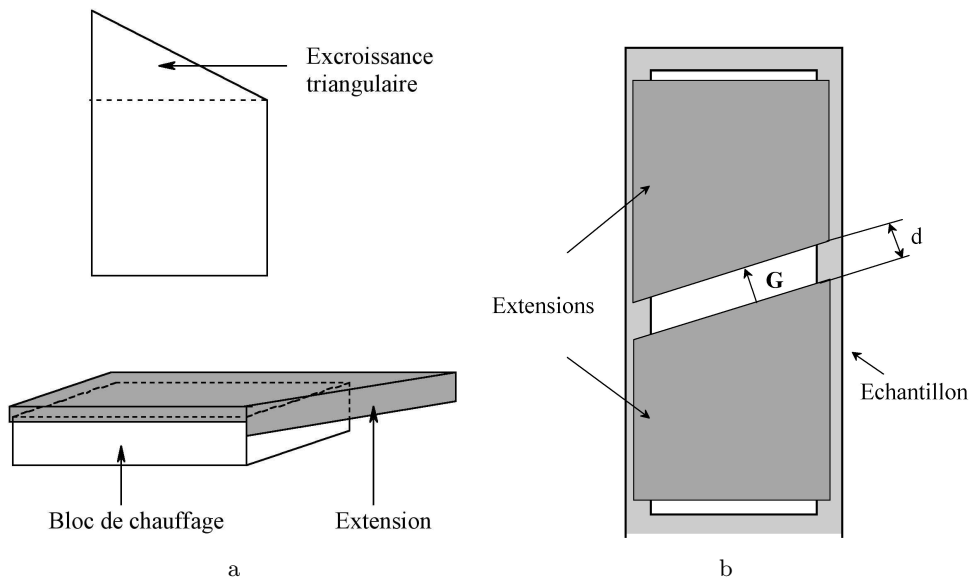


FIG. 2.7: Modification du dispositif thermique. (a) Détail d'une extension adaptable sur un four chaud permettant d'orienter  $\mathbf{G}$ . (b) Adaptation des extensions en cuivre dans le dispositif. Le contact thermique entre les plaques et les blocs métalliques se fait avec de la graisse thermique. Les fours sont toujours espacés de la distance  $d$ .

Par ailleurs, trois autres jeux, dont la forme sera donnée au chapitre 6, ont été usinés pour permettre les expériences en front courbé et à gradient thermique non constant spatialement. Au total, quarante pièces ont été fabriquées à l'atelier avec un état de surface particulièrement soigné afin d'assurer un très bon contact thermique entre les fours et leurs extensions. Par ailleurs, pour optimiser la diffusion de la chaleur, de la graisse thermique haute température est déposée au contact entre les blocs et les plaques. Des pièces en Plexiglas sont usinées en conséquence pour imposer entre les nouvelles frontières des fours les valeurs de l'espacement  $d$  utilisées en front horizontal et obtenir ainsi les gradients souhaités (Fig. ??).

Le seul inconvénient occasionné par les plaques est l'épaisseur qu'elles ajoutent à chaque bloc métallique d'origine. Ceci n'est pas problématique pour les blocs métalliques supérieurs qui sont rigidement fixés sur le carter du dispositif. En revanche, les blocs inférieurs sont posés sur des ressorts afin de permettre une auto-adaptation aux différences d'épaisseur des échantillons et assurer en toute circonstance un bon contact thermique. Ce déplacement faible, de l'ordre de  $2\text{mm}$ , est réduit par l'utilisation des plaques. Les ressorts ont une rigidité suffisamment faible pour ne pas trop contraindre les échantillons au risque de les voir rompre. Or, lorsque nous ajoutons les plaques de cuivre, ce degré de liberté se réduit : il y a alors moins d'auto-adaptation et on provoque certaines casses d'échantillons.

### 2.5.2 Modification du grain

Les plaques d'extension des fours ont pour fonction de modifier l'orientation du gradient par de grands angles. Il est cependant possible de modifier également de manière fine l'orientation du grain en tournant l'axe de l'échantillon par rapport à l'axe de translation du dispositif. Pour cela, nous avons conçu des intercalaires en dural qui se fixent entre le pousse-échantillon et l'échantillon (Fig. ??b).

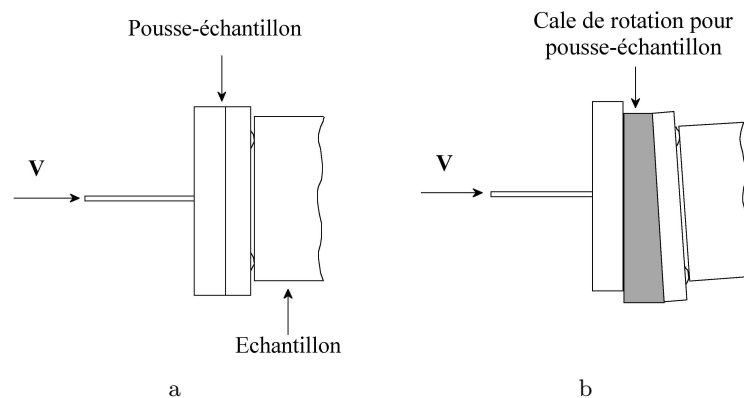


FIG. 2.8: Modifications apportées sur le pousse échantillon. (a) Vue de dessus du pousse-échantillon. (b) Schéma de la cale de rotation offrant un réglage fin de l'axe de l'échantillon. Trois cales ont été confectionnées pour permettre une variation de  $1.1^\circ$ ,  $2.2^\circ$ ,  $3^\circ$  ou toutes combinaisons jusqu'à  $4.5^\circ$ .

## 2. Dispositif expérimental

---

Nous utilisons ainsi un jeu de trois pièces permettant une rotation de  $1.1^\circ$ ,  $2.2^\circ$  et  $3^\circ$  à combiner à loisir. La seule contrainte à respecter est de ne pas dépasser  $4.5^\circ$ , angle limite imposé par construction pour éviter que l'échantillon ne heurte les bords du carter.

Au total, nous avons ainsi deux possibilités de réglage de l'axe  $[1\ 0\ 0]$  : par sélection du grain et par réglage de l'axe de l'échantillon. Ceci, combiné à l'orientation des fours, permet de réaliser aisément une orientation quelconque.

## 2.6 Variables

L'objectif de la thèse consiste à déterminer les directions de croissance des structures de solidification en fonction des différents paramètres du système. Nous rappelons d'abord ceux-ci ci-dessous avant de donner une définition précise de la direction de croissance des structures.

### 2.6.1 Paramètres du problème

Le système de croissance est régi par de nombreux paramètres tels que  $c_0$  la concentration initiale en soluté,  $\mathbf{V}$  la vitesse de poussée de l'échantillon,  $\mathbf{G}$  le gradient de température et  $\Lambda$  la taille des structures. Or, en variant l'orientation du grain vis-à-vis de  $\mathbf{G}$ , nous ajoutons des paramètres d'orientation. Etant donné que nous utilisons un mélange identique de succinonitrile dans les expériences,  $c_0$  est fixé (cf. paragraphe 2.1.1). En nommant  $\mathbf{a}$  la direction principale de l'anisotropie, nous obtenons les paramètres d'étude suivants :

- Le gradient de température  $\mathbf{G}$ .

La direction et le module de  $\mathbf{G}$  sont fixés par l'orientation des fours et leur espacement.

- L'ouverture  $\Theta_0$ .

L'angle d'ouverture  $\Theta_0$  correspond à l'angle formé par les directions de  $\mathbf{a}$  et de  $\mathbf{G}$  :  $\Theta_0 = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$  avec  $\mathbf{n}_G = \mathbf{G}/G$  et  $\mathbf{n}_a = \mathbf{a}/a$ .

- La vitesse normale  $V_G$ .

Le front moyen reliant les pointes de dendrites est en pratique proche d'une isotherme. Il est ainsi normal à  $\mathbf{G}$  et forme donc, pour un champ thermique tourné par rapport à la configuration usuelle, un angle avec la direction de poussée  $\mathbf{V}$  de l'échantillon vis-à-vis du carter (Fig. ??).  $\mathbf{V}$  se décompose en une vitesse normale au front  $\mathbf{V}_G$  et une vitesse tangentielle  $\mathbf{V}_t$ . Cette dernière est sans effet sur la croissance de l'interface car elle implique seulement un glissement des isothermes sur elles-mêmes, alors que  $\mathbf{V}_G$  les translate selon  $\mathbf{G}$ . Ainsi, la seule composante pertinente physiquement est la vitesse normale  $\mathbf{V}_G$ .

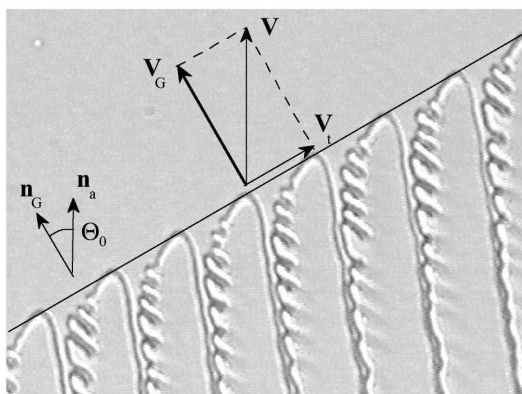


FIG. 2.9: Décomposition de la vitesse de poussée  $\mathbf{V}$  :  $\mathbf{V} = V_G \cdot \mathbf{n}_G + V_t \cdot \mathbf{n}_t$ . Seule la vitesse  $V_G$  joue un rôle physique sur le front. Ici  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  et  $V = 30 \mu m \cdot s^{-1}$ .

## 2. Dispositif expérimental

- La taille des structures  $\Lambda$ .

La taille des structures de solidification est connue pour paramétrer, à  $\Theta_0 = 0^\circ$ , les formes des cellules ou des dendrites et leur instabilités de branchement [?]. Elle constitue donc vraisemblablement une grandeur clé du problème. Cette taille varie le plus souvent le long du front en fonction de l'historique du front de croissance. Cependant, dans la suite de notre étude, sauf au chapitre 6, nous travaillerons en conditions homogènes spatialement, *i. e.* où toutes les dendrites voisines ont la même taille. On notera ici  $\Lambda$  la distance entre deux pointes mesurées le long du front (Fig. ??a). Nous verrons cependant au chapitre suivant, que d'autres définitions pertinentes de la distance intercellulaire peuvent être proposées.

### 2.6.2 La direction de croissance $\Theta$ des structures

Lorsque nous plaçons un échantillon dans le dispositif expérimental modifié et que nous le poussons à vitesse  $V$ , nous observons la plupart du temps des structures dendritiques asymétriques présentant une certaine inclinaison. On note dans un premier temps  $\mathbf{V}_g$  la vitesse de croissance de ces structures définie comme le vecteur vitesse de leur pointes par rapport à la phase liquide au repos. La direction de croissance est alors définie par l'angle  $\Theta = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  avec  $\mathbf{n}_g = \mathbf{V}_g/V_g$ .

La problématique de la thèse revient ainsi à déterminer la fonction reliant la direction de croissance  $\Theta$  aux paramètres du systèmes :  $\Theta(\Theta_0, G, V_G, \Lambda)$ .

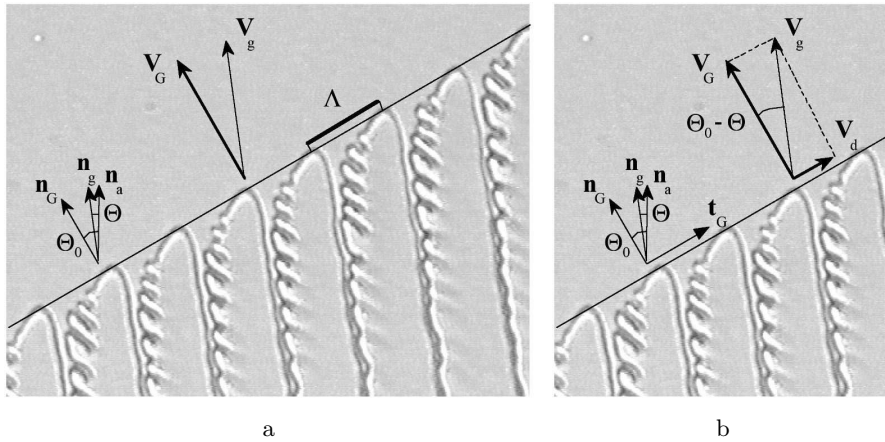


FIG. 2.10: Présentation des différents paramètres.  $\Theta_0$  est l'ouverture entre le gradient thermique  $\mathbf{G}$  et la direction privilégiée de croissance  $\mathbf{a}$ .  $\mathbf{V}_g$  est la vitesse de croissance des structures de taille  $\Lambda$  dont l'orientation par rapport à  $\mathbf{a}$  est donnée par l'angle  $\Theta$ . Ici  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  et  $V = 30\mu m.s^{-1}$

### 2.6.3 Vitesse de dérive

Les dendrites et leur direction de croissance étant inclinées par rapport à la direction de  $\mathbf{G}$ , elles dérivent le long du front à une vitesse  $V_d$ , fonction de leur angle  $\Theta = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  d'inclinaison avec la direction  $\mathbf{n}_a$  :  $V_d = V_g \mathbf{n}_g \cdot \mathbf{t}_G$ . Comme  $V_G = V_g \mathbf{n}_g \cdot \mathbf{n}_G$ , ceci s'écrit  $V_d = V_G (\mathbf{n}_g \cdot \mathbf{t}_G) / (\mathbf{n}_g \cdot \mathbf{n}_G) = V_G \tan(\Theta_0 - \Theta)$  (Fig. ??b).

## 2.7 Méthode de mesure

La majorité des paramètres du problème sont connus ou facilement mesurables. Après avoir choisi un mode de représentation des fronts, nous donnons les méthodes de mesure des paramètres et les précisions sur chacun d'eux. Enfin, nous détaillons la méthode de mesure de l'angle  $\Theta$ .

### 2.7.1 Représentation des fronts

Dans notre dispositif, l'ensemble des fronts que nous visualisons sont inclinés puisque la direction verticale des images brutes (bords du capteur de la caméra) correspond à l'axe de translation de l'échantillon. Or, cette direction n'est pas pertinente physiquement, à la différence de la direction  $\mathbf{n}_G$  du gradient thermique. Ceci nous conduit à faire pivoter dorenavant ces images de manière à ce que leur axe corresponde à la direction du gradient  $\mathbf{G}$ . De ce fait, le front moyen devient parallèle à l'axe horizontal des images. Ce faisant, nous perdons l'information sur la direction de  $\mathbf{V}$  et sur l'orientation absolue des fours, mais nous gagnons en lisibilité et en homogénéité de présentation (Fig. ??).

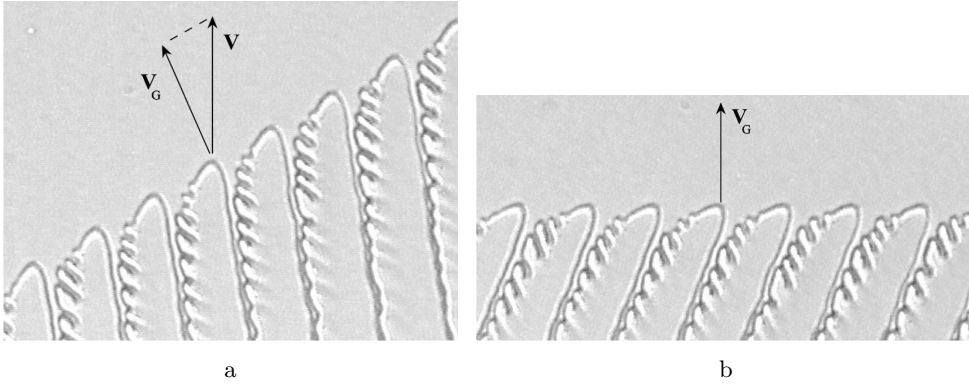


FIG. 2.11: Images de dendrites inclinées. (a) Image brute prise avec la caméra numérique. Les fours, donc le front, sont orientés de  $29.9^\circ$  par rapport à l'axe de translation. La vitesse pertinente pour la croissance est  $V_G = 17.3 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  alors que la vitesse de poussée vaut  $V = 20 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . (b) Image tournée de manière à ce que le front moyen, normal au gradient  $\mathbf{G}$ , soit horizontal.

### 2.7.2 Mesure des paramètres

Outre le gap entre les fours, l'intensité du gradient  $G$  est imposée par les régulateurs à une précision de  $0.1^\circ\text{C}$  près. Le gradient est mesuré par thermocouple à une précision de 4% dans l'échantillon décrit au paragraphe 2.2.3.

La vitesse  $\mathbf{V}$  est mesurée précisément par l'interféromètre de Michelson et est donnée constante au cours du temps à des modulations maximales de 3% [?]. Ainsi, sa composante sur  $\mathbf{G}$ ,  $V_G$  est connue à une précision similaire.

L'angle  $\Theta_0$  est fixé par l'orientation du grain (voir paragraphe 2.4.3) et du gradient thermique (voir paragraphe 2.5.1). La première est mesurée sous le logiciel NIH image avec une précision de l'ordre de  $0.1^\circ$ . La même précision s'applique à la mesure de l'orientation de  $\mathbf{G}$  d'après les images des fronts prises au coeur de l'échantillon sur une zone utile de 2cm, où le front est rectiligne. Au total, l'ouverture  $\Theta_0$  est déterminée à une précision de  $0.2^\circ$ .

La mesure de l'espacement intercellulaire  $\Lambda$  s'effectue par le logiciel NIH image à une précision dépendante de la résolution de l'image traitée. Celle-ci varie de manière effective de  $5\mu\text{m}$  à  $10\mu\text{m}$ .

### 2.7.3 Mesure de $\Theta$

En dépit du fait que les sillons des dendrites sont produits par croissance, leur direction diffère de la direction de croissance des dendrites. Cette différence résulte de la dynamique propre des sillons qui les fait évoluer par refonte, notamment lorsque des branchements voisins interagissent. Le flanc de la dendrite concernée n'est alors pas rectiligne (Fig. ??), et il devient imprécis de mesurer l'angle  $\Theta$  relatif à la direction de croissance par cette méthode, la différence entre l'angle ainsi mesuré et  $\Theta$  pouvant aller jusqu'à  $2^\circ$ .

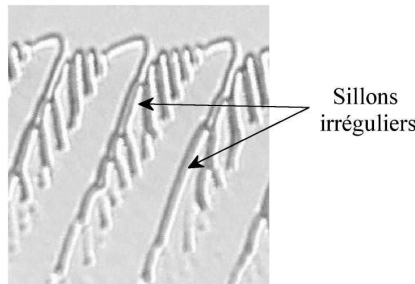


FIG. 2.12: Phénomène de refonte dans les sillons. Le sillon non branché de la dendrite est sujet aux rejets de soluté de la dendrite voisine. La concentration dans le sillon augmente alors et occasionne la fonte du sillon.

Pour mesurer précisément la direction de croissance des dendrites, nous effectuons une superposition du front à différents temps de manière à extraire la trajectoire de leur pointe dans le référentiel de la phase liquide (Fig. ??a,b). Le traitement est effectué avec le logiciel NIH image. On peut ainsi suivre l'évolution de chaque pointe au cours du temps. Le suivi de la trajectoire de chaque dendrite donne alors son angle  $\Theta$  par l'inclinaison de la droite joignant les pointes d'une même dendrite (Fig. ??b). La précision de la mesure est de  $0.1^\circ$ . Nous aurions également pu mesurer l'angle  $\Theta$  à partir de la vitesse de dérive calculée d'après la distance parcourue par une pointe de dendrite le long du front entre deux instants. Mais cette méthode ne permet pas, au contraire de la précédente, de s'assurer de l'homogénéité spatiale du réseau.



## 2. Dispositif expérimental

---

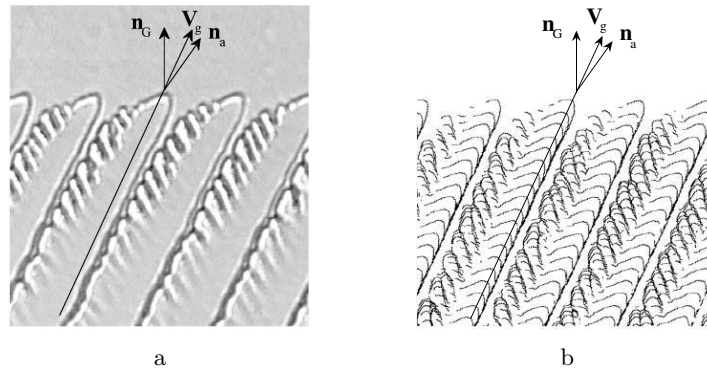


FIG. 2.13: Méthode de mesure de l'orientation des structures  $\Theta$ . (a) Image brute de dendrites inclinées. (b) Trajectoire des dendrites dans l'échantillon avec le logiciel NIH image.

## 2.8 Conclusion

L'objectif de notre travail est d'étudier de manière approfondie les directions de croissance des structures en fonction des paramètres du système de croissance. Cela nécessite une méthode rapide et précise de variation de l'ouverture  $\Theta_0 = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$  afin de pouvoir réaliser un nombre conséquent de mesures en un temps raisonnable. Pour cela, nous avons adapté le dispositif expérimental de croissance existant en rendant possible l'orientation de la direction du gradient de température d'une part et l'orientation de l'échantillon d'autre part.

L'ensemble permet ainsi de déterminer la direction de croissance  $\Theta$  et la morphologie des structures de croissance pour une panoplie d'angle  $\Theta_0$ , de vitesse  $V$ , de taille  $\Lambda$  et d'intensité du gradient thermique  $G$ . Ceci est mis en oeuvre dans le chapitre suivant afin de déterminer la fonction de réponse  $\Theta(\Theta_0, V, \Lambda, G)$  et les transitions morphologiques des structures.



## Chapitre 3

# Directions de croissance des structures

Le présent chapitre est dédié à l'étude de la réponse en orientation des structures de solidification dans l'ensemble de l'espace des paramètres du système. Dans un souci de pragmatisme, nous fixons ici les intensités de l'anisotropie et du gradient de température en étudiant un alliage de succinonitrile croissant dans un gradient de température  $G = 140K.cm^{-1}$ . Nous faisons par ailleurs varier la vitesse  $V_G$ , la taille  $\Lambda$  et l'angle d'ouverture  $\Theta_0$  afin de déterminer la loi de croissance  $\Theta(\Theta_0, V_G, \Lambda)$ .

Dans un premier temps, nous mènerons une campagne approfondie d'expériences permettant d'accumuler un grand nombre de données. Après l'observation de la variation de l'orientation des structures en fonction du nombre de Péclet  $Pe$ , un traitement original sera proposé sur la base des données de la position relative des directions de croissance vis-à-vis des deux directions  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{a}$  et sur l'étude de la séparabilité des variables correspondantes. Cette analyse conduira à une loi unique rendant compte de l'orientation  $\Theta$  en fonction du nombre de Péclet  $Pe$  et de l'angle d'ouverture  $\Theta_0$ .

## 3.1 Direction de croissance des dendrites

### 3.1.1 Historique

Tout expérimentateur en solidification s'est vu confronté aux problèmes qu'engendre l'anisotropie cristalline. Celle-ci est en effet manifeste depuis la "simple" sélection d'un grain au sein d'un échantillon jusqu'aux multiples directions des germes de croissance qu'elle engendre. Or, peu d'articles expérimentaux ou numériques sont consacrés aux études quantitatives de direction de croissance, cela étant sans doute relié aux difficultés expérimentales (contrôle de l'anisotropie), numériques ou théoriques (termes d'anisotropie très faibles). Nous décrivons ci-dessous leurs principaux résultats.

Les premières études quantitatives ont été menées par R. Trivedi *et al.* sur l'acide pivalique [?, ?]. Elles ont donné lieu à une douzaine de points de mesure sur quatre vitesses. Ces études s'inscrivent dans la continuité des travaux de R. F. Sekerka et S. R. Coriell [?] sur les effets de l'anisotropie cinétique et capillaire. Peu de temps après, A. G. Borisov effectue des expériences avec du succinonitrile dont il fait varier les directions de croissance [?]. Il ne passe cependant en revue que les formes d'interface rencontrées. Par ailleurs, P. Oswald et ses collaborateurs étudient succinctement l'effet de la vitesse sur l'orientation d'un monocristal d'acide pivalique dans le but de valider un appareillage dédié à la croissance de cristaux liquides. Ils omettent cependant de rapporter la taille des structures ce qui conduira à un ensemble de données incomplètes [?]. Enfin, en 1995, O. P. Fedorov décrit sommairement l'effet de l'orientation du grain sur un cristal de  $CBr_4$  [?]. Quelques années plus tard, T. Okada et Y. Saito mènent des calculs numériques sur l'effet de l'anisotropie capillaire sur l'orientation des dendrites en fonction de la vitesse de tirage et de la vitesse critique [?]. Ils se restreignent cependant à un angle d'ouverture de  $17^\circ$ .

Les travaux les plus aboutis furent ceux de S. Akamatsu et T. Ihle [?], en 1997. Deux expériences réalisées pour deux angles d'ouverture différents dans le mélange  $CBr_4 - C_2Cl_6$  sont comparées aux travaux numériques de T. Ihle. Il apparaît une dépendance en nombre de Péclet  $Pe$  et deux régimes : une réponse univoque de l'orientation des structures en fonction de  $Pe$  pour une ouverture  $\Theta_0 < 30^\circ$  ; des réponses évolutives au delà. Ces simulations ont également renseigné sur l'influence de l'intensité de l'anisotropie cinétique et capillaire sur l'orientation des structures.

Au même moment, K. Nagashima observe des comportements similaires pour l'orientation des dendrites d'eau [?] tandis que H. Emmerich *et al.* étudient numériquement l'inclinaison des dendrites dans les capillaires [?]. Plus récemment, G. He [?], M. Ode [?] et T. Guo [?] relatent sommairement le mécanisme d'inclinaison des structures. Enfin H. Esaka *et al.* comparent expérimentalement et numériquement l'orientation des structures pour des mélanges de succinonitrile et d'acide pivalique en fonction du rapport entre la vitesse de poussée et la vitesse critique mais en omettant de préciser les tailles des cellules et des dendrites [?, ?].

L'énumération des travaux précédant met en lumière le caractère incomplet des recherches, chaque étude étant soit qualitative, soit restreinte par l'angle d'ouverture, par les vitesses de tirage ou par les tailles des structures. De ce fait, les propriétés essentielles peinent à émerger, hormis la pertinence de la dépendance en nombre de Péclet et l'existence de deux régimes révélés par S. Akamatsu et T. Ihle [?]. Ceci appelle à des mesures systématiques afin d'aboutir à une étude expérimentale complète de la loi de comportement en orientation des structures.

### 3.1.2 Gammes de paramètres

Dans un souci d'exhaustivité, nous faisons varier l'ouverture  $\Theta_0$  sur toute la plage de valeur accessible, c'est-à-dire  $\Theta_0 \in [0; 45]$ , l'angle maximal étant  $45^\circ$  par raison de symétrie dans ce réseau cubique.

La vitesse de poussée  $V$  varie de  $5$  à  $50\mu m.s^{-1}$ , mais seule sa composante sur la direction du gradient,  $\mathbf{V}_G = (\mathbf{V} \cdot \mathbf{G})/G$ , est pertinente dans la suite. Celle-ci varie de  $4$  à  $50\mu m.s^{-1}$ . La vitesse critique étant  $V_c = 2.3\mu m.s^{-1}$  au gradient usuel de  $140K.cm^{-1}$ , les expériences se situeront donc à une distance notable du seuil.

Les tailles  $\Lambda$  des cellules ou des dendrites, dépendent fortement de l'historique du front et de l'angle d'ouverture. Leur gamme de variation en fonction des différents paramètres du problème fera l'objet d'une étude spécifique dans le chapitre 5. A chaque  $\Theta_0$ , nous ferons en sorte de l'étudier dans toute son étendue en pratique afin d'être le plus exhaustif possible.

$\Theta_0$	Orientation des fours	Orientation du grain
$5.7^\circ$	( $5^\circ$ ) $5^\circ$	$-0.7^\circ$
$10.9^\circ$	( $10^\circ$ ) $10.2^\circ$	$-0.7^\circ$
$15.9^\circ$	( $30^\circ$ ) $29.9^\circ$	$14^\circ$
$16.8^\circ$	( $10^\circ$ ) $9.8^\circ$	$26.6^\circ$
$18^\circ$	( $45^\circ$ ) $44.6^\circ$	$26.6^\circ$
$26.6^\circ$	( $0^\circ$ ) $0^\circ$	$26.6^\circ$
$30.6^\circ$	( $30^\circ$ ) $29.9^\circ$	$-0.7^\circ$
$33.5^\circ$	( $30^\circ$ ) $29.9^\circ$	$63.4^\circ$
$36.9^\circ$	( $10^\circ$ ) $10^\circ$	$46.9^\circ$
$37.8^\circ$	( $30^\circ$ ) $29.9^\circ$	$-7.9^\circ$
$39.8^\circ$	( $10^\circ$ ) $10.4^\circ$	$-29.4^\circ$
$40.6^\circ$	( $20^\circ$ ) $20^\circ$	$60.6^\circ$
$41.9^\circ$	( $5^\circ$ ) $5^\circ$	$46.9^\circ$
$43.1^\circ$	( $0^\circ$ ) $0^\circ$	$-43.1^\circ$

TAB. 3.1: Valeurs de  $\Theta_0$  à  $G = 140K.cm^{-1}$  combinant les orientations des fours et des grains. Dans la colonne du milieu, les angles entre parenthèses représentent l'orientation des fours initialement donnée par les plaques de cuivre et les autres, la valeur finalement mesurée. Dans la colonne de droite sont représentés les angles de l'orientation du grain mesurés par rapport à la direction de translation  $\mathbf{V}$ . Chaque valeur d'angle des deuxièmes et troisièmes colonnes est définie vis-à-vis de  $\mathbf{V}$ .

### 3. Directions de croissance des structures

Chaque grain sélectionné par la méthode décrite au paragraphe 2.4 est étudié à plusieurs orientations de fours (Tab. ??). Ceci permet ainsi, en variant les grains et les orientations de four, de décrire l'ensemble de la gamme voulue pour  $\Theta_0$ .

Pour chaque angle d'ouverture  $\Theta_0$  donné, la vitesse est variée par valeurs discrètes,  $5\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $10\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $20\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $30\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $50\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  avec après chaque saut un temps d'attente suffisant, supérieur à  $D/V_G^2$  pour qu'un état stationnaire soit atteint. Le chapitre 6 sera cependant consacré à l'évolution des fronts non stationnaires et des régimes transitoires.

Afin de s'assurer de la stationnarité des structures observées, nous choisissons toujours une région du front ou le réseau de structures est homogène en taille. Nous y appliquons alors la méthode de mesure de  $\Theta$  décrite au paragraphe 2.7.

#### 3.1.3 Observations qualitatives

A angle d'ouverture  $\Theta_0$  non nul, les structures de croissance présentent plusieurs différences notables avec celles obtenues en configuration classique à  $\Theta_0 = 0^\circ$ . Celles-ci se classent en trois catégories, relatives aux changements de forme, de taille et de structure.

#### Changement de forme

Les cellules et dendrites présentent une inclinaison par rapport à la direction de  $\mathbf{G}$  et une dissymétrie par rapport à leur direction de croissance. Tandis que cette dissymétrie est restreinte à la zone de la pointe en régime cellulaire (Fig. ??a), elle s'étend à l'ensemble de la forme pour des régimes dendritiques (Fig. ??b,c et ??b). Ainsi, à  $\Theta_0 < 15^\circ$ , les branchements dendritiques apparaissent plus développés sur le flanc en regard de  $\mathbf{G}$  ( $\mathbf{n}\cdot\mathbf{G} > 0$ ) que sur le flanc opposé ( $\mathbf{n}\cdot\mathbf{G} < 0$ ) (Fig. ??b).

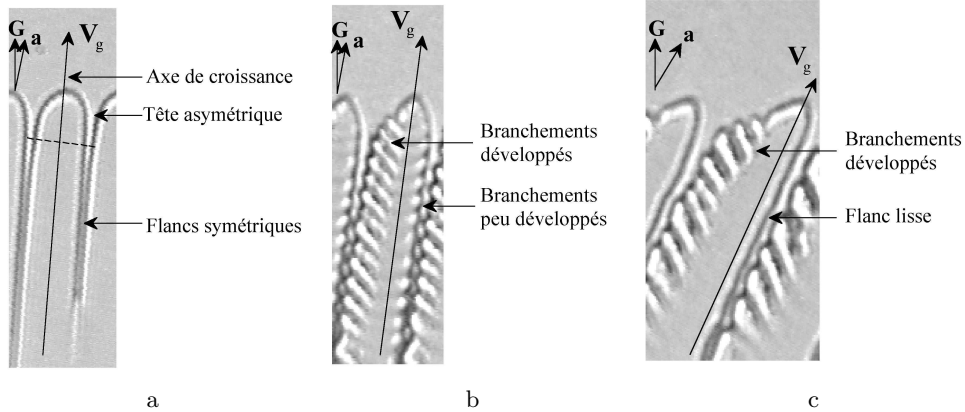


FIG. 3.1: Cellule inclinée asymétrique. (a)  $\Theta_0 = 10.9^\circ$ ,  $V_G = 9.8\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les sillons de la cellule sont symétriques par rapport à l'axe de croissance alors que la tête ne l'est pas. (b)  $\Theta_0 = 10.9^\circ$ ,  $V_G = 49.2\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les branchements sont plus développés sur le côté tourné vers  $\mathbf{G}$ . (c)  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ,  $V_G = 26\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Les branchements n'apparaissent que sur le flanc tourné vers  $\mathbf{G}$ .

Pour des ouvertures plus importantes, cette tendance s'exacerbe au point de ne laisser que des branchements très développés sur le flanc en regard de  $\mathbf{G}$  et une interface lisse sur le flanc opposé (Fig. ??c). A toute ouverture enfin, la dissymétrie de la pointe dendritique est notable.

### Changement de taille

La dissymétrie de forme, et notamment la présence de branchements développés sur un flanc incliné, contribue pour  $\Theta_0 > 30^\circ$  à une augmentation spectaculaire de la distance de pointe à pointe des dendrites (Fig. ??c). Ceci correspond à une augmentation effective de taille des structures de croissance, bien supérieure à celle observée sur des dendrites symétriques.

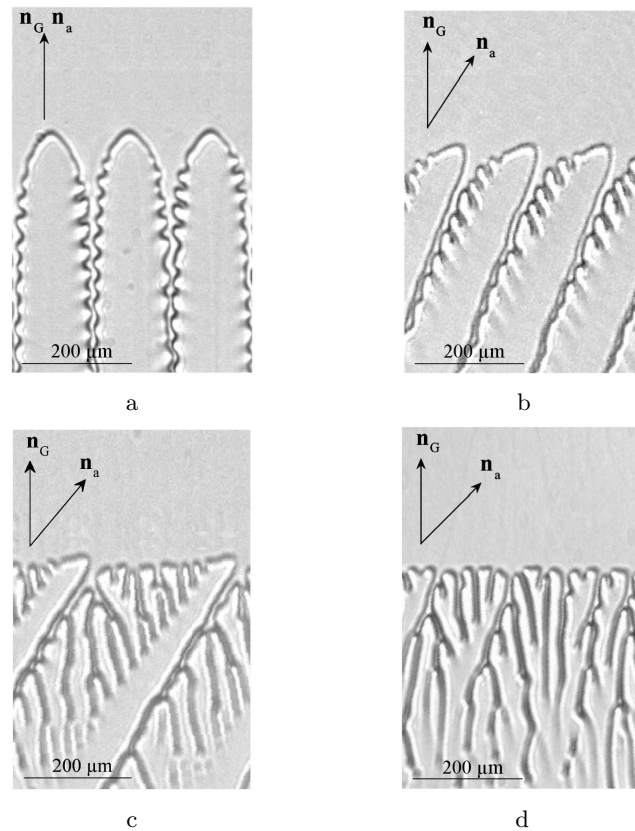


FIG. 3.2: Diverses structures pour un même gradient  $G = 140K.cm^{-1}$ . (a) Dendrite à  $\Theta_0 = 0^\circ$ ,  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$ . Les branchements sont présents des deux côtés de la dendrite et ont des amplitudes comparables entre les sillons droit et gauche. (b) Dendrite inclinée à  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ,  $V_G = 17.3\mu m.s^{-1}$ . Les branchements ne sont présents que sur le flanc tourné dans la direction de  $\mathbf{G}$ . (c) Dendrite inclinée pour  $\Theta_0 = 41.9^\circ$ ,  $V_G = 19.9\mu m.s^{-1}$ . Les branchements, de grande amplitude, conduisent à une augmentation notable de la taille des dendrites. (d) Mode dégénéré à  $\Theta_0 = 45^\circ$ ,  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$ .



### Changement de structures

Outre les cellules et les dendrites, un autre mode de croissance, plus rare et instationnaire, peut se manifester sous forme d'un mode dit dégénéré. Ce mode survient pour des ouvertures voisines de  $45^\circ$  et à basse vitesse. Le front ne présente alors plus de dendrites mais des sortes de cellules instables et soumises en permanence à des coupures de pointe (tip-splitting) (Fig. ??d). L'étude de la transition dendrite/mode dégénéré sera abordée au chapitre 5.

#### 3.1.4 Comportement en taille et vitesse

Afin de mettre en lumière les principaux ingrédients qui influent sur l'inclinaison des dendrites, nous fixons l'ouverture  $\Theta_0$  à  $30.6^\circ$  puis successivement la vitesse  $V_G$  et la taille  $\Lambda$ .

A vitesse fixée, on constate que les structures s'orientent de  $\mathbf{G}$  vers  $\mathbf{a}$  lorsque la taille augmente (Fig. ??a,b,c). A taille fixée, une évolution similaire est observée (Fig. ??d,e,f). Les figures ??a,b représentent la traduction quantitative de ces évolutions. Elles montrent une rotation similaire des structures de  $\mathbf{G}$  vers  $\mathbf{a}$  lors d'une augmentation de  $V_G$  ou de  $\Lambda$  [?].

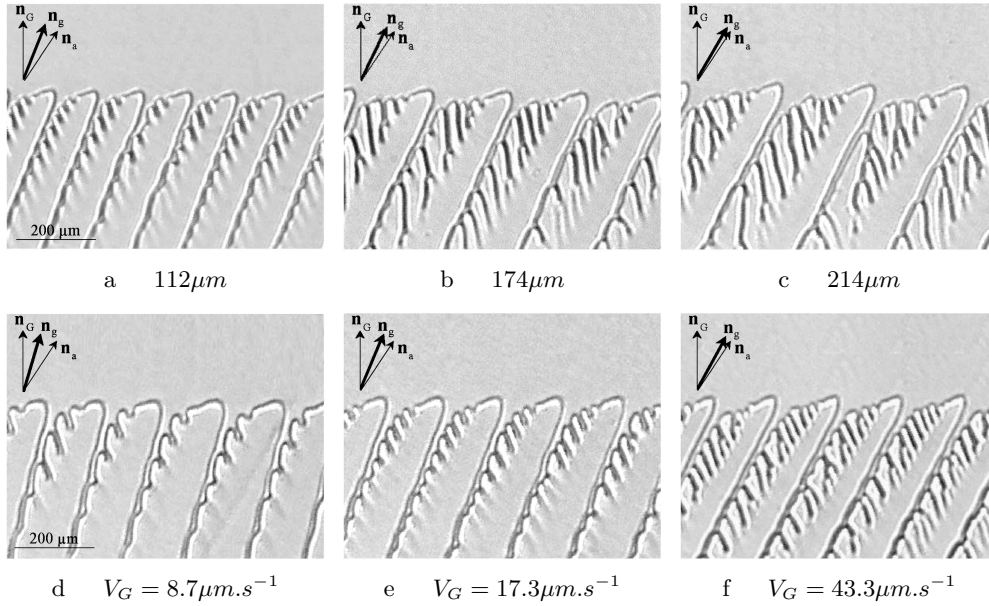


FIG. 3.3: Série a,b,c : Evolution de l'orientation des structures pour  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  en fonction de la taille des dendrites pour une vitesse donnée  $V_G = 26\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . On note que plus la taille augmente, plus les structures s'inclinent vers  $\mathbf{a}$ . Série d,e,f : Evolution de l'orientation des structures pour  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  en fonction de la vitesse  $V_G$  pour une taille donnée  $136\mu\text{m}$ . On remarque que les structures se rapprochent de la direction de  $\mathbf{a}$  à mesure que leur vitesse augmente.

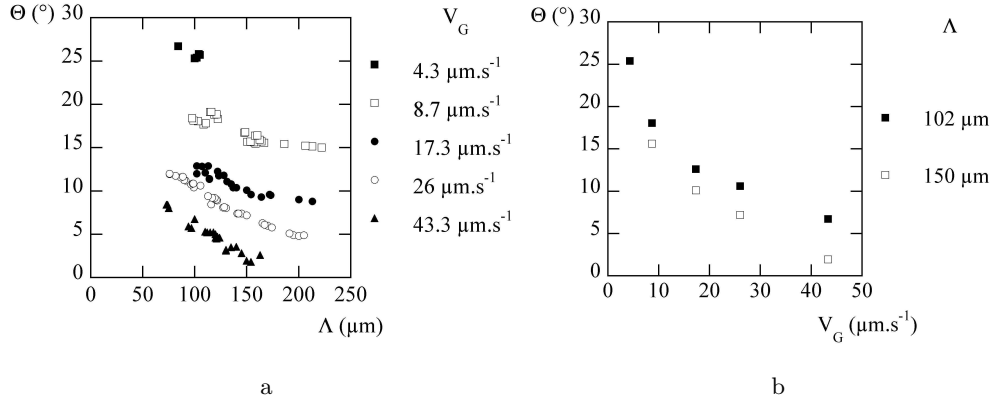


FIG. 3.4: Evolution de l'orientation des structures pour  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ . (a)  $\Theta$  en fonction de  $\Lambda$  pour différentes vitesses. On note clairement que  $\Theta$  évolue progressivement de la direction de  $\mathbf{G}$  vers celle de  $\mathbf{a}$  à mesure que  $\Lambda$  ou  $V_G$  augmentent. (b)  $\Theta$  en fonction de  $V_G$  pour différentes tailles. La conclusion est identique.

### 3.1.5 Le nombre de Péclet

La similitude des évolutions de  $\Theta$  avec  $\Lambda$  ou  $V_G$  nous conduit à considérer une variable couplée, le nombre de Péclet, dont la pertinence envers l'orientation des structures de croissance a été pointée par S. Akamatsu et T. Ihle [?].

#### Définition du nombre de Péclet

Le nombre de Péclet mesure l'importance relative des phénomènes advectifs et diffusifs sous forme du rapport entre une taille de structure et une longueur de diffusion. Par analogie avec la croissance à  $\Theta_0 = 0^\circ$ , il peut être défini en considérant la taille  $\Lambda$  des structures le long du front, et la longueur de diffusion  $l_d = D/V_G$  formée avec la vitesse de croissance  $V_G$ , dans la direction normale au front moyen :  $Pe = (\Lambda V_G)/D$ . Ce nombre renseigne ainsi sur l'intensité du couplage par diffusion des structures, faible à grand  $Pe$  et fort à petit  $Pe$ . Au delà de cette définition, notons qu'une autre taille  $\Lambda_g$  et une autre vitesse  $V_g$  auraient pu être adoptées ici en considérant la distance entre les axes des dendrites et leur vitesse de croissance le long de ceux-ci (Fig. ??). Comme  $\Lambda_g = \Lambda \cos(\Theta_0 - \Theta)$  et  $V_g = V_G/\cos(\Theta_0 - \Theta)$ , ceci aurait abouti au même nombre de Péclet. En pratique, nous utiliserons la première définition pour calculer  $Pe$  par la suite.

#### Pertinence du nombre de Péclet

L'ensemble des données des figures ?? .a,b se rassemble sur une courbe unique, fonction de  $Pe$ . Cette variable synthétise donc simultanément les dépendances de  $\Theta$  vis-à-vis de  $V_G$  et  $\Lambda$ . Elle sera dorénavant utilisée à la place de  $V_G$  et  $\Lambda$ . La décroissance monotone de la courbe  $\Theta(Pe)$  obtenue à  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  présente deux limites :

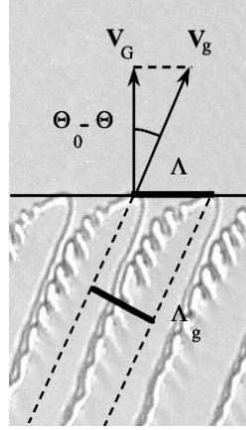


FIG. 3.5: Définition des paramètres pour la formation du nombre de Péclet. On peut l'écrire de deux façons équivalentes :  $Pe = (\Lambda V_G)/D$ , ou bien  $Pe_g = (\Lambda_g V_g)/D$ .

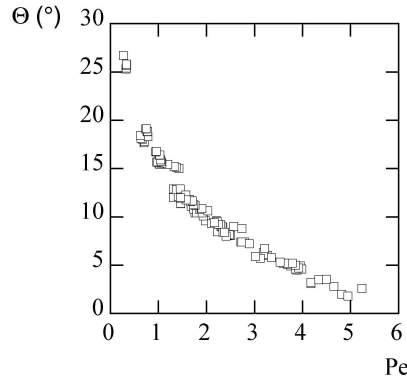


FIG. 3.6: Evolution de l'orientation des structures en fonction de  $Pe = \Lambda V_G/D$  pour  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ . Les points se regroupent sur une unique courbe.

- A faible Péclet où les structures sont fortement couplées par diffusion, la direction de croissance est proche de celle de  $\mathbf{G}$  :  $Pe \rightarrow 0$ ,  $\Theta \rightarrow \Theta_0$ .
- A grand Péclet où les structures croissent en étant découplées, la direction de croissance est proche de celle de  $\mathbf{a}$  :  $Pe \rightarrow \infty$ ,  $\Theta \rightarrow 0$ .

### 3.1.6 L'ouverture $\Theta_0$

Ci-dessus, nous avons étudié l'orientation des structures pour un seul angle d'ouverture  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  en visitant de manière exhaustive l'espace des paramètres  $V_G$  et  $\Lambda$  accessibles. Nous complétons maintenant l'étude en menant, pour chaque angle d'ouverture  $\Theta_0$  du tableau ??, des expériences et un traitement similaire.

La planche ?? représente pour quatre ouvertures  $\Theta_0$ , trois images prises à des vitesses différentes. On y retrouve les caractéristiques décrites précédemment en 3.1.3.

### 3.1. Direction de croissance des dendrites

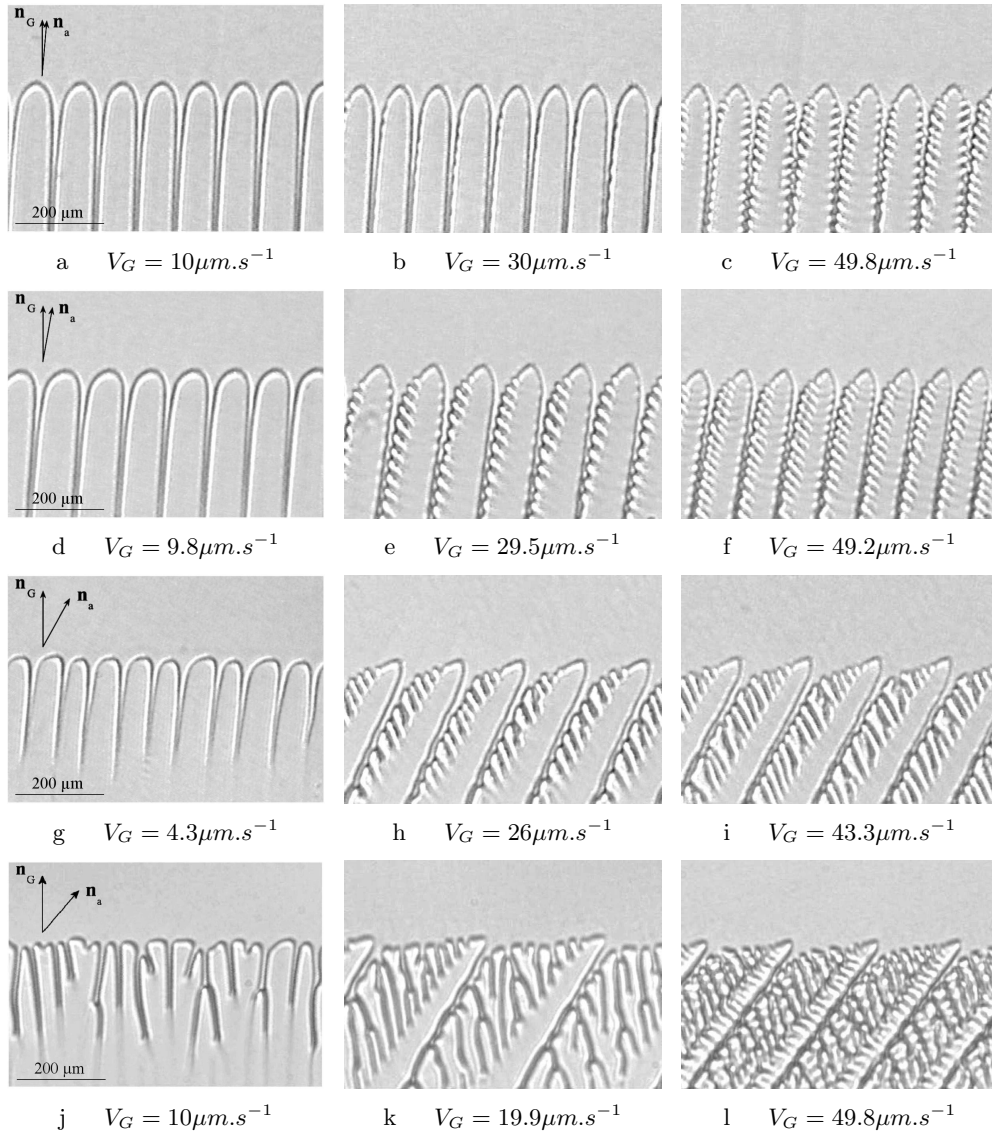


FIG. 3.7: Evolution de l'orientation des structures pour différentes ouvertures en fonction de la vitesse de poussée  $V_G$ .

Série a,b,c : faible ouverture,  $\Theta_0 = 5.7^\circ$ . (a) Le front est cellulaire. (b), (c) Le front est dendritique.

Série d,e,f :  $\Theta_0 = 10.9^\circ$ . (d) Le front est cellulaire. (e), (f) Le front est dendritique. Le caractère asymétrique des dendrites est plus prononcé avec l'apparition des branchements principalement sur le flanc tourné vers  $\mathbf{G}$ .

Série g,h,i :  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ . (g) Le front est cellulaire. (h), (i) Le front est dendritique avec de longs branchements.

Série j,k,l :  $\Theta_0 = 41.9^\circ$ . (j) Le front est en mode dégénéré. (k), (l) Le front retrouve le mode dendritique avec des branchements secondaires très développés qui procurent une taille importante à la dendrite.

### 3. Directions de croissance des structures

De même, les mesures conduisent là encore, pour chaque ouverture, à une courbe unique pour l'orientation des structures en fonction du nombre de Péclet (Fig. ??). Si chaque ouverture donne lieu à une courbe spécifique, toutes sont cependant monotones et décroissantes depuis la valeur  $\Theta = \Theta_0$  à  $Pe = 0$  à la valeur  $\Theta = 0$  à  $Pe = \infty$ .

Nous remarquons une apparente similarité entre les courbes quelle que soit l'ouverture. Nous notons par ailleurs que les valeurs de  $\Theta$  pour de grandes ouvertures et des faibles nombres de Péclet ne peuvent être obtenues par suite de l'apparition du mode dégénéré qui rend toute mesure d'orientation et de taille impossible. Pour une meilleure lisibilité des graphiques, nous nous bornerons dans la suite à représenter quelques orientations représentatives de l'ensemble de la gamme de  $\Theta_0$ .

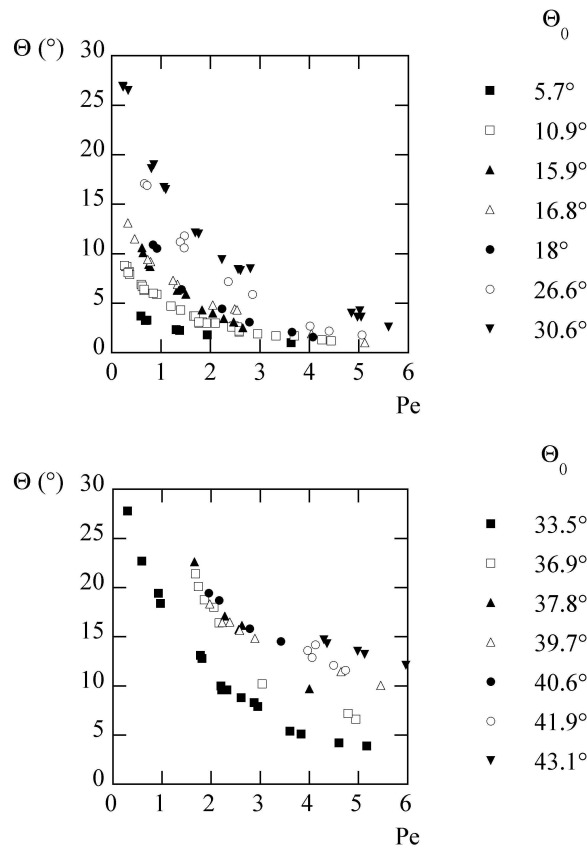


FIG. 3.8: Evolution de la direction de croissance  $\Theta$  des structures par rapport à  $\mathbf{a}$  en fonction du nombre de Péclet  $Pe$ . On constate un comportement similaire pour toutes les ouvertures :  $\Theta$  est une fonction bien définie et continue de  $Pe$  à  $\Theta_0$  fixé.

## 3.2 Loi de comportement

Les mesures obtenues dans la section précédente, au nombre de 120, nous offrent l'opportunité de rechercher la loi d'orientation des structures  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  par traitement des données. Dans un premier temps, nous examinons le degré de séparabilité des variables  $\Theta_0$  et  $Pe$  dans la relation  $\Theta(\Theta_0, Pe)$ . Ceci nous conduira, après introduction de variables réduites judicieuses, à sélectionner la loi d'orientation  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  par ses relations fonctionnelles.

### 3.2.1 Séparabilité des variables de $\Theta(\Theta_0, Pe)$

Comme la variable  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  évolue entre 0 et  $\Theta_0$ , il est utile de la normaliser par  $\Theta_0$  afin de faciliter l'étude comparative des orientations à divers angles d'ouverture  $\Theta_0$ . Les courbes obtenues, qui varient alors entre 0 et 1 sont reportées sur la figure ??.

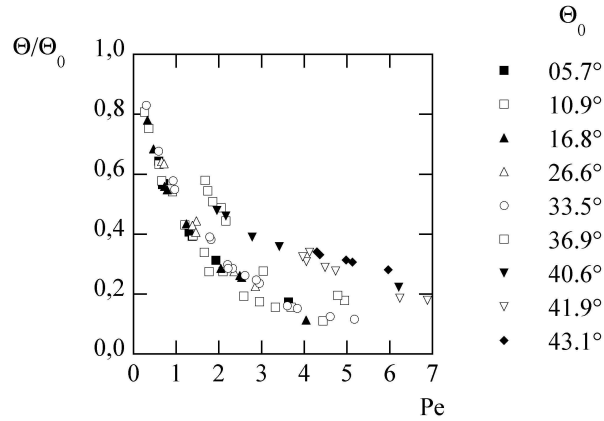


FIG. 3.9: Evolution du rapport  $\Theta/\Theta_0$  en fonction du nombre de Péclet. On distingue clairement deux zones. Pour  $\Theta_0 \lesssim 30^\circ$ , tous les points se regroupent sur une unique courbe indépendamment de l'ouverture. Au-delà, les réponses en orientation s'écartent de cette courbe commune.

On constate que les orientations réduites  $\Theta/\Theta_0$  évoluent de manière identiques pour  $\Theta_0 < 30^\circ$  et de manière différente au-delà. Ce résultat, qui a été noté par S. Akamatsu et T. Ihle sur des études numériques à  $Pe = 2.925$ , révèle un couplage des variables  $\Theta_0$  et  $Pe$  dans la réponse en orientation  $\Theta$ . Ceci nous conduit à examiner plus avant la séparabilité de ces variables.

Pour cela, nous considérons le rapport, à même Péclet, de deux variables réduites  $\Theta/\Theta_0$  et  $\Theta'/\Theta'_0$  :  $\rho = (\Theta/\Theta_0) \times (\Theta'_0/\Theta')$  avec  $\Theta = \Theta(\Theta_0, Pe)$  et  $\Theta' = \Theta'(\Theta'_0, Pe)$ . Seule l'ouverture est donc changée, le nombre de Péclet étant identique dans les deux variables réduites. Notons que si les deux variables  $\Theta_0$  et  $Pe$  étaient séparables,  $\Theta$  s'écrirait  $\Theta(\Theta_0, Pe) = \phi(\Theta_0)\psi(Pe)$  ce qui avec la condition initiale  $\Theta(\Theta_0, 0) = \Theta_0$  conduirait à  $\Theta/\Theta_0 = \psi(Pe)$ . Par conséquent, le rapport  $\rho$  se ramènerait à  $\psi(Pe)/\psi(Pe) = 1$  indépendamment des choix des couples  $(\Theta_0, \Theta'_0)$ . Ceci offre ainsi un critère simple de séparabilité : une valeur unité pour  $\rho$  pour tout choix d'angle et de nombre de Péclet :  $\rho = 1$ .

### 3. Directions de croissance des structures

Une difficulté pratique pour le calcul de ce rapport provient du fait que les points expérimentaux sont relatifs à des  $Pe$  très divers par suite des variations diverses de tailles  $\Lambda$ . Ceci conduit à une absence de points de même  $Pe$  pour les différentes ouvertures  $\Theta_0$ . Pour y remédier, nous interpolons les points expérimentaux à même  $\Theta_0$  par des polynômes. Nous obtenons ainsi une variation continue en  $Pe$  de  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  à divers  $\Theta_0$ , qui nous permet de déterminer le rapport  $\rho$  (Fig. ??).

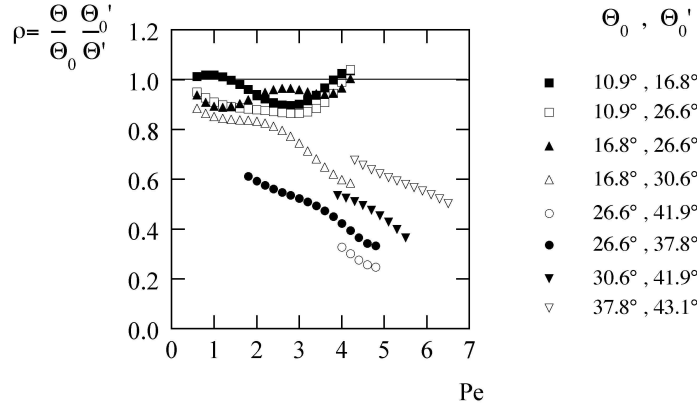


FIG. 3.10: Critère de séparabilité des variables  $(\Theta_0, Pe)$ . On forme le rapport  $\frac{\Theta}{\Theta_0} \times \frac{\Theta'_0}{\Theta'}$  où  $\Theta = \Theta(\Theta_0, Pe)$  et  $\Theta' = \Theta'(\Theta'_0, Pe)$ . Si les deux variables étaient séparables, on aurait un rapport égal à 1. C'est le cas pour des couples  $(\Theta_0, \Theta'_0)$  impliquant des petites ouvertures mais les variables ne sont plus séparables lorsqu'au moins une valeur du couple  $(\Theta_0, \Theta'_0)$  devient grande.

La droite horizontale  $\rho = 1$  représente le critère de séparabilité. Celui-ci est vérifié pour des ouvertures inférieures à  $30^\circ$  mais est nettement en défaut pour des ouvertures supérieures. Ceci authentifie une séparabilité des variables  $\Theta_0$  et  $Pe$  dans  $\Theta$  à faible ouverture et leur non séparabilité au-delà.

#### 3.2.2 La variable réduite $\xi$

Afin d'éclaircir la nature du couplage entre  $\Theta_0$  et  $Pe$  dans la variable  $\Theta$ , nous introduisons la variable réduite  $\xi(\Theta_0, Pe) = (\Theta_0 - \Theta)/\Theta$ . Cette variable correspond à la position relative de la direction de croissance  $\mathbf{n}_g$  par rapport à la direction du gradient thermique  $\mathbf{G}$  et à celle d'anisotropie  $\mathbf{a}$  :  $\xi(\Theta_0, Pe) = (\mathbf{n}_g, \mathbf{n}_G)/(\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$ . Elle présente l'intérêt d'offrir une large gamme de variation depuis 0 à  $Pe = 0$  où  $\mathbf{n}_g = \mathbf{n}_G$ , à l'infini à  $Pe = \infty$  où  $\mathbf{n}_g = \mathbf{n}_a$  :  $\xi(\Theta_0, 0) = 0$ ,  $\xi(\Theta_0, \infty) = \infty$ . Ceci pourra être plus propice à la mise en évidence des liens entre les variables  $\Theta_0, Pe, \Theta$  que sur une gamme réduite.

Normalisation de  $\xi$ 

La fonction  $\xi$  est représentée sur la figure ??a. Elle présente des variations en fonction de l'angle d'ouverture  $\Theta_0$  qui sont le pendant de celles de la fonction  $\Theta/\Theta_0$  (Fig. ??). Pour étudier leur relation, nous introduisons pour chaque famille d'angle d'ouverture  $\Theta_0$  un facteur  $\xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  où  $Pe'(\Theta_0)$  correspond à un nombre de Péclet  $Pe$  fixé dans chaque famille, mais arbitraire. Nous obtenons ainsi une nouvelle fonction  $\chi = \xi(\Theta_0, Pe)/\xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  dépendant de trois variables  $\Theta_0$ ,  $Pe$  et  $Pe'(\Theta_0)$  :  $\chi = \chi[\Theta_0, Pe, Pe'(\Theta_0)]$ . La variable  $Pe'(\Theta_0)$  règle ici le facteur de normalisation de  $\xi$ . Il est donc intéressant de l'utiliser également comme facteur de normalisation des nombres de Péclet en considérant le nombre de Péclet réduit  $Pe/Pe'(\Theta_0)$ . Ainsi,  $\chi = \chi[\Theta_0, Pe/Pe'(\Theta_0), Pe'(\Theta_0)]$ .

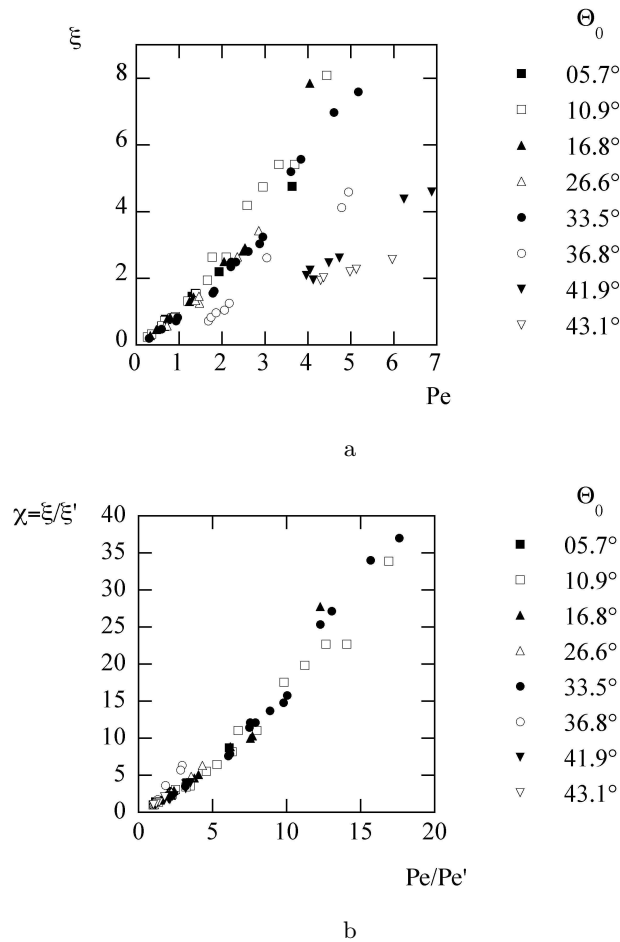


FIG. 3.11: Représentation de la variable réduite  $\xi$ . (a) Evolution de la position relative des structures  $\xi(\Theta_0, Pe) = (\Theta - \Theta_0)/\Theta_0$ . (b) On normalise  $\xi$  en utilisant la fonction  $\chi = \xi(\Theta_0, Pe)/\xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  où  $Pe'(\Theta_0)$  est le plus petit nombre de Péclet pour chaque famille. Les points se regroupent sur une unique courbe fonction de  $Pe/Pe'$ . Ceci témoigne de la dépendance de  $\chi$  à une seule variable  $Pe/Pe'$ .



### 3. Directions de croissance des structures

---

*A priori*, la fonction  $\chi$  dépendant de trois variables, son graphe en fonction de l'une d'entre elles devrait donner une série de courbes indicées par les deux variables restantes. Or, en prenant pour  $Pe'(\Theta_0)$  le plus petit nombre de Péclet des mesures effectuées dans chaque famille d'angle  $\Theta_0$ , le graphe  $[\chi, Pe/Pe'(\Theta_0)]$  présente une courbe *unique*, indépendante de l'angle  $\Theta_0$  :  $\chi = \chi[Pe/Pe'(\Theta_0)]$ . Cette propriété étonnante peut difficilement résulter du choix de  $Pe'(\Theta_0)$  qui, étant défini comme minimum du panel de mesures, apparaît largement arbitraire. Elle doit donc pointer une caractéristique pertinente de la fonction  $\chi$ .

#### Indépendance vis-à-vis du nombre de Péclet de normalisation $Pe'$

La nature relative du choix du nombre de Péclet de normalisation  $Pe'(\Theta_0)$  peut être aisément testée en construisant les changements induits par un autre choix de sa valeur. Nous considérons ainsi dans chaque famille d'angle  $\Theta_0$ , trois autres valeurs de  $Pe'(\Theta_0)$  : le plus grand de la gamme de mesure dans cette famille, le médian, et une valeur du nombre de Péclet commune à chaque famille, ici  $Pe' = 2$ . Or, pour chacun d'eux, nous obtenons de nouveau une courbe unique  $\chi = \chi(Pe/Pe')$  (Fig. ??).

L'existence, pour chaque jeu de normalisation  $\{Pe'(\Theta_0)\}$ , d'une courbe unique  $\chi[\Theta_0, Pe/Pe'(\Theta_0), Pe'(\Theta_0)] = \chi[Pe/Pe'(\Theta_0)]$  indépendante des autres variables  $\Theta_0$  et  $Pe'(\Theta_0)$ , n'est compatible qu'avec des formes très spécifiques de fonction  $\chi$  qui permettent donc de les caractériser. Pour cela, remarquons que, par définition de  $\chi$  :

$$\begin{aligned}\chi(\Theta_0, Pe/Pe'', Pe'') &= \frac{\xi(\Theta_0, Pe)}{\xi(\Theta_0, Pe'')} = \frac{\xi(\Theta_0, Pe)}{\xi(\Theta_0, Pe')} \times \frac{\xi(\Theta_0, Pe')}{\xi(\Theta_0, Pe'')} \\ &= \chi(\Theta_0, Pe/Pe', Pe') \times \chi(\Theta_0, Pe'/Pe'', Pe'')\end{aligned}$$

où  $Pe' = Pe'(\Theta_0)$  et  $Pe'' = Pe''(\Theta_0)$ .

L'existence, pour chaque jeu de  $Pe$  de normalisation d'une courbe unique conduit à :

$$\chi(Pe/Pe'') = \chi(Pe/Pe') \times \chi(Pe'/Pe'')$$

Comme  $Pe/Pe'' = Pe/Pe' \times Pe'/Pe''$ , nous obtenons l'équation fonctionnelle :  $\forall(x, y); \chi(xy) = \chi(x)\chi(y)$  dont les seules solutions sont les lois de puissance  $\chi(x) = \chi(1)x^b$  avec ici par définition de  $\chi$ ,  $\chi(1) = 1$ . L'ajustement de la loi de puissance  $\chi(Pe/Pe') = (Pe/Pe')^b$  aux données conduit pour les quatre choix de  $Pe'(\Theta_0)$  effectués en figures ?? et ?? à  $b = 1.246$  que nous approchons par  $b = 5/4$ . On peut vérifier *a posteriori* que la courbe représentée en figure ?? et ?? interpole bien l'ensemble des données. Celle-ci correspond donc à une loi unique  $\chi(\Theta_0, Pe/Pe', Pe') = (Pe/Pe')^b$ .

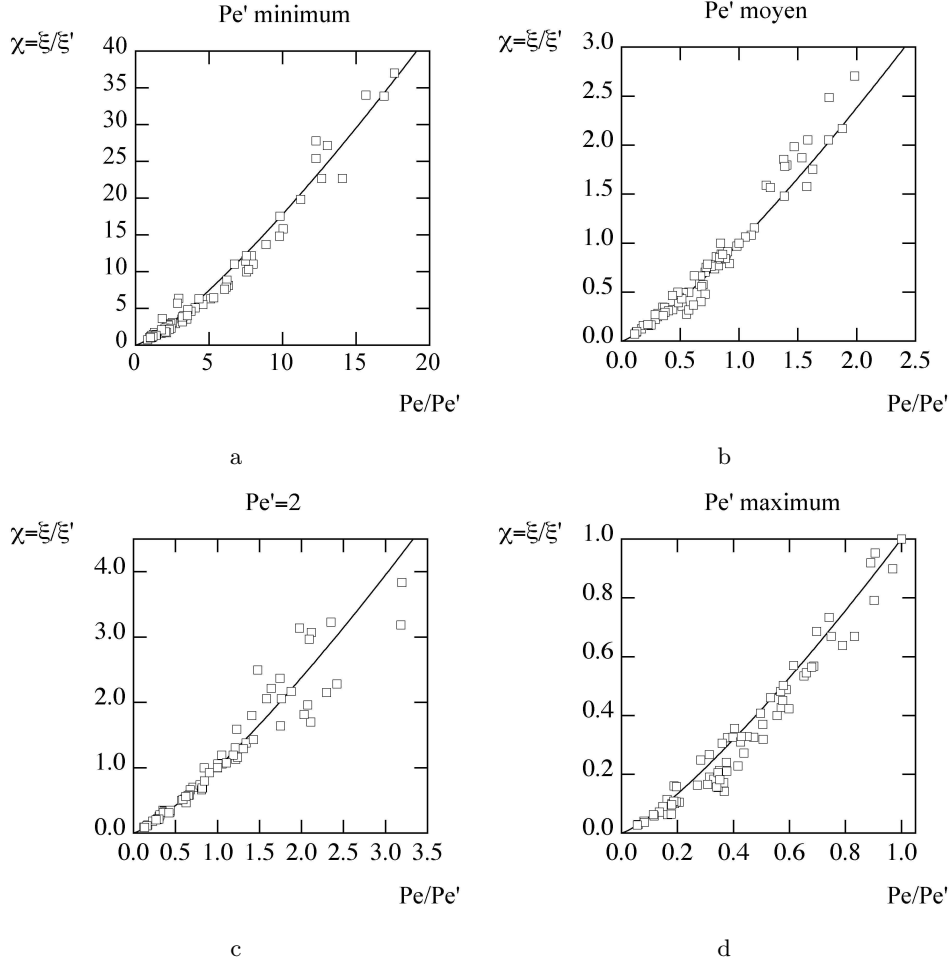


FIG. 3.12: Evolution de la position relative des structures  $\xi(\Theta_0, Pe) = (\Theta_0 - \Theta)/\Theta$  normalisée. Regroupement de variables réduites  $(\chi, Pe/Pe')$  sur une unique courbe où  $\chi = \xi/\xi'$ ,  $\xi = \xi(\Theta_0, Pe)$ ,  $\xi' = \xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  et  $Pe' = Pe'(\Theta_0)$ . (a)  $Pe'$  est le nombre de Péclet minimum pour chaque famille. (b)  $Pe'$  est le nombre de Péclet moyen. (c)  $Pe'$  est un nombre de Péclet commun à chaque famille,  $Pe' = 2$ . (d)  $Pe'$  est le nombre de Péclet maximum de chaque famille. Les points se regroupent sur une unique courbe quel que soit  $Pe'$ . Cette courbe,  $\chi = (Pe/Pe')^{5/4}$ , est représentée en trait plein. A noter, sur l'ensemble des graphiques, la similarité entre les gammes des abscisses et des ordonnées :  $y = x^{5/4}$ .

### 3.2.3 La loi de croissance

Suite à l'identification de  $\chi$ , on constate que la fonction  $\xi(\Theta_0, Pe)$  présente des variables séparées  $\xi(\Theta_0, Pe) = \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}$  où le coefficient  $\alpha$  n'est fonction que de  $\Theta_0$  :  $\alpha(\Theta_0) = \chi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]/Pe'(\Theta_0)^{5/4}$ . La détermination de  $\alpha(\Theta_0)$  est obtenue par ajustement, à chaque  $\Theta_0$ , de la fonction  $\xi(\Theta_0, Pe)$  à la loi de puissance  $\alpha(\Theta_0)Pe^b$ . Les valeurs obtenues forment un plateau jusqu'à  $\Theta_0 \sim 20^\circ$  puis présentent une décroissance nette vers 0. Pour caractériser cette évolution nous l'interpolons à une loi polynomiale de la forme  $\alpha(\Theta_0) = \beta[1 - (\Theta/\Theta_m)^\delta]$  bien

### 3. Directions de croissance des structures

adaptée à l'évolution observée de  $\alpha$ . L'ajustement nous fournit  $\beta = 1.1$ ,  $\delta = 4$  et  $\Theta_m = 46^\circ$ . Notons cependant la différence de statut de cette relation avec la loi de puissance obtenue pour  $\xi$  : tandis que la seconde repose sur une symétrie interne aux données, la relation  $\alpha(\Theta_0)$  n'est qu'un ajustement empirique, utile pour synthétiser les données, mais sans lien avec une propriété fondamentale du système.

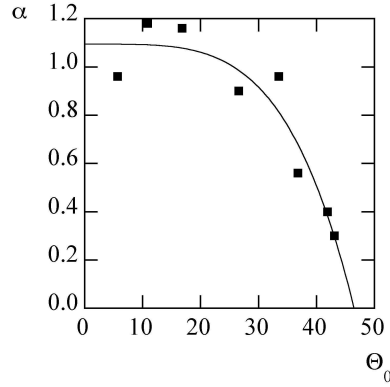


FIG. 3.13: Valeur du facteur  $\alpha$  pour chaque famille  $\Theta_0$  dans l'expression de la fonction  $\xi(\Theta_0, Pe) = \alpha(\Theta_0)Pe^b$ . La ligne noire représente l'interpolation des points par le polynôme  $\alpha[1 - (\Theta_0/\Theta_m)^\beta]$ .

Ces relations conduisent à un regroupement non-linéaire très satisfaisant de l'ensemble des données expérimentales, à tout  $Pe$  et à tout angle d'ouverture  $\Theta_0$  (Fig. ??). Celui-ci semble indiquer l'existence d'une universalité de la réponse en orientation des structures à leurs conditions de vitesse, de taille et de direction cristalline.

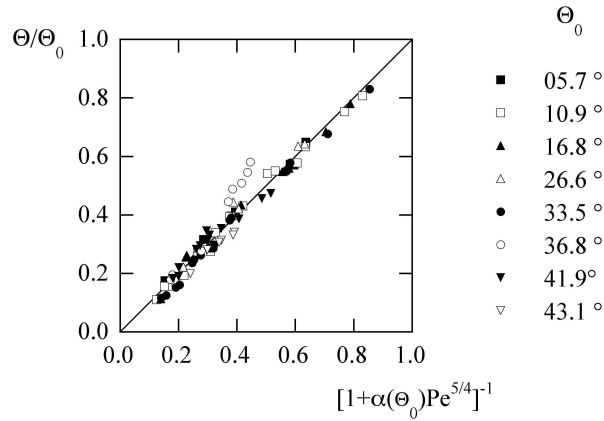


FIG. 3.14: Evolution du rapport  $\Theta/\Theta_0$  en fonction du regroupement non-linéaire  $[1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$ .

### 3.3 Conclusion

L'étude exhaustive de l'orientation de la direction de croissance des structures en fonction de l'angle d'ouverture  $\Theta_0$ , de la vitesse  $V_G$  et de leur taille  $\Lambda$  a confirmé la dépendance de  $\Theta$  vis-à-vis du nombre de Péclet  $Pe$  observée par S. Akamatsu et T. Ihle [?], en l'étendant à l'ensemble de la gamme d'angle  $\Theta_0$  disponible. Afin d'éclaircir la variation des réponses de l'orientation en fonction de  $\Theta_0$ , une variable réduite  $\xi$  a été introduite. Un traitement de donnée a révélé ses propriétés de symétrie interne conduisant alors à la sélection d'une loi algébrique en  $Pe$  :  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^b]^{-1}$ . Après ajustement aux données des paramètres  $b$  et  $\alpha(\Theta_0)$ , ceci correspond à une unique fonction de réponse de la direction de croissance des structures :

$$\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1} \quad (3.1)$$

$$\alpha(\Theta_0) = 1.1[1 - (\Theta_0/46)^4] \quad (3.2)$$

La symétrie interne de  $\xi$  et la nature continue des relations (3.1) et (3.2) nous indiquent l'absence de changement de régime avec  $\Theta_0$ .



## Chapitre 4

# Universalité de la réponse en orientation

Au cours du chapitre précédent, nous avons déterminé la loi expérimentale d'orientation des structures en fonction des directions du gradient de température  $\mathbf{G}$  et de l'anisotropie cristalline  $\mathbf{a}$ , de la vitesse  $V_G$  et de la taille  $\Lambda$  des structures. Cependant, les autres caractéristiques de  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{a}$  étaient fixées du fait de l'utilisation d'un unique matériau, le succinonitrile, et d'une unique valeur du gradient de température.

À présent, nous souhaitons étendre l'étude précédente à d'autres intensités de gradient de température et à d'autres alliages. Par ailleurs, la critique de la taille caractéristique pertinente vis-à-vis de la direction de croissance des structures, nous conduira à une nouvelle définition de taille  $\tilde{\Lambda}$ , indépendante de celle des branchements secondaires. L'orientation  $\Theta$  des structures en fonction du nouveau nombre de Péclet résultant,  $\tilde{Pe}$ , se révélera alors donnée par une courbe unique, valable à tous régimes et pour toutes morphologies.

Le présent chapitre se trouve composé de quatre parties. La première se rapporte à l'effet d'une variation d'intensité de gradient thermique sur l'orientation des dendrites. La deuxième consiste à varier les caractéristiques de l'anisotropie en changeant de matériaux (acide pivalique, eau) et en considérant les données accessibles de la littérature sur le tétrabromure de carbone [?]. La troisième partie inclut la définition d'une nouvelle échelle morphologique des cellules et dendrites et la mise en évidence d'une loi unique de croissance indépendante des régimes et de la morphologie. Ces résultats sont enfin appliqués, dans la dernière partie, à la détermination des directions de croissance des branchements considérés comme formes de croissance propres.

## 4.1 Variation d'intensité de $\mathbf{G}$

L'intensité du gradient thermique  $\mathbf{G}$  paramètre le seuil d'instabilité primaire [?], les formes de cellule [?] et le seuil d'instabilité de branchement [?, ?]. Il est donc licite de penser qu'elle puisse là aussi, influencer notablement les directions de croissance  $\Theta$ . Cependant, une simulation numérique a révélé une surprenante indépendance de  $\Theta$  à l'intensité de  $\mathbf{G}$  [?]. Pour tester cette propriété expérimentalement, nous reprenons les expériences du chapitre 3 à un gradient  $G$  deux fois plus faible,  $G = 70K.cm^{-1}$ , et nous comparons les directions de croissance obtenues à celles mesurées au gradient double,  $G = 140K.cm^{-1}$ .

### 4.1.1 Méthode expérimentale

Le protocole expérimental utilisé ici est identique à celui décrit au paragraphe 3.1.2, à savoir que les vitesses employées se situent au-dessus du seuil de déstabilisation primaire  $V_c$  et que l'ouverture  $\Theta_0$  varie sur l'ensemble de la gamme de valeurs accessibles. Celles-ci sont reportées dans le tableau ?? et se rapportent à une seule orientation de grain associée à des rotations de fours et de l'échantillon.

$\Theta_0$	Orientation des fours	Orientation du grain	Orientation de l'échantillon
10.5°	(10°) 9.8°	+0.7°	0°
20°	(20°) 19.3°	+0.7°	0°
25.7°	(30°) 29.1°	0.7°	4.1°
30.2°	(30°) 29.5°	0.7°	0°
34.3°	(30°) 29.5°	0.7°	4.1°
39.8°	(45°) 44.6°	-0.7°	-4.1°
40.1°	(45°) 44.1°	-0.7°	-3.3°
41.9°	(45°) 44.5°	+0.7°	-3.3°
42.8°	(45°) 44.3°	+0.7°	-2.2°

TAB. 4.1: Valeurs de  $\Theta_0$  à  $G = 70K.cm^{-1}$  combinant les orientations des fours, du grain et de l'échantillon vis-à-vis de  $\mathbf{V}$ . Dans la seconde colonne, les parenthèses indiquent l'orientation souhaitée des fours et l'autre valeur, l'orientation du gradient mesurée. La colonne suivante indique l'orientation du grain et enfin, la dernière colonne donne les valeurs de l'orientation de la cale du pousse échantillon.

### 4.1.2 Observations qualitatives

La planche ?? représente pour trois ouvertures  $\Theta_0$ , trois images prises à  $G = 70K.cm^{-1}$  à des vitesses différentes. On y retrouve les caractéristiques morphologiques déjà décrites au chapitre 3 à  $G = 140K.cm^{-1}$  :

- Dendrites inclinées présentant des branchements sur le flanc tourné vers  $\mathbf{G}$ .
- Mode dégénéré à faible vitesse pour des ouvertures proches de 45°.

Par ailleurs, nous constatons que les tailles  $\Lambda$  des structures sont plus importantes que celles observées pour  $G = 140K.cm^{-1}$ .

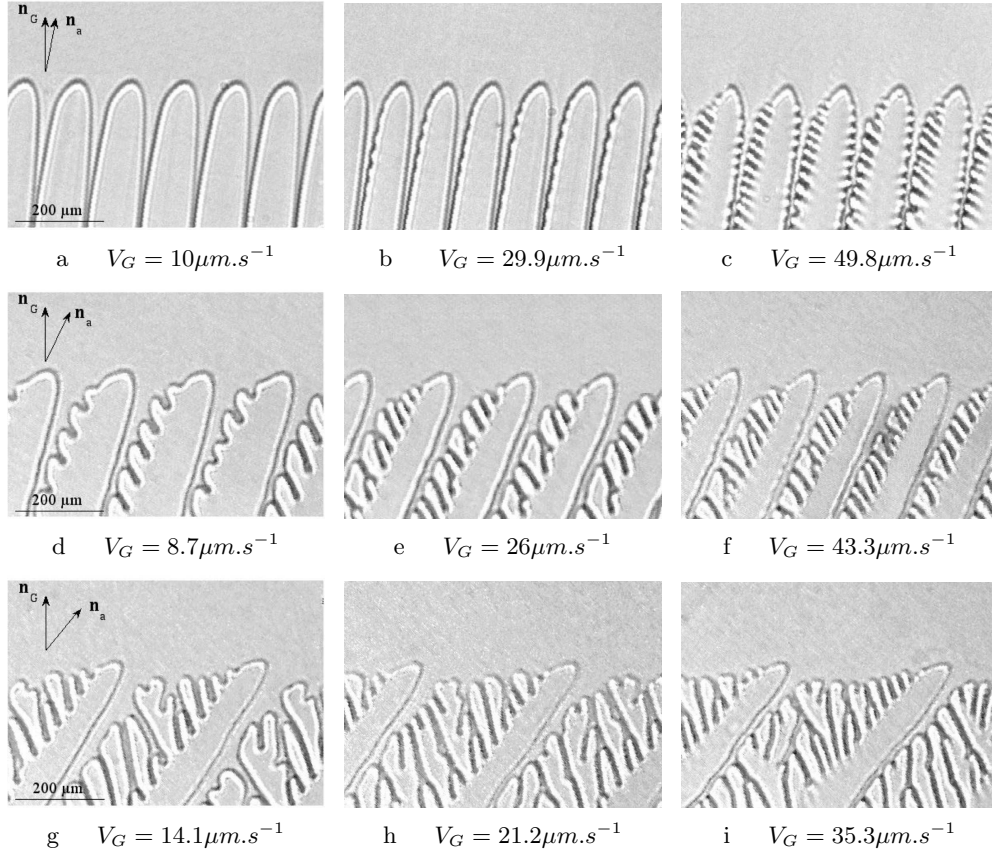


FIG. 4.1: Evolution de l'orientation des structures pour différentes ouvertures en fonction de la vitesse de poussée  $V_G$  pour  $G = 70K.cm^{-1}$ . Série a,b,c : faible ouverture,  $\Theta_0 = 10.2^\circ$ . (a) Le front est cellulaire. (b), (c) Le front est dendritique. Série d,e,f :  $\Theta_0 = 25.7^\circ$ . Série g,h,i :  $\Theta_0 = 41.9^\circ$ . On note sur l'ensemble des séries un forte augmentation de la taille des structures par rapport à la planche d'image ??.

### 4.1.3 Loi de croissance

Les mesures de directions de croissance des structures conduisent à une courbe unique pour chaque ouverture en fonction du nombre de Péclet (Fig. ??). Bien que la gamme de nombre de Péclet soit élargie par suite de l'augmentation des tailles  $\Lambda$ , il semble que les courbes obtenues soient identiques à celles de la figure ?. Afin d'éclaircir quantitativement les constatations précédentes, nous reproduisons à ce gradient thermique  $G = 70K.cm^{-1}$  l'analyse précédemment appliquée aux données obtenues à  $G = 140K.cm^{-1}$ . Nous introduisons ainsi la variable réduite  $\xi$  normalisée pour former la fonction  $\chi$ . La normalisation par un nombre de Péclet arbitraire conduit à une loi de puissance pour  $\chi$  avec un exposant  $b = 1.265$  (au lieu de  $b = 1.246$ ) que nous approchons là encore par  $5/4$  (Fig. ??a). L'interpolation du paramètre  $\alpha(\Theta_0)$  dans l'expression  $\xi(\Theta_0, Pe) = \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}$  donne  $\alpha(\Theta_0) = 1.14[1 - (\Theta_0/46.6)^4]$  (Fig. ??b).

Compte tenu des incertitudes expérimentales, on approche  $\alpha(\Theta_0)$  par la fonction (3.2),  $\alpha(\Theta_0) = 1.1[1 - (\Theta_0/46)^4]$ . Nous obtenons ainsi la même loi de crois-



#### 4. Universalité de la réponse en orientation

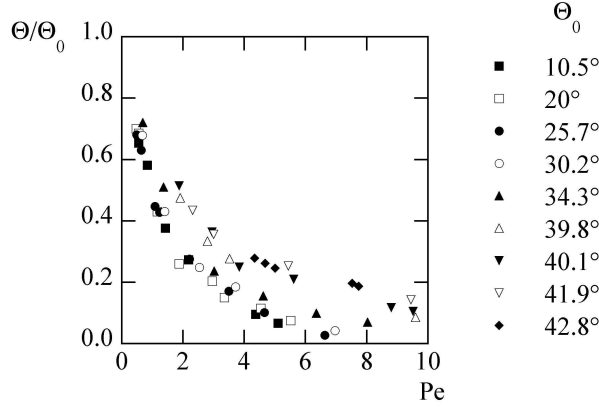


FIG. 4.2: Evolution du rapport  $\Theta/\Theta_0$  en fonction du nombre de Péclet pour  $G = 70K.cm^{-1}$ . Les réponses semblent identiques à celles obtenues pour  $G = 140K.cm^{-1}$ .

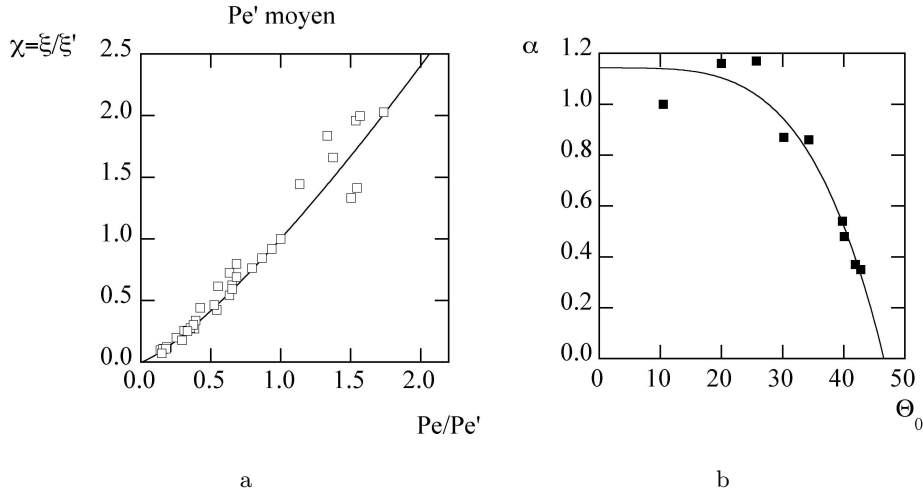


FIG. 4.3: Détermination de la loi de croissance. (a) Les données permettent de faire émerger la loi de puissance  $\chi(Pe/Pe') = (Pe/Pe')^b$  avec  $b = 5/4$ . (b) Ajustement de  $\alpha(\Theta_0) = \xi(\Theta_0, Pe)Pe^{-5/4}$  pour chaque  $\Theta_0$ .

sance qu'à  $G = 140K.cm^{-1}$  (cf. chapitre 3). Pour terminer cette analyse, nous représentons sur la figure ?? aux deux gradients de température, le rapport  $\Theta/\Theta_0$  en fonction de la variable (3.1) (3.2) pour trois valeurs caractéristiques d'ouverture. Le regroupement des points sur la droite identité est très bon. Ceci prouve que quelle que soit l'ouverture  $\Theta_0$  et l'intensité de  $\mathbf{G}$ , le regroupement non-linéaire (3.1) (3.2) est identique pour l'ensemble des données expérimentales.

## 4.1.4 Conclusion

La direction  $\mathbf{G}/G$  du gradient de température est une des asymptotes ( $\Theta/\Theta_0 = 1$ ) de la loi de croissance (3.1) (3.2). On aurait donc pu s'attendre à ce que l'intensité de ce vecteur modifie l'approche de cette asymptote, c'est-à-dire la loi  $\Theta/\Theta_0(Pe)$  trouvée. Ce n'est pas ce qu'ont montré les expériences puisque, dans le domaine d'étude ici exploré, la norme de  $\mathbf{G}$  n'a pas d'effet sur la direction de croissance des structures. En revanche, elle a un effet sur les gammes de stabilité des structures inclinées comme nous le verrons au chapitre 5.

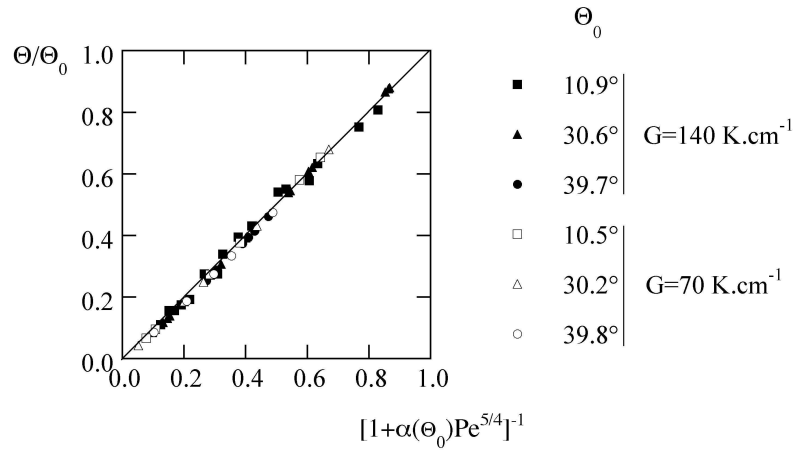


FIG. 4.4: Evolution du rapport  $\Theta/\Theta_0$  en fonction du regroupement non-linéaire  $[1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  pour  $G = 70K.cm^{-1}$  et  $G = 140K.cm^{-1}$ . L'interpolation de  $\alpha$  pour  $G = 70K.cm^{-1}$  est identique à celle pour  $G = 140K.cm^{-1}$  et correspond à la relation (3.2).

## 4.2 Variation des caractéristiques de l'anisotropie

Après avoir varié l'intensité  $G$  relative à une des directions asymptotiques du problème, nous varions à présent les caractéristiques quantitatives relatives à la seconde en modifiant la nature de l'anisotropie. Il est en effet légitime de se demander si une variation de l'anisotropie de tension de surface et/ou cinétique implique un rapprochement plus ou moins rapide de l'asymptote considérée. Pour élucider cela, nous changeons de matériaux et reprenons les expériences du chapitre 3 afin de comparer les directions de croissance des structures pour chacun d'eux.

Ainsi, nous effectuons successivement des expériences avec l'acide pivalique qui conserve la symétrie de type cubique du succinonitrile, puis avec l'eau, qui change radicalement de structure cristalline. Nous utilisons par ailleurs certaines données accessibles dans la littérature sur le tetrabromure de carbone [?].

### 4.2.1 L'acide pivalique

#### Historique

L'acide pivalique possède une tension superficielle  $\gamma_0$  trois fois plus faible que celle du succinonitrile [?, ?]. En revanche, lors d'observation de germes isothermes, M. E. Glicksman, ainsi que A. Dougherty, mesurent une anisotropie capillaire dix fois plus forte :  $\epsilon_c = 5\%$  [?, ?].

P. Oswald *et al.* et R. Trivedi *et al.* ont étudié l'influence de l'anisotropie sur l'orientation des structures d'acide pivalique. Les premiers s'intéressent spécifiquement à l'orientation en fonction de la vitesse [?]. Les seconds recherchent l'influence des effets cinétiques sur l'évolution des dendrites inclinées [?, ?]. Mais aucun ne considère les tailles des structures qui n'étaient pas soupçonnées à ce moment influencer la direction de croissance. Cependant, un tableau de données dans l'article de R. Trivedi *et al.* permet heureusement d'utiliser *a posteriori* les mesures effectuées dans le cadre actuel. Ceci s'opère par la correspondance  $(V_z, \Phi, \Psi, \lambda_t) \rightarrow (V_G, \Theta_0 - \Theta, \Theta_0, \Lambda)$  où les premières variables sont celles rapportées dans l'article [?] et les secondes celles utilisées ici. Ces expériences [?] ont été menées pour trois ouvertures différentes  $\Theta_0 = 14^\circ$ ,  $\Theta_0 = 19^\circ$ ,  $\Theta_0 = 40,5^\circ$ . Connaissant la valeur de la diffusivité solutale [?], il est alors possible de construire le nombre de Péclet et le rapport  $\Theta/\Theta_0$  que nous représentons sur la figure ?? . Il n'est malheureusement pas possible d'effectuer le même post-traitement pour les résultats de P. Oswald *et al.* car les tailles des structures ne sont pas indiquées. A titre de comparaison avec le succinonitrile, nous traçons sur ce graphique la fonction (3.1) (3.2) pour les trois valeurs de  $\Theta_0$  étudiées. On constate alors que les données expérimentales ne font que confirmer la tendance déjà observée dans le chapitre 3, mais qu'elles n'apportent rien au-delà. Il est alors nécessaire d'éclairer cette tendance en effectuant d'autres expériences.

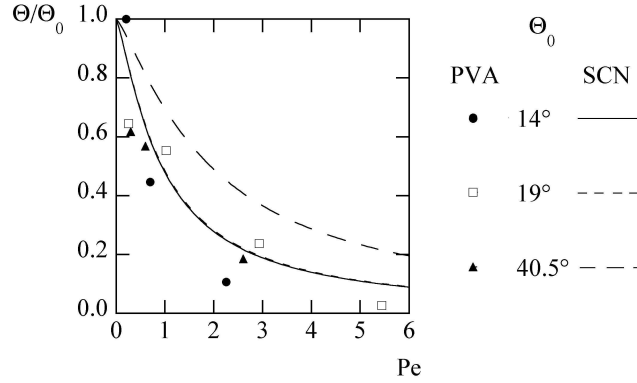


FIG. 4.5: Evolution de l'orientation des structures pour  $\Theta_0 = 14^\circ$ ,  $\Theta_0 = 19^\circ$ ,  $\Theta_0 = 40.5^\circ$  à  $G = 30K.cm^{-1}$  d'après les données de R. Trivedi sur l'acide pivalique (PVA) [?]. Les courbes sont issues des fonctions  $[1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenues pour le succinonitrile (SCN) aux mêmes  $\Theta_0$  que R. Trivedi.

### Méthodes et observations expérimentales

Les expériences sont effectuées à  $G = 45K.cm^{-1}$ , pour des vitesses de 1, 1.5, 2, 5, 10, 20, 30,  $50\mu m.s^{-1}$  et trois ouvertures différentes :  $30.6^\circ$ ,  $37.5^\circ$  et  $44.7^\circ$ . Pour les deux ouvertures extrêmes, quatre images prises à des vitesses différentes sont représentées sur la figure ??.

En comparant qualitativement la planche ?? avec celle obtenue pour le succinonitrile (planche ??), on constate plusieurs ressemblances :

- Les structures sont asymétriques, inclinées et présentent des branchements principalement sur le flanc tourné vers  $\mathbf{G}$ .
- Le mode dégénéré apparaît aux grandes ouvertures et aux faibles vitesses.

Par ailleurs, on observe également certaines différences d'ordre morphologique :

- Les pointes des dendrites d'acide pivalique sont plus effilées que celles de succinonitrile.
- Les branchements sur les dendrites de la planche ?? naissent plus loin dans les sillons et sont moins développés à grande vitesse que ceux de la planche ??.

### Orientation des structures

Les orientations  $\Theta/\Theta_0$  des structures en fonction du nombre de Péclet sont représentées sur la figure ??a avec un zoom sur la gamme  $Pe \in [0; 10]$  en figure ??b. On superpose sur la même figure les courbes issues de la loi de croissance  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenue avec le succinonitrile.

On remarque que les points expérimentaux se regroupent exactement sur les courbes du succinonitrile pour  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  et  $\Theta_0 = 37.5^\circ$ . En revanche, ce n'est pas le cas pour  $\Theta_0 = 44.7^\circ$  où les points se trouvent très éloignés de la courbe de réponse du succinonitrile. Par ailleurs, le mode dégénéré apparaît pour des nombres de Péclet plus petits pour l'acide pivalique que pour le succinonitrile à ouverture identique.

#### 4. Universalité de la réponse en orientation

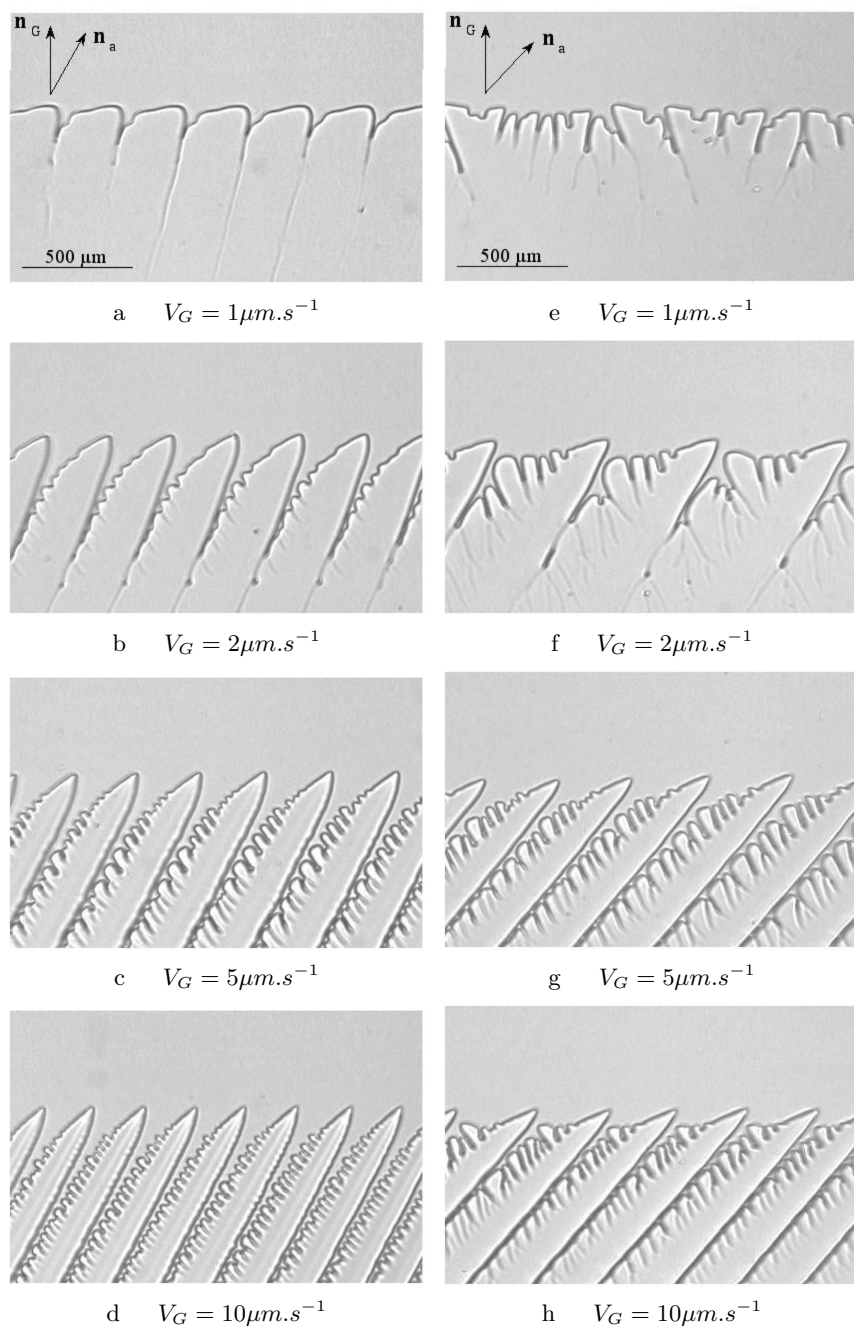


FIG. 4.6: Evolution de l'orientation des structures d'acide pivalique pour deux ouvertures en fonction de la vitesse de poussée  $V_G$ . Série a,b,c,d :  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ . A chaque vitesse, le front est dendritique. Série e,f,g,h :  $\Theta_0 = 44.7^\circ$ . (e) Le front est en mode dégénéré. (f), (g), (h) Le front est dendritique.

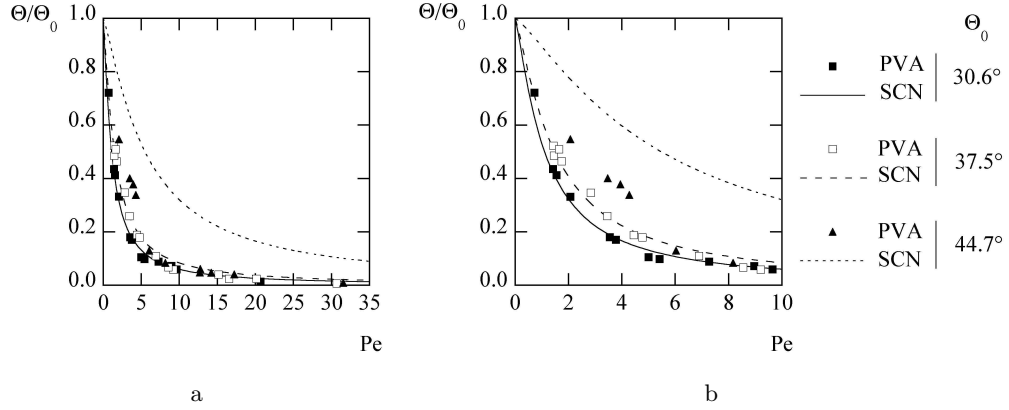


FIG. 4.7: Evolution de l'orientation des structures d'acide pivalique (PVA) pour trois ouvertures  $\Theta_0 = 30,6^\circ$ ,  $\Theta_0 = 37,5^\circ$ ,  $\Theta_0 = 44,7^\circ$ . La gamme de nombre de Péclet  $[0.5; 32]$  est plus importante que celle visitée pour le succinonitrile (SCN)  $[0.2; 7]$ . (a) Gamme complète de nombre de Péclet. (b) Zoom sur l'intervalle  $[0; 10]$ . Les courbes représentent la fonction  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenues avec le succinonitrile.

## Conclusion

Bien que la nature de l'anisotropie soit différente entre le succinonitrile et l'acide pivalique, on observe pourtant des comportements similaires concernant l'orientation des structures. Cela conduit à une loi de croissance identique entre les deux matériaux pour les deux plus petites ouvertures étudiées pour l'acide pivalique :  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  et  $\Theta_0 = 37.5^\circ$ . Au-delà, les réponses diffèrent. Cette différence a peut être pour origine la différence morphologique observée entre les structures :

- Tête de dendrite très pointue et branchements faiblement développés pour l'acide pivalique.
- Tête de dendrite arrondie et branchements très développés pour le succinonitrile.

Cette hypothèse sera éclaircie par l'introduction d'une nouvelle définition de la taille de dendrite au paragraphe 4.3.

### 4.2.2 L'eau

#### Historique

La glace présentant une structure hexagonale, elle diffère largement des deux cristaux plastiques précédemment étudiés. Son anisotropie de tension de surface est environ 30% dans le plan de croissance piloté par la cinétique et elle est comprise entre 0.1% et 0.3% dans le plan piloté par la diffusion [?]. Les études qui lui sont dédiées en croissance directionnelle sont assez rares pour être mentionnées ici :

M. F. Butler étudie les dendrites symétriques d'eau avec pour soluté du sucre et du pullulan afin de mesurer la taille critique de l'instabilité primaire

#### 4. Universalité de la réponse en orientation

ainsi que les tailles moyennes qu'il compare aux théories [?]. K. Nagashima incline  $\mathbf{a}$  par rapport à  $\mathbf{G}$  pour un alliage eau-KCl pour lequel il mesure l'inclinaison des structures en fonction de l'angle d'ouverture, de la vitesse et des tailles [?]. Concernant l'inclinaison des dendrites, seul un tableau regroupe les valeurs des paramètres ci-dessus et un graphique illustre la variation de  $\Theta$  en fonction de  $\Theta_0$ . Toutefois, en rassemblant les données de l'article (tableau 2 et figure 6), nous avons pu recomposer  $\Theta/\Theta_0(Pe)$  *a posteriori*. Nous traçons sur la figure ?? les points expérimentaux correspondant aux six ouvertures étudiées. Etant donnée la faible variation de  $\alpha$  pour  $\Theta_0 < 20^\circ$ , nous représentons une unique courbe  $[1 + \alpha(20)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenue pour le succinonitrile.

Les données tracés ne permettent pas de conclure quant au comportement en orientation des structures bien qu'il y ait de nombreuses ouvertures. Cependant, la tendance générale observée sur le succinonitrile est néanmoins satisfaite et appelle à mener de nouvelles expériences.

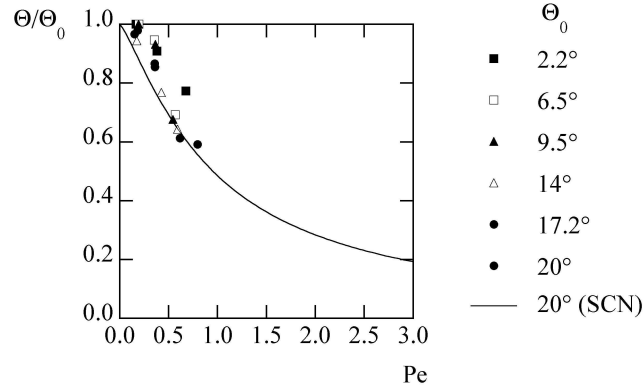


FIG. 4.8: Points expérimentaux extraits de l'étude menée par K. Nagashima pour le mélange eau-KCl. Nous représentons six ouvertures significatives. Les données sont obtenues à  $G = 17K.cm^{-1}$ . Elles sont insuffisantes pour conclure sur le comportement en orientation  $\Theta/\Theta_0(Pe)$ . Nous traçons comme repère visuel la courbe de la fonction  $[1 + \alpha(20)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenue pour le succinonitrile (SCN).

#### Méthodes et observations expérimentales

On se place à  $G = 18K.cm^{-1}$  pour des vitesses s'échelonnant de  $5$  à  $50\mu m.s^{-1}$  pour un mélange eau-glucose à  $0.5\%$  en masse. Lors de nos expériences, nous avons observé quelques morphologies similaires à celles observées dans les systèmes à croissance d'interface de cristaux liquides [?, ?, ?]. Nous décrivons ici succinctement les morphologies rencontrées pour l'eau :

- Figure ??a : croissance stationnaire en forme d'aiguilles à différents sous-refroidissements pour  $V_G = 10\mu m.s^{-1}$ .
- Figure ??b : réseau de structures inclinées à  $V_G = 10\mu m.s^{-1}$ , très effilées et dont les branchements croissent sur le flanc opposé à  $\mathbf{G}$ , contrairement à ce que nous avons observé jusqu'à présent. Certaines observations ont également permis de constater que le comportement en orientation de ces structures est inversé par rapport à celui décrit au chapitre 3 : lorsque  $V_G$  augmente,  $\Theta/\Theta_0$  augmente

également.



#### 4. Universalité de la réponse en orientation

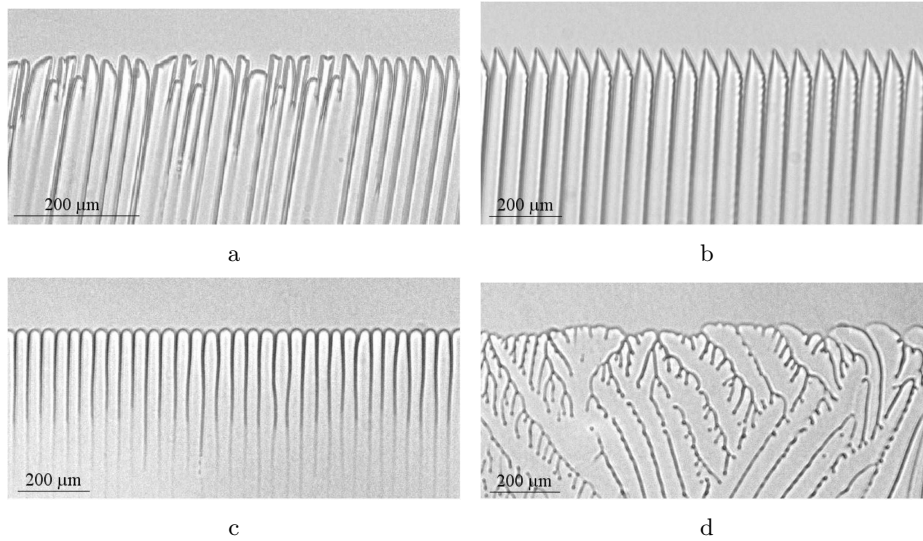


FIG. 4.9: Différentes morphologies obtenues lors de la solidification directionnelle du mélange eau-glucose. (a) Structures en aiguilles poussant à différents sous-refroidissements. (b) Dendrites inversées qui ont la propriété de s'incliner vers  $\mathbf{G}$  lorsque la vitesse et/ou la taille augmente. (c) Mode oscillant lorsque  $\mathbf{a}$  et  $\mathbf{G}$  sont alignés. (d) Mode dégénéré. Pour (a) et (b) l'axe [0001] du cristal n'est pas normal au plan de l'échantillon ce qui engendre l'apparition de facettes.

Outre ces morphologies exotiques, certaines autres sont similaires à celles obtenues avec les cristaux plastiques :

- Figure ??c : mode  $2\lambda - O$  pour des cellules symétriques à  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$ .
- Figure ??d : mode dégénéré.
- Figure ?? : réseaux de cellules et dendrites inclinées.

C'est dans cette dernière configuration que nous étudions deux ouvertures  $\Theta_0 = 11^\circ$  et  $\Theta_0 = 19^\circ$ , dont nous présentons, pour chacune, quatre images à des vitesses différentes sur la planche ??.

A la différence des dendrites de succinonitrile et d'acide pivalique, les structures observées ici, présentent peu de branchements et une pointe très arrondie. Les fronts exhibent essentiellement de petites cellules et dendrites de taille comprise entre  $45\mu m$  et  $118\mu m$ .

#### Orientation des structures

Les mesures sur les directions de croissance sont représentées en fonction du nombre de Péclet sur la figure ?? ainsi que les courbes  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenue pour le succinonitrile pour  $\Theta_0 = 11^\circ$  et  $\Theta_0 = 19^\circ$ . On y constate que les points expérimentaux pour la glace se regroupent sur la courbe du succinonitrile ce qui valide la loi de croissance (3.1) (3.2) pour l'eau dans la gamme d'ouverture étudiée.

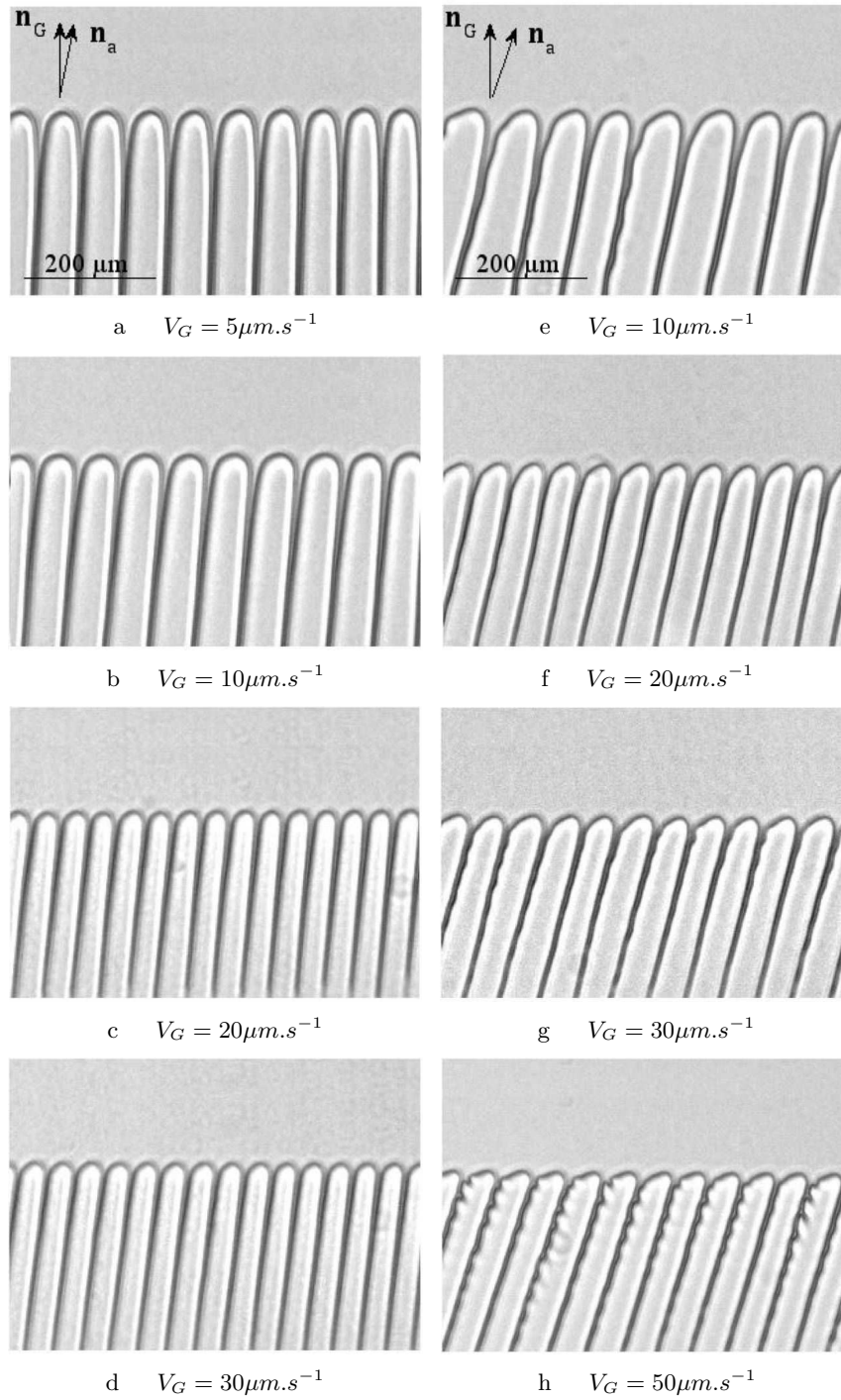


FIG. 4.10: Mélange eau-glucose à 0.5% en masse. Evolution de l'orientation des structures pour différentes ouvertures en fonction de la vitesse de poussée  $V_G$ . Série a,b,c,d :  $\Theta_0 = 11^\circ$ . Pour chaque vitesse, le front est cellulaire. Série e,f,g,h :  $\Theta_0 = 19^\circ$ . Pour chaque vitesse, le front est dendritique. On remarque le faible développement des branchements. On note la ressemblance avec les images obtenues avec l'alliage à base de succinonitrile (??).

#### 4. Universalité de la réponse en orientation

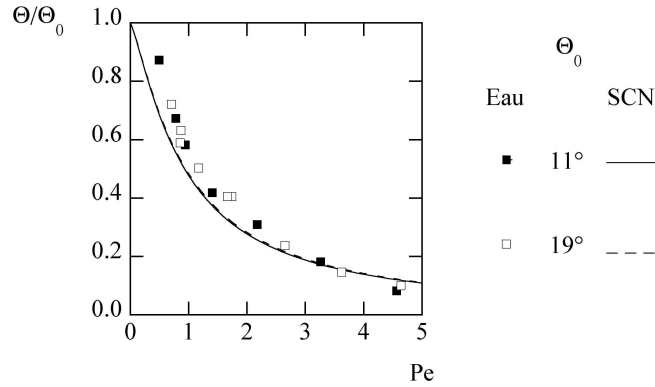


FIG. 4.11: Evolution de l'orientation des structures pour le mélange eau-glucose. Les deux courbes représentant la fonction  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenue pour le succinonitrile (SCN) pour  $\Theta_0 = 11^\circ$  et  $19^\circ$ . L'accord entre les points expérimentaux et la courbe est assez bon.

#### Conclusion

Bien que les symétries et les valeurs d'anisotropie de l'eau diffèrent notablement de celles du succinonitrile ou de l'acide pivalique, la réponse en orientation des structures du cristal est identique à celles des deux matériaux plastiques précédemment étudiés.

#### 4.2.3 Le tetrabromure de carbone

Afin de compléter les travaux sur les différents matériaux, nous nous intéressons à l'étude menée par S. Akamatsu et T. Ihle au cours de laquelle ils solidifient un mélange  $CBr_4 - C_2Cl_6$  [?].

La tension de surface du  $CBr_4$  vaut  $6.6 \times 10^{-7} J.cm^{-2}$ , son anisotropie capillaire vaut entre 0.4% et 0.8%, son coefficient cinétique  $\mu_0 = 220 \mu m.s^{-1} K^{-1}$  et son anisotropie cinétique 12% [?, ?]. Ainsi, bien que les symétries de ce matériau soient identiques à celles de l'acide pivalique et du succinonitrile, il en diffère par ses valeurs caractéristiques d'anisotropie.

Nous représentons sur la figure ?? les données du tableau 2 de [?] se rapportant à une étude numérique de T. Ihle pour une ouverture  $\Theta_0 = 30^\circ$ . Ces points sont en accord avec une étude expérimentale de S. Akamatsu à  $\Theta_0 = 32^\circ$ . Les données de la simulation numérique se regroupent sur la courbe obtenue avec le succinonitrile indiquant ainsi que le loi de croissance semble être valide pour le tetrabromure de carbone.

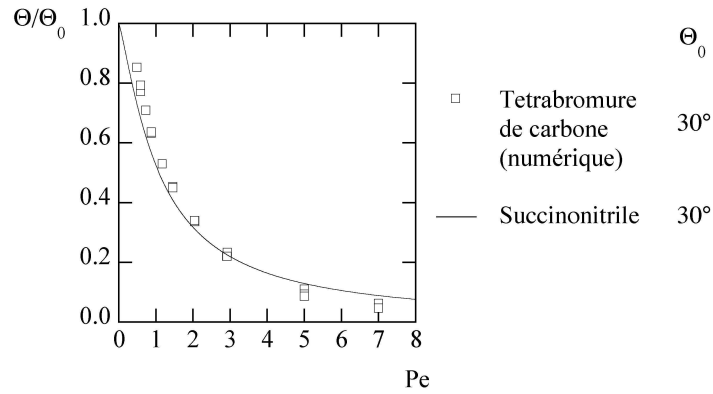


FIG. 4.12: Evolution de l'orientation des structures pour le  $CBr_4$  ( $\Theta_0 = 30^\circ$ ) et le succinonitrile ( $\Theta_0 = 30^\circ$ ).

#### 4.2.4 Comparaison finale

Nous rassemblons sur la figure ?? les points expérimentaux obtenus à  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  pour l'acide pivalique,  $\Theta_0 = 19^\circ$  pour l'eau,  $\Theta_0 = 30^\circ$  pour le tétrabromure de carbone et les deux courbes correspondantes  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  obtenues sur le succinonitrile. Par ailleurs, nous reportons dans le tableau ?? les caractéristiques de chaque matériau.

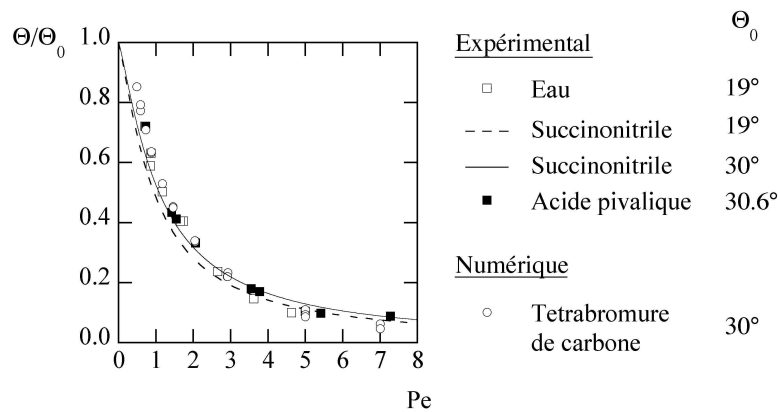


FIG. 4.13: Evolution de l'orientation des structures pour le succinonitrile ( $\Theta_0 = 30^\circ$ ), l'eau ( $\Theta_0 = 19^\circ$ ), l'acide pivalique ( $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ) et le  $CBr_4$  ( $\Theta_0 = 30^\circ$ ). Le regroupement des données est unique quel que soit le matériau.

#### 4. Universalité de la réponse en orientation

Matériaux	Tension de surface $\gamma_0$ ( $J.cm^{-2}$ )	Anisotropie capillaire $\epsilon_c$ (%)	Symétrie
Succinonitrile	$8.9 \times 10^{-7}$ [?]	0.5 [?, ?]	cubique centré
Acide pivalique	$2.8 \times 10^{-7}$ [?]	0.6 [?] 5 [?]	cubique face centrée
Eau	$2.8 \times 10^{-6}$ [?]	0.1 à 0.3 [?]	hexagonal
$CBr_4$	$6.6 \times 10^{-7}$ [?]	0.4 [?] 0.8 [?]	cubique face centrée

TAB. 4.2: Tableau récapitulatif des valeurs des tensions de surface liquide/solide et des coefficients d'anisotropie pour chaque matériau.

Bien que les quatre matériaux considérés soient différents par leurs structures (hexagonale pour l'eau et cubique pour les autres) et/ou par leur anisotropie (tableau ??), chacun obéit, pour les valeurs d'angle d'ouverture considérées ici, à une seule et même loi de croissance, celle décrite au chapitre 3 :  $\Theta/\Theta_0 = [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$ . Ainsi, pour des angles d'ouverture inférieurs à  $30^\circ$ , la variation de la direction de croissance des structures entre  $\mathbf{a}$  (direction microscopique) et  $\mathbf{G}$  (direction macroscopique) est indépendante du matériau et du gradient de température. Malgré cette étonnante similarité, il subsiste des différences de réponse entre les matériaux cubiques pour les angles d'ouverture proches de l'angle limite de  $45^\circ$  [?].

Etant donnée la diversité des mélanges et des concentrations en soluté utilisées dans l'ensemble des expériences, il semble que l'indépendance de la loi pourrait être étendue à la nature des solutés et à leurs concentrations.

### 4.3 Nouvelle description morphologique

Alors que la réponse en orientation des structures est identique à des ouvertures modérées pour les quatre matériaux considérés précédemment, on observe toutefois une différence entre leurs réponses lorsque l'ouverture se rapproche de l'angle critique  $45^\circ$  pour les matériaux cubiques. Afin d'élucider cela, nous définissons une nouvelle échelle morphologique de dendrite, indépendante de la longueur des branchements qui est soupçonnée être à l'origine de ces différences. En l'appliquant à chaque matériau, nous obtenons une nouvelle loi de croissance indépendante de l'ouverture  $\Theta_0$  et du matériau.

#### 4.3.1 Problématique

Les différences observées entre les matériaux surviennent pour des ouvertures importantes, lorsque les dendrites présentent des branchements extrêmement développés. Or ce développement qui diffère suivant le matériau joue sur la taille  $\Lambda$  des structures et donc sur leur nombre de Péclet  $Pe$ . Il pourrait ainsi être responsable des différences observées entre les réponses en orientation des structures. Dans ce cadre, le facteur  $\alpha(\Theta_0)$  dans (3.1) (3.2) peut s'interpréter comme une renormalisation de  $\Lambda$  à chaque  $\Theta_0$ . Celle-ci compense alors l'amplitude de  $\Lambda$  par  $\alpha(\Theta_0)^{4/5}$  de manière à ce que  $\alpha(\Theta_0)^{4/5}\Lambda$  soit constant pour  $\Theta/\Theta_0$  et  $V_G$  donnés (Fig. ??a,b). La taille  $\Lambda$  prise dans la définition de  $Pe$  semble ainsi surestimée. Nous recherchons alors une taille définie hors branchement commune à tous les matériaux.

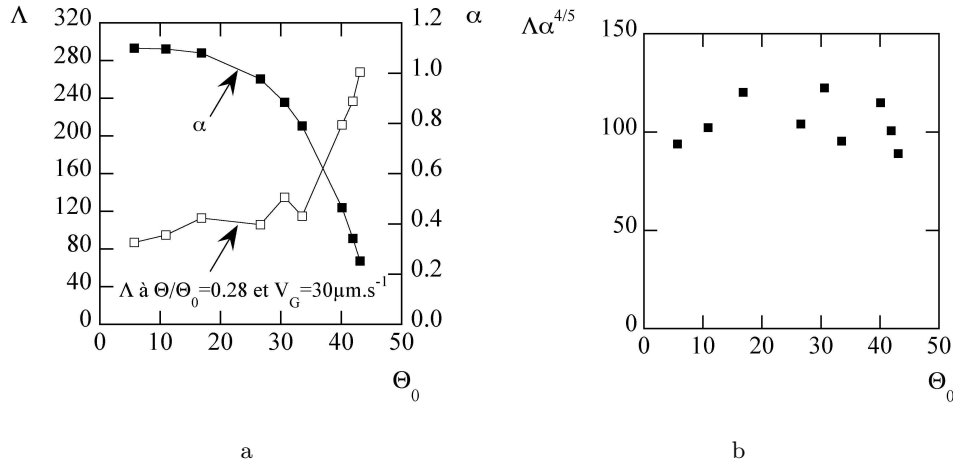


FIG. 4.14: Renormalisation de  $\Lambda$  par  $\alpha$ . (a) Lorsque  $\Theta/\Theta_0$  et  $V_G$  constant,  $\Lambda$  augmente fortement en fonction de  $\Theta_0$  alors que  $\alpha$  diminue vers 0. (b) Le produit  $\alpha(\Theta_0)^{4/5}\Lambda V_G$ , au regard des équations (3.1)(3.2), est alors constant.

### 4.3.2 Définition de $\tilde{\Lambda}$

Cette nouvelle taille doit s'appliquer à toutes les structures observées et se confondre avec la taille  $\Lambda$  pour les cellules ou les dendrites ne présentant pas de branchements joignant la ligne de front. Pour cela, nous définissons un algorithme géométrique que nous appliquons aux dendrites symétriques à  $\Theta_0 = 0^\circ$  puis aux dendrites inclinées à  $\Theta_0 \neq 0$ .

La nouvelle taille  $\tilde{\Lambda}/2$  est définie comme la distance entre la pointe d'une dendrite et le sillon adjacent. Celui-ci est donné par la bissectrice des enveloppes des flancs des dendrites (Fig. ??a,b). Sur une dendrite symétrique, cette définition est équivalente à celle de  $\Lambda$ . Dans le cas d'une dendrite asymétrique ( $\Theta_0 \neq 0$ ), la symétrie droite/gauche étant brisée, la taille  $\tilde{\Lambda}/2$  est mesurée du côté non branché de la pointe (Fig. ??b). La taille  $\tilde{\Lambda}$  est alors plus faible que  $\Lambda$ . L'algorithme géométrique pour construire  $\tilde{\Lambda}$  étend ainsi par continuité la définition de  $\Lambda$  au cas des dendrites inclinées de manière indépendante des branchements.

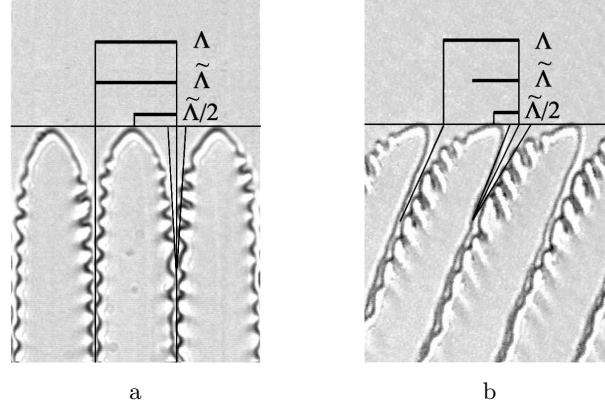


FIG. 4.15: Définition de  $\tilde{\Lambda}$  :  $\tilde{\Lambda}/2$  est la distance entre un sillon et la pointe de la structure. (a) Pour une dendrite symétrique. (b) Pour une dendrite inclinée, la définition est appliquée du côté du flanc non branché de la dendrite.

### 4.3.3 Loi de croissance

La figure ?? montre l'application de  $\tilde{\Lambda}$  à des structures très diverses représentant l'ensemble des matériaux. Avec cette nouvelle définition, le nombre de Péclet, désormais noté  $\tilde{Pe}$  permet d'identifier les réponses modifiées sur les figures ?? et ??. On constate que pour chaque matériau, les points expérimentaux se regroupent sur une unique courbe indépendamment de l'ouverture  $\Theta_0$  et du gradient de température. On utilise alors les données du succinonitrile afin de mener l'analyse utilisée au chapitre 3 pour déterminer la loi de croissance (3.1) (3.2). Cela aboutit à une loi similaire à la précédente pour laquelle  $b = 7/5$  à 0.1 près tandis que  $\alpha$ , a présent constant, vaut également  $7/5$  à 0.05 près :  $\Theta/\Theta_0 = [1 + (7/5)\tilde{Pe}^{7/5}]^{-1}$ . En traçant, *a posteriori*, cette fonction sur les figures ?? et ??, nous constatons que la loi est en bon accord avec les données expérimentales de chaque matériau.

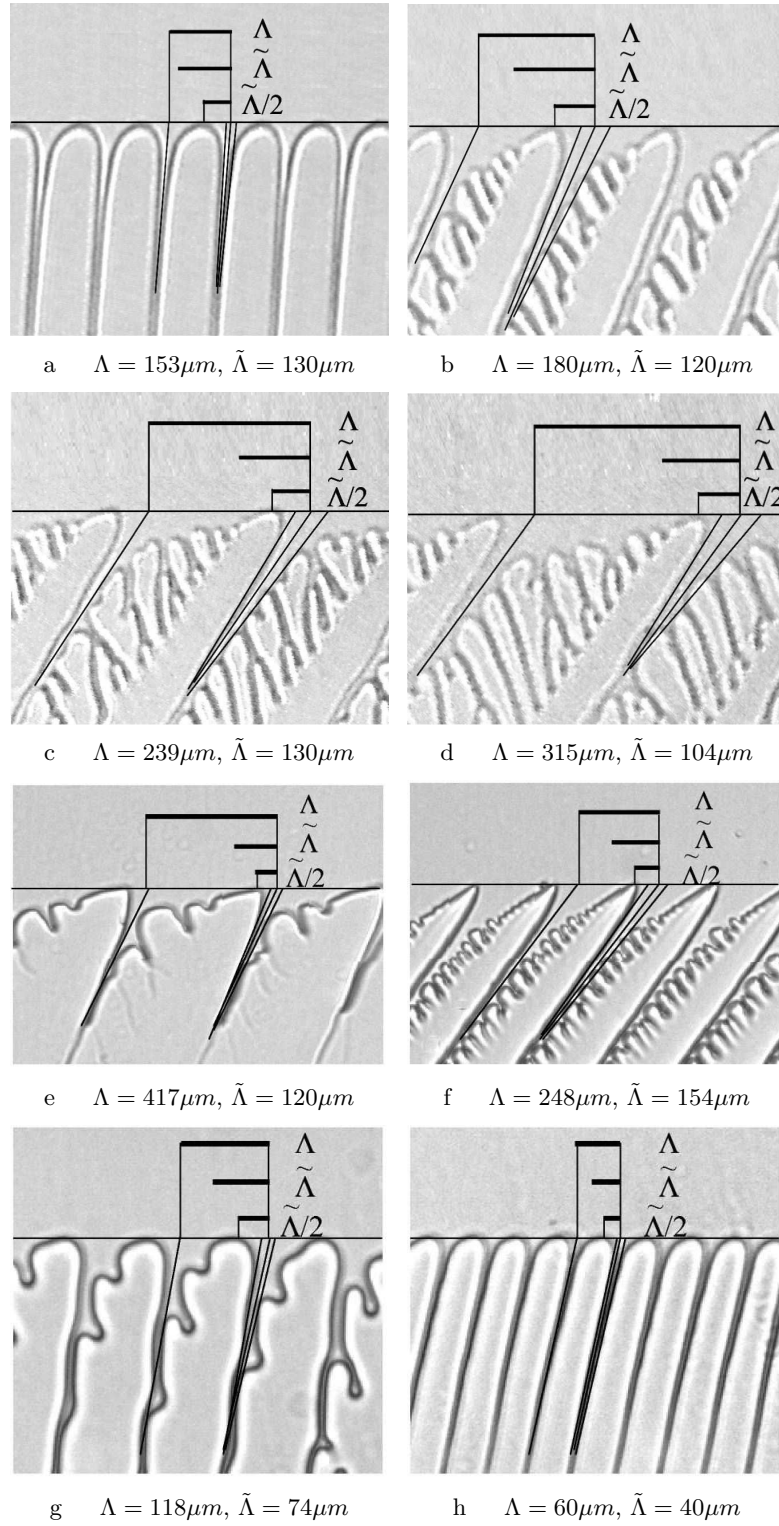


FIG. 4.16: Différentes dendrites sur lesquelles  $\tilde{\Lambda}$  est mesuré. Série a,b,c,d : Succinonitrile. Série e,f : Acide pivalique. Série g,h : Eau.



#### 4. Universalité de la réponse en orientation

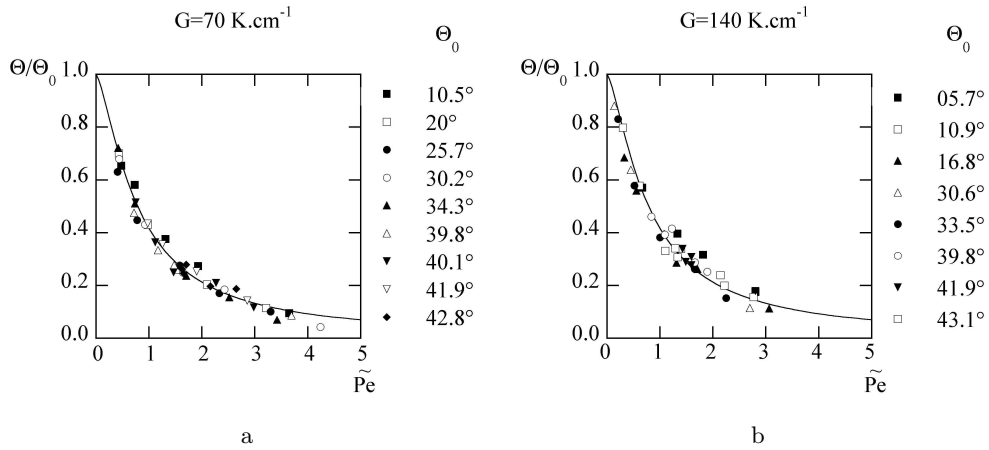


FIG. 4.17: Evolution de l'orientation des structures pour le succinonitrile. On utilise ici  $\tilde{\Lambda}$  dans le nombre de Péclet  $\tilde{Pe} = (\tilde{\Lambda}V_G)/D$ . (a)  $G = 70 \text{ K.cm}^{-1}$ . (b)  $G = 140 \text{ K.cm}^{-1}$ . Sur chacun des graphiques est tracée la fonction  $\Theta/\Theta_0 = [1 + 7/5 \tilde{Pe}^{7/5}]^{-1}$ .

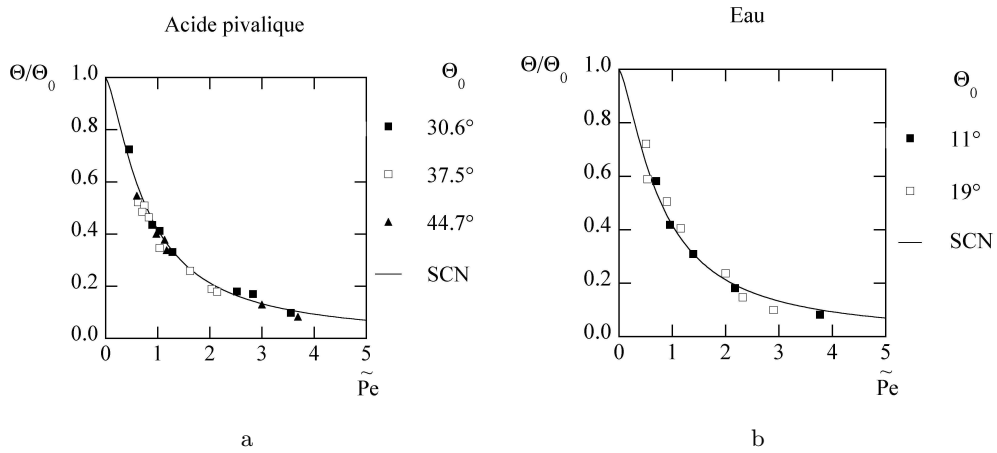


FIG. 4.18: Evolution de l'orientation des structures pour l'acide pivalique et l'eau en nombre de Péclet  $\tilde{Pe}$ . (a) Acide pivalique. Zoom pour  $\tilde{Pe} \in [0; 5]$ . (b) Eau. On trace sur chaque graphique la fonction  $\Theta/\Theta_0 = [1 + (7/5) \tilde{Pe}^{7/5}]^{-1}$  obtenue pour le succinonitrile (SCN).

#### 4.3.4 Conclusion

La loi de croissance (3.1) (3.2) a mis en lumière, par le biais de  $\alpha(\Theta_0)$ , la surestimation de la taille  $\Lambda$  des structures aux grandes ouvertures par rapport à celles observées à faibles ouvertures. Cette grande taille est due au long cortège de branchements que possèdent les dendrites fortement inclinées. Cette observation a conduit à donner une nouvelle définition de taille  $\tilde{\Lambda}$  des structures mesurée hors branchements. Le passage de  $\Lambda$  à  $\tilde{\Lambda}$  a abouti à une loi de croissance modifiée par son exposant et également par son coefficient  $\alpha$ , désormais constant. Non seulement, on obtient un regroupement des données pour chaque matériau, mais ce regroupement est le même quel que soit l'alliage considéré :

$$\frac{\Theta}{\Theta_0} = \left( 1 + \frac{7}{5} \tilde{Pe}^{7/5} \right)^{-1} \quad (4.1)$$

Afin d'illustrer cela, nous rassemblons sur la figure ?? les points expérimentaux relatifs au succinonitrile, à l'acide pivalique et à l'eau.

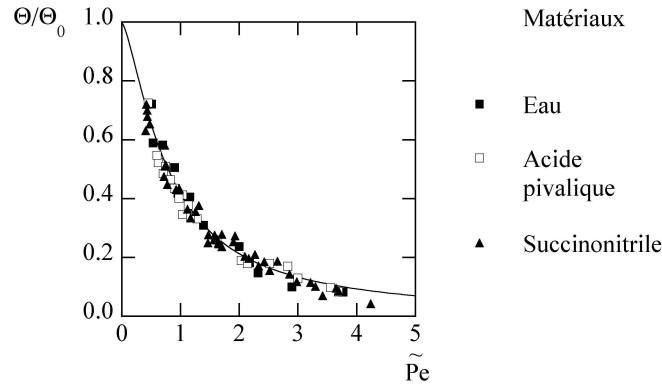


FIG. 4.19: Courbe regroupant les orientations des trois alliages pour toutes les ouvertures. On trace la fonction  $\Theta/\Theta_0 = [1 + (7/5)\tilde{Pe}^{7/5}]^{-1}$ . Tous les points expérimentaux se superposent sur cette courbe.

## 4.4 Directions de croissance des branchements

L'analyse menée jusqu'à présent a porté sur les directions de croissance des cellules et des dendrites. Or, à grande ouverture, les branches secondaires peuvent être considérées, en première approche, comme des structures de solidification propres. La question se pose alors de déterminer leur direction de croissance.

### 4.4.1 Condition d'étude

Nous détaillons ici certaines difficultés rencontrées lors de la mesure de la direction de croissance des branchements (Fig. ??) :

- La distribution de taille des branchements sur le flanc d'une dendrite est non-homogène, ce qui sort du cadre de l'étude précédente (le chapitre 6 montrera cependant que l'homogénéité en taille n'est pas nécessaire).
- Les branchements peu développés sur les flancs de la dendrite, de même que ceux ayant une trajectoire courbe, rendent impossible toute mesure de direction.
- La ligne joignant les pointes des branchements est légèrement en dessous de la ligne de front moyen, utilisée comme référence pour la mesure des directions de croissance des dendrites.

L'ensemble de ces difficultés implique que la mesure de la direction de croissance des branchements doit être effectuée sur des branchements très développés, ayant si possible des voisins de taille identique et dont la pointe est proche de la ligne de front (Fig. ??a).

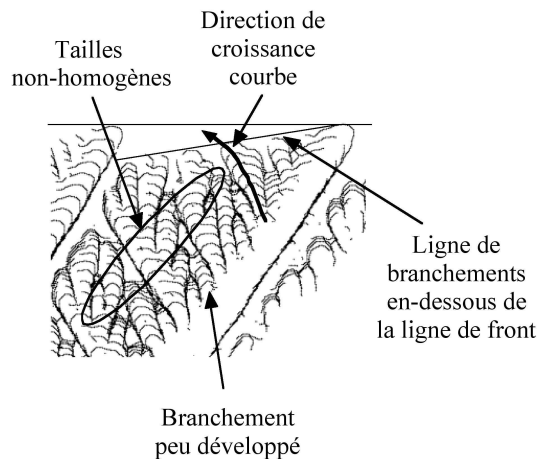


FIG. 4.20: Détail des branchements d'une dendrite de succinonitrile pour  $G = 70K.cm^{-1}$ ,  $\Theta_0 = 41.9^\circ$  et  $V_G = 21.2\mu m.s^{-1}$ . On remarque la complexité des branches qui comptent jusqu'à trois générations et dont la direction de croissance peut être difficilement accessible.

#### 4.4.2 Méthode de mesure

La direction des branchements est mesurée sur les diagrammes ?? présentant les trajectoires des dendrites. Les mesures s'effectuent majoritairement sur les branchements secondaires, mais également sur des branchements ternaires.

A  $G = 70K.cm^{-1}$ , nous sélectionnons les cinq ouvertures suivantes :  $34.3^\circ$ ,  $39.8^\circ$ ,  $40.1^\circ$ ,  $41.9^\circ$  et  $42.8^\circ$ . A  $G = 140K.cm^{-1}$ , ce sont les ouvertures  $30.6^\circ$ ,  $37.8^\circ$ ,  $39.7^\circ$  et  $43.1^\circ$  qui sont utilisées. Les tailles des branchements, notées  $\Lambda_g$ , sont mesurées perpendiculairement à leur vitesse de croissance  $V_g$ . Elles conduisent au nombre de Péclet  $Pe = (\Lambda_g V_g)/D$ .

Il faut par ailleurs noter que la direction d'anisotropie pertinente pour les branchements n'est pas identique à celle utilisée pour les dendrites. Elle correspond à la direction cristalline complémentaire  $[0\ 1\ 0]$  notée ici  $\bar{\mathbf{n}}_a$  (Fig. ??b). Cela conduit à considérer  $\bar{\Theta}_0 = (\bar{\mathbf{n}}_a, \mathbf{n}_G)$  pour l'ouverture associée aux branchements secondaires,  $\bar{\Theta}_0 = 90^\circ - \Theta_0$  (Fig. ??b). Pour les branchements ternaires, l'ouverture est à nouveau  $\Theta_0$ .

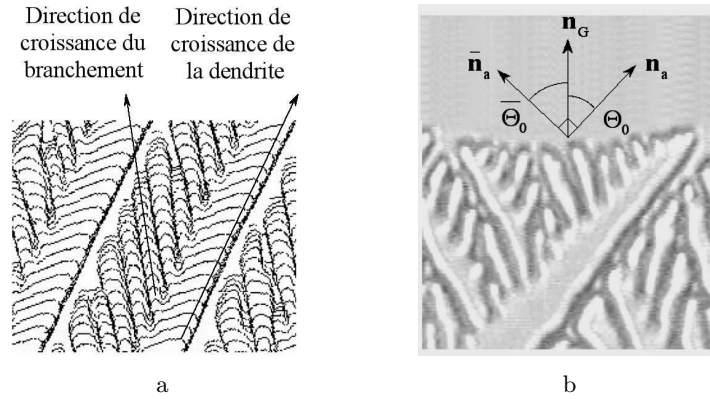


FIG. 4.21: Directions de croissance des branchements. (a) La direction de croissance des branchements est mesurée sur le diagramme des trajectoires comme pour les dendrites. (b) Changement d'ouverture : ici  $\bar{\Theta}_0$  pour les branchements secondaires.

#### 4.4.3 Direction de croissance des branchements

Nous représentons sur la figure ?? les orientations des branchements en fonction du nombre de Péclet pour chaque gradient thermique et chaque ouverture. Nous traçons également la courbe de la fonction  $[1 + 7/5Pe^{7/5}]^{-1}$  obtenue au paragraphe 4.3. Les points expérimentaux vérifient la tendance observée sur les dendrites et cellules et décrite au chapitre 3. En revanche, la précision absolue sur les tailles expérimentales, de l'ordre de  $5\mu m$  pour des longueurs de  $15\mu m$  à  $50\mu m$ , ne permet pas d'obtenir une réponse en orientation claire.

#### 4. Universalité de la réponse en orientation

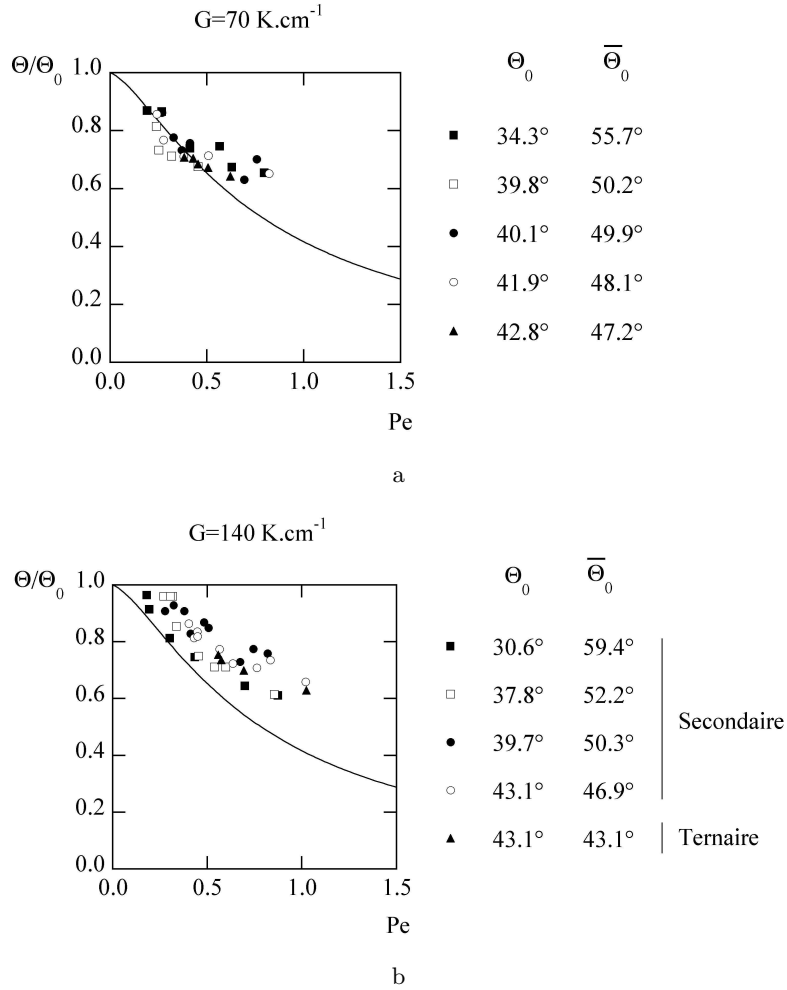


FIG. 4.22: Evolution de l'orientation des branchements des dendrites de succinonitrile. (a)  $G = 70 \text{ K.cm}^{-1}$ . (b)  $G = 140 \text{ K.cm}^{-1}$ . On trace sur chaque graphique la fonction  $[1 + 7/5Pe^{7/5}]^{-1}$ .

#### 4.4.4 Conclusion

Les branchements des dendrites, lorsqu'ils sont très développés, peuvent être considérés comme des structures de croissance propre pour lesquelles il est possible, dans une certaine mesure, de mesurer leurs directions de croissance, leurs tailles  $\Lambda$  et leurs vitesses  $V_G$ . En définissant l'ouverture  $\bar{\Theta}_0$  à considérer pour les branchements, nous avons comparé, en représentation  $\Theta/\Theta_0(Pe)$ , les directions de croissance des dendrites et celles des branchements. La tendance de la variation de l'orientation des branchements est alors identique à celle des dendrites.

## 4.5 Discussion

Dans ce chapitre, nous nous sommes interrogé sur le domaine de validité de la loi d'orientation (3.1) (3.2) obtenue pour le succinonitrile. Cela nous a conduit à analyser la dépendance en  $\Theta_0$  des différentes réponses en orientation obtenues et donc à considérer le rôle du facteur  $\alpha(\Theta_0)$  dans la loi (3.1) (3.2). Ceci a mis en évidence la surestimation de la taille caractéristique des structures à considérer pour rendre compte de la direction de croissance des cellules et dendrites. Ainsi, nous avons introduit une nouvelle taille  $\tilde{\Lambda}$  basée sur le corps même de la dendrite. Cette nouvelle taille utilisée dans le nombre de Péclet  $\tilde{Pe}$  a permis d'obtenir une loi de croissance (4.1) indépendante de  $\Theta_0$  et de la morphologie des structures, notamment du niveau de développement de leurs branchements.

Les lois (3.1) (3.2) et (4.1) se sont révélées insensibles aux variations de  $G$ . Ceci implique que seule la direction de  $G$  a une influence sur les directions de croissance des structures et que son intensité n'en a pas.

Nous avons ensuite testé la loi (4.1) pour d'autres matériaux que le succinonitrile. Changer de matériaux implique de nombreuses variations simultanées sur les grandeurs physiques caractéristiques de la croissance. Notamment, cela a pour conséquence une variation de diffusivité, de nature et de concentration de soluté ainsi que de tension de surface, de sous-refroidissement cinétique et de leurs anisotropies respectives. Bien que les valeurs (tableaux ?? et ??) de ces grandeurs soient assez différentes, la loi d'orientation (4.1) est restée valide sur les différents matériaux utilisés. Ceci conduit à l'alternative suivante :

- soit les valeurs des anisotropies sont erronées dans la littérature et elles seraient en fait très voisines. Cela constituerait une piste pour expliquer que toutes les courbes de réponse sont identiques mais soulevant en retour le problème de leur étrange proximité.
- soit la loi d'orientation (4.1) est indépendante de la variation des anisotropies. Cette dernière propriété rejoindrait alors la conclusion émise sur le rôle de  $\mathbf{G}$ . Nous avons vu que  $\mathbf{G}$  est une asymptote du problème et que son intensité n'a pas d'implication sur les directions de croissance des structures. Ainsi, la propriété analogue sur l'autre asymptote du problème conduirait à ce qu'une variation d'intensité de l'anisotropie cristalline cinétique ou superficielle, n'ait pas d'implication sur les directions de croissance.

En pratique, la diversité des alliages employés ainsi que leurs concentrations suggère également une indépendance de la loi vis-à-vis de la nature du soluté et de sa concentration.

La mise en évidence de cette loi universelle constitue un résultat notable puisqu'il permet *a priori* de déterminer l'orientation des structures de tout front rugueux de solidification homogène, en fonction de ses seules vitesse, taille et angle d'ouverture, indépendamment de la nature de l'alliage.



## Chapitre 5

# Instabilités

A l'issue de la déstabilisation primaire du front plan, l'interface se restabilise par effets non-linéaires en cellules et dendrites. Celles-ci sont à leur tour victimes d'instabilités secondaires de création et de disparition qui participent à l'organisation en réseau de tailles de structures plus ou moins régulières. Ces instabilités, qui bornent la gamme de stabilité des structures observables le long du front, jouent un rôle important en métallurgie car elles sont liées aux échelles de micro-ségrégation. Pour cette raison, nous caractérisons l'évolution de la gamme de stabilité des structures en fonction des paramètres de vitesse, de gradient thermique, mais également, ce qui constitue l'originalité de cette étude, en fonction de l'ouverture.

Par ailleurs, l'instabilité entraînant le mode dégénéré, d'une autre nature que les deux précédentes, constitue également une limite de la gamme d'existence des dendrites. C'est pourquoi, nous caractérisons la transition dendrite/mode dégénéré en fonction du nombre de Péclet et de l'angle d'ouverture.



## 5.1 Instabilités de création et de disparition

Dans le cas où  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{a}$  sont alignés, les instabilités de création et d'élimination ont fait l'objet de nombreuses études dont nous résumons ci-dessous les principaux résultats. Nous caractérisons ensuite l'effet d'une ouverture non nulle,  $\Theta_0 \neq 0$ , sur ces instabilités.

### 5.1.1 Historique

Les tailles des structures de solidification ont une répercussion importante sur les caractéristiques des métaux [?, ?, ?, ?, ?, ?]. C'est pourquoi un grand nombre d'études expérimentales et numériques leurs sont dédiées. On distingue, à travers la littérature, deux concepts dominants : les tailles moyennes des structures et les bandes de tailles stables.

Le premier concept, le plus abordé, alimente de nombreuses études théoriques et numériques développées notamment par J. D. Hunt [?], W. Kurz et D. J. Fisher [?], Trivedi [?] et Hunt et Lu [?, ?, ?]. Chacun de ces travaux vise à déterminer, de manière plus ou moins détaillée, la taille moyenne des structures de solidification en fonction des paramètres  $c_0$ ,  $V$  et  $G$ . Quant aux travaux expérimentaux, E. Cadirli *et al.* proposent un inventaire très riche des différentes expériences dédiées à ces relations pour de nombreux alliages organiques et métalliques [?, ?, ?].

Le second concept est moins abordé dans la littérature. Les travaux qui lui sont consacrés, consistent à déterminer les seuils supérieurs et inférieurs de stabilité des structures induits par les instabilités de disparition et création en fonction des mêmes paramètres et de la taille  $\lambda$  des structures. Les travaux expérimentaux de G. L. Ding *et al.* [?], H. Weidong *et al.* [?], A. Pocheau et M. Georgelin [?] recensent ces bornes en fonction de la vitesse de poussée pour des alliages à base de succinonitrile et re-interpretent la taille moyenne des structures par les domaines de stabilité en taille propre des cellules et dendrites [?].

Par ailleurs, R. N. Grugel *et al.* mesure l'évolution des tailles moyennes des structures en fonction de  $\Theta_0$  [?].

### 5.1.2 Description des instabilités

Dans ce paragraphe, nous décrivons les deux principales instabilités rencontrées lors des expériences : l'instabilité d'élimination et l'instabilité de création.

#### Elimination de structures

L'élimination d'une structure suit le processus suivant : lorsqu'une cellule se met en retrait par rapport à la ligne de front, elle évolue dans un milieu plus concentré en soluté et doit donc se solidifier à une température plus basse, ce qui a pour conséquence de la faire reculer davantage, jusqu'à ce qu'elle arrête complètement de croître. En pratique, cela est observé lorsque localement, sur le front, certaines structures sont plus étroites. Nous sommes en présence d'une mode similaire au mode d'Eckhaus à grande longueur d'onde qui est ici localisé à petite longueur d'onde. Nous représentons sur la figure ?? une séquence décrivant l'élimination d'une cellule. On assiste soit à des éliminations isolées, soit à des

éliminations de type  $2\lambda - S$  où une cellule sur deux disparaît [?]. L'observation de l'instabilité d'élimination permet de connaître la limite inférieure des tailles viables du système.

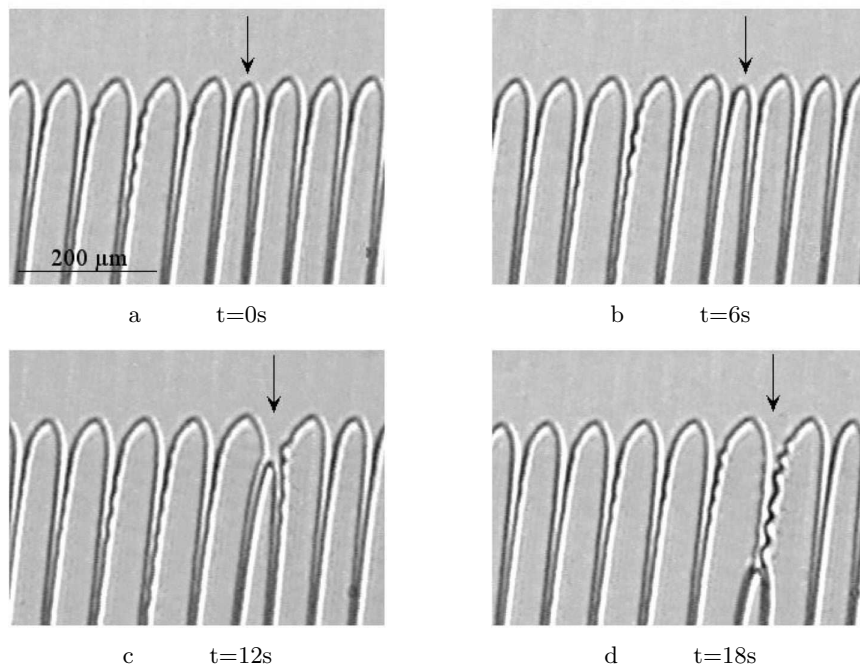


FIG. 5.1: Séquence d'élimination d'une cellule.  $\Theta_0 = 10.9^\circ$ ,  $G = 140K.cm^{-1}$ ,  $V_G = 29.5\mu m.s^{-1}$ . On pointe la structure qui disparaît.

### Création de structures

Le mécanisme de création intervient généralement lorsqu'une dendrite possède un long cortège de branchements. Ceux-ci sont suffisamment éloignés du champ de diffusion de la dendrite mère et peuvent rejoindre la ligne de front pour évoluer en structure cellulaire ou dendritique. L'initiation du phénomène peut avoir pour origine un branchement secondaire ou tertiaire comme lors de l'instabilité de queue [?]. Ce mode de création est très courant pour les structures inclinées notamment à grandes ouvertures, les dendrites présentant de nombreux branchements très développés. Il a été également observé, très rarement, des instabilités de type "tip-splitting" qui ne font pas ici l'objet d'une étude spécifique. L'étude des tailles des structures instables par création nous permet de connaître les tailles maximales accessibles par le système. Nous présentons en figure ?? une séquence décrivant la création d'une cellule via un branchement latéral d'une dendrite.

#### 5.1.3 Méthode de mesure des gammes de stabilité

Afin de caractériser l'évolution de la gamme de stabilité, nous traquons les instabilités décrites ci-dessus. Pour les déterminer, nous mesurons les tailles instables en provoquant les instabilités par une lente variation de vitesse. Celle-ci s'étale sur une échelle de temps bien supérieure au temps de diffusion  $D/V_G^2$  de

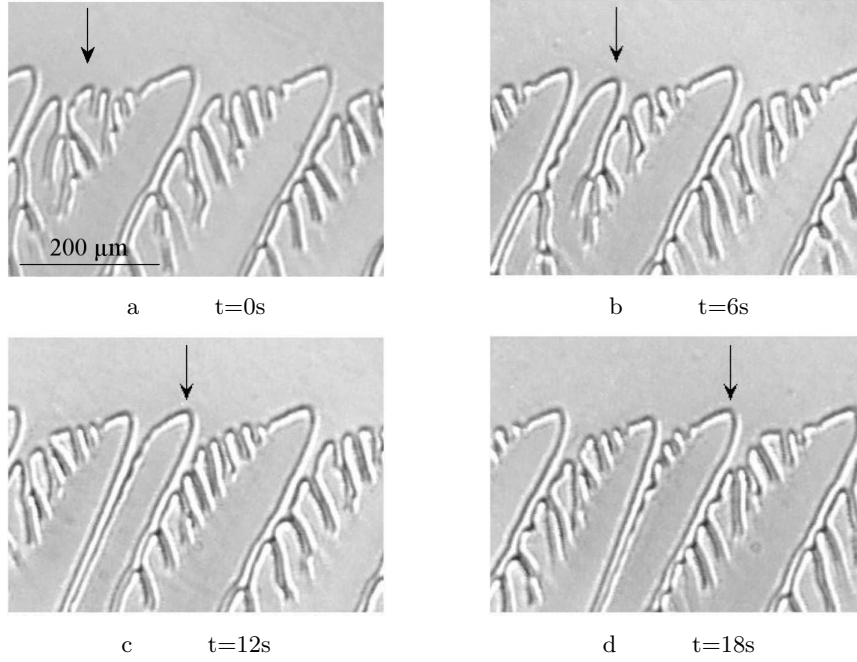


FIG. 5.2: Séquence de création d'une cellule par une instabilité de flanc.  $\Theta_0 = 30.2^\circ$ ,  $G = 70K.cm^{-1}$ ,  $V_G = 30.3\mu m.s^{-1}$ . On pointe le branchement qui donne naissance à la dendrite.

manière à ce que chaque état étudié soit quasi-stationnaire. Les expériences étant menées pour des vitesses supérieures à  $10\mu m.s^{-1}$ , les accélérations et décélérations sont de l'ordre de  $5$  à  $10\mu m.s^{-1}.h^{-1}$ .

Les seuils  $\Lambda_{max}$  (instabilités de création) et  $\Lambda_{min}$  (instabilités de disparition), sont chacun encadrés entre deux valeurs très proches, l'une stable, l'autre instable. Les tailles instables sont mesurées au moment du déclenchement de l'instabilité. Le seuil est ensuite donné par la moyenne de ces deux valeurs. Les tailles décrivant les instabilités sont les tailles  $\Lambda_g$  (Fig. ??) représentant la distance entre les axes des dendrites. Ce sont les tailles effectives des structures influant sur les caractéristiques du matériau solidifié. La vitesse utilisée ici est la vitesse de croissance  $V_g$  des structures. De manière pratique,  $\Lambda$  et  $V_G$  sont dans un premier temps déterminés puis transformés en  $\Lambda_g$  et  $V_g$  :  $\Lambda_g = \Lambda \cos(\Theta_0 - \Theta)$ ,  $V_g = V_G / \cos(\Theta_0 - \Theta)$ . Le calcul de  $\Theta$  s'effectue à l'aide des équations (3.1) et (3.2).

Nous détectons les instabilités pour cinq vitesses de poussée différentes, à savoir  $V = 10\mu m.s^{-1}$ ,  $15\mu m.s^{-1}$ ,  $20\mu m.s^{-1}$ ,  $30\mu m.s^{-1}$ ,  $40\mu m.s^{-1}$  et  $50\mu m.s^{-1}$ . Les mesures sont effectuées pour trois gradients de température de  $70K.cm^{-1}$ ,  $100K.cm^{-1}$  et  $140K.cm^{-1}$  et des ouvertures  $\Theta_0$  prenant les valeurs  $0^\circ$ ,  $10^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $35^\circ$  et  $41^\circ$ .

#### 5.1.4 Gammes de stabilité

Nous présentons en figure ?? les tailles critiques  $\Lambda_{max}$  et  $\Lambda_{min}$  en fonction des trois paramètres  $V_g$ ,  $G$  et  $\Theta_0$ . Nous décrivons ci-dessous les variations des deux

seuils pour chacun des paramètres.

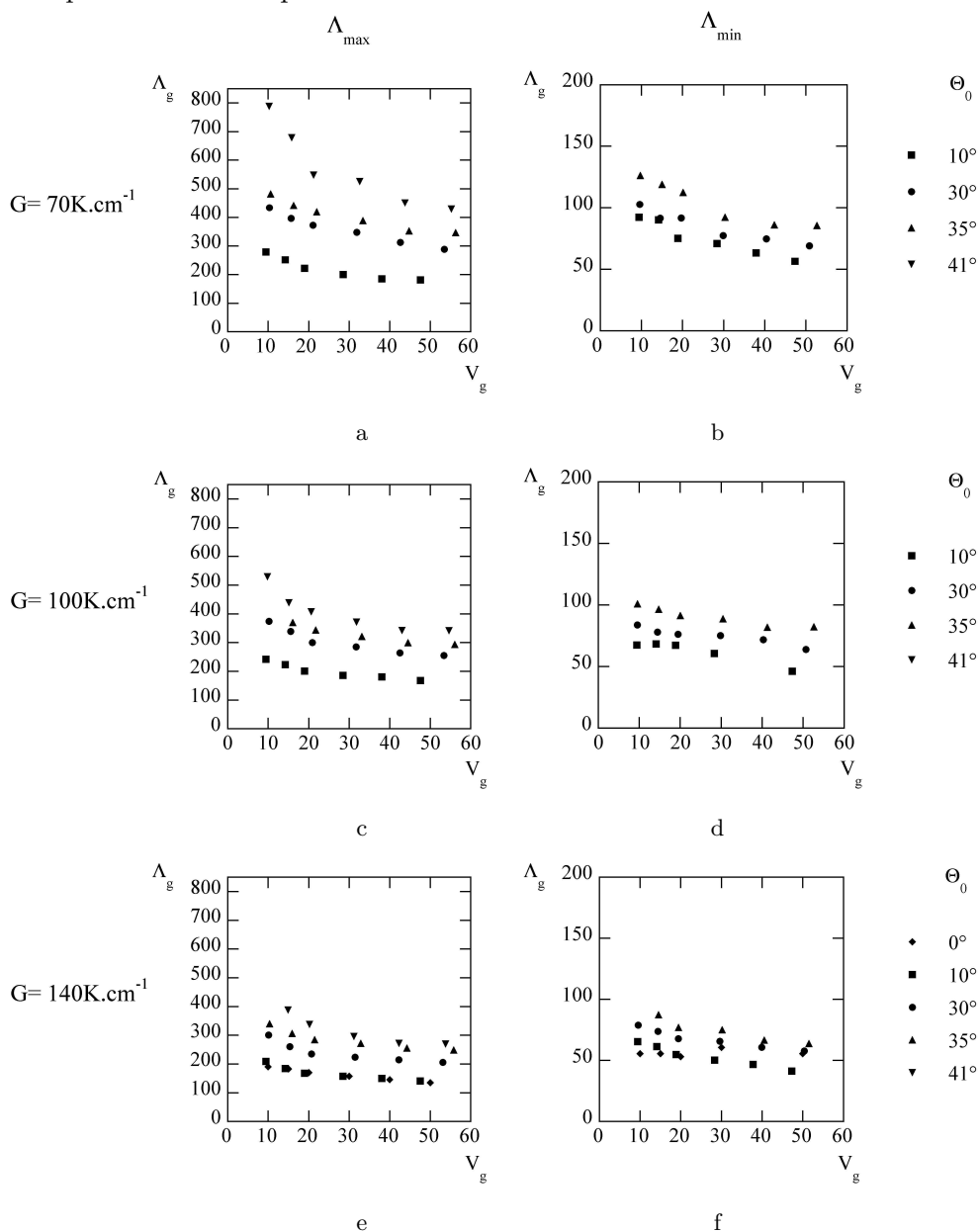


FIG. 5.3: Limites supérieures et inférieures de stabilité en fonction de la vitesse de croissance  $V_g$ . (a) et (b),  $G = 70 \text{ K.cm}^{-1}$  et  $\Theta_0 = 10^\circ; 30^\circ; 35^\circ; 41^\circ$ . (c) et (d),  $G = 100 \text{ K.cm}^{-1}$  et  $\Theta_0 = 10^\circ; 30^\circ; 35^\circ; 41^\circ$ . (e) et (f),  $G = 140 \text{ K.cm}^{-1}$  et  $\Theta_0 = 0^\circ; 10^\circ; 30^\circ; 35^\circ; 41^\circ$ . On note que pour  $\Theta_0 = 41^\circ$ , la limite inférieure de stabilité par élimination n'existe pas : c'est le mode dégénéré qui est alors observé.

### Variation en $V_g$

Les points expérimentaux sur la figure ?? se rassemblent sur des courbes monotones décroissantes en fonction de  $V_g$  et qui présentent des comportements

## 5. Instabilités

similaires. Il est à noter que la précision sur les points pour  $\Theta_0 = 41^\circ$  et  $G = 70 K.cm^{-1}$  n'est pas aussi grande que pour les autres mesures, étant donné la grande différence (de l'ordre de  $150\mu m$ ) entre les valeurs stables et instables permettant de calculer le seuil. A cette même ouverture, les instabilités d'éliminations n'ont pas été observées. C'est en effet le mode dégénéré qui déstabilise les dendrites les plus étroites et non le mode de disparition. Nous ne représentons pas les points expérimentaux correspondants sur les graphiques car la nature même de la transition dendrite/mode dégénéré est différente de celle de l'instabilité d'élimination. L'étude dédiée au mode dégénéré sera menée au paragraphe 5.2.

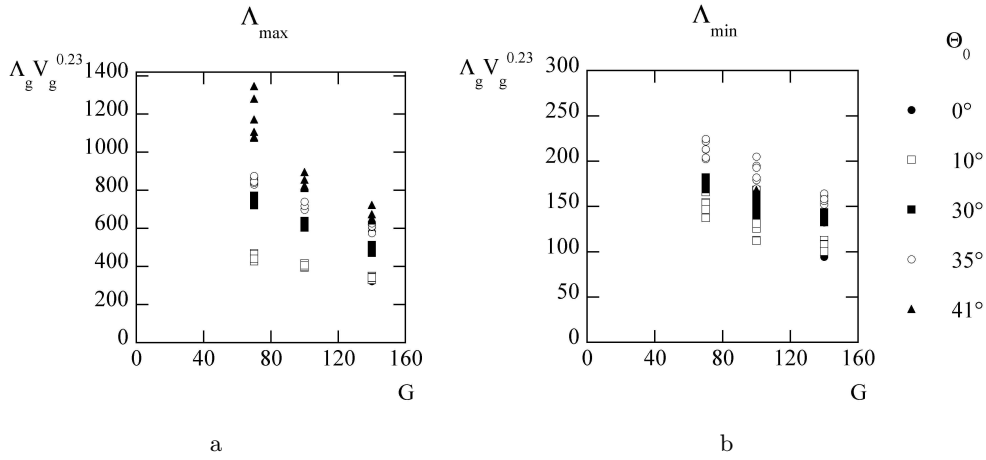


FIG. 5.4: Evolution de  $\Lambda_g V_g^{0.23}$  en fonction de  $G$ .

Pour synthétiser quantitativement l'évolution des seuils, nous considérons une loi d'ajustement en puissance de  $V_g$  et  $G$  :  $\Lambda_g = \Gamma(\Theta_0) V_g^c G^d$ . ceci conduit à  $c = -0.230 \pm 0.047$  pour  $\Lambda_{min}$  et à  $c = -0.229 \pm 0.045$  pour  $\Lambda_{max}$  que nous approchons par  $c = -0.23$ .

### Variation en $G$

La figure ?? présente l'évolution du produit  $\Lambda_g V_g^{0.23}$  avec  $G$  à divers  $\Theta_0$ . Les points se rassemblent à nouveau sur des courbes décroissantes monotones. L'ajustement de la loi de puissance  $\Lambda_g V_g^{0.23} = \Gamma(\Theta_0) G^d$  aux données expérimentales conduit pour chaque ouverture, à  $d = -0.47 \pm 0.09$  pour  $\Lambda_{min}$  et  $\Lambda_{max}$ , que nous approchons par  $d = -0.47$ .

### Variation en $\Theta_0$

La figure ?? présente l'évolution de  $\Lambda_g G^{0.47} V_g^{0.23}$  en fonction de  $\Theta_0$  pour  $\Lambda_{min}$  et  $\Lambda_{max}$ . Les points expérimentaux pour  $\Lambda_{max}$  et  $\Lambda_{min}$  se regroupent sur deux courbes distinctes qui présentent une augmentation avec  $\Theta_0$  et une dispersion qui croît avec  $\Theta_0$ , notamment pour  $\Lambda_{max}$ . Celle-ci correspond à l'écart de la loi d'ajustement à la réelle évolution des données. Les tendances observées sont alors claires : les tailles critiques augmentent avec  $\Theta_0$ .

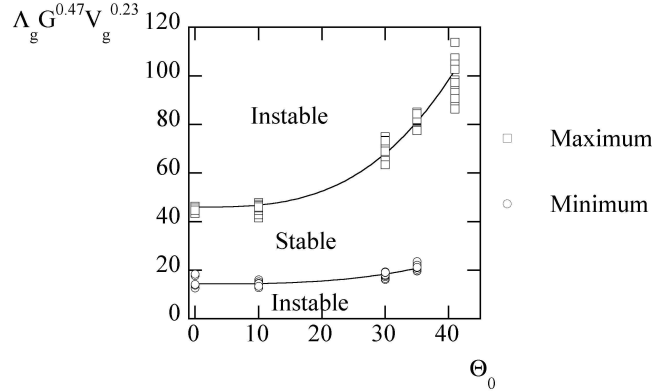


FIG. 5.5: Représentation des minima et maxima de stabilité en fonction de l'ouverture  $\Theta_0$ . On note une forte variation du maximum en fonction de l'ouverture, alors que le minimum augmente dans une moindre mesure. On trace par ailleurs les courbes interpolatrices :  $\Gamma_{max}(\Theta_0) = 45.95 + 8.17 \times 10^{-4} \Theta_0^3$  et  $\Gamma_{min}(\Theta_0) = 14.33 + 1.50 \times 10^{-4} \Theta_0^3$ .

### Discussion

Le fait que les limites de stabilité augmentent avec  $\Theta_0$  est en première approche contre intuitif : Les structures inclinées à grande ouverture possèdent de longs cortèges de branchements joignant la ligne de front. De ce fait, les dendrites seraient susceptibles de donner naissance à une nouvelle dendrite plus facilement que pour une dendrite symétrique ( $\Theta_0 = 0^\circ$ ) dont les branchements ne joignent pas la ligne de front. Une telle diminution des tailles critiques lorsque  $\Theta_0$  augmente, est observée par G. He dans les superalliages [?]. En revanche, R. N. Grugel aboutit au mêmes conclusions que sur la figure ?? pour l'évolution de la gamme de stabilité [?] : la gamme de dendrites stables augmentent avec  $\Theta_0$ .

En vue de l'utilisation des données de la figure ?? dans le chapitre 6, nous nommons  $\Gamma_{max}$  et  $\Gamma_{min}$  les fonctions d'interpolation des limites supérieure et inférieure de stabilité (Fig. ??) :  $\Lambda_{max} G^{0.47} V_g^{0.23} = \Gamma_{max}(\Theta_0)$ ,  $\Lambda_{min} G^{0.47} V_g^{0.23} = \Gamma_{min}(\Theta_0)$ . Nous obtenons :

$$\begin{aligned}\Gamma_{max}(\Theta_0) &= 45.95 + 8.17 \times 10^{-4} \Theta_0^3 \\ \Gamma_{min}(\Theta_0) &= 14.33 + 1.50 \times 10^{-4} \Theta_0^3\end{aligned}$$

### 5.1.5 Conclusion

Nous avons dressé le diagramme de stabilité des structures de solidification pour le succinonitrile en fonction de la vitesse, du gradient thermique et de l'angle d'ouverture en vue d'une utilisation dans le chapitre 6. Il est important de remarquer la forte augmentation de la largeur de la bande de stabilité avec  $\Theta_0$ , due à l'augmentation de la taille du cortège de branchements lorsque l'ouverture dépasse  $30^\circ$ .

Une des utilisations pratiques de l'évolution de la gamme de stabilité en fonction de  $\Theta_0$  pourrait être de contrôler, dans une certaine mesure, les tailles moyennes ou extrêmes et la largeur de la distribution en taille des structures en variant  $\Theta_0$  : une distribution de taille assez faible dans le solide résulterait, par exemple, de la croissance d'un mono-grain à  $\Theta_0 = 0^\circ$  alors qu'en approchant  $35^\circ$ , la distribution de tailles dans le solide serait significativement élargie.

## 5.2 Mode dégénéré

La transition morphologique dendrite/mode dégénéré est observable lorsque l'angle entre la direction de l'axe  $[1\ 0\ 0]$  du cristal et celle du gradient thermique est proche de  $45^\circ$  :  $\Theta_0 \approx 45^\circ$ . Nous décrivons ici cette transition ainsi que son évolution le long du front au cours du temps. Nous la caractérisons par le nombre de Péclet en-dessous duquel elle apparaît.

### 5.2.1 Définition

Nous remarquons que, pour des ouvertures importantes,  $\Theta_0 > 35^\circ$ , et à bas nombre de Péclet, le front dendritique se déstabilise en petites structures instationnaires se coupant de manière répétitive à la pointe : c'est le mode dégénéré (Fig. ??a). Les petites structures, y compris les branchements des dendrites, croissent alors dans une direction proche de celle de  $\mathbf{G}$  (Fig. ??b). Il n'y a donc plus une unique direction principale de croissance  $\mathbf{a}$  influençant leur direction de croissance, mais deux, dirigées de part et d'autre de  $\mathbf{G}$ . Cela entraîne les coupures de leurs pointes. La structure du mode dégénéré est sans cesse évolutive ce qui interdit toute mesure de taille et de direction de croissance.

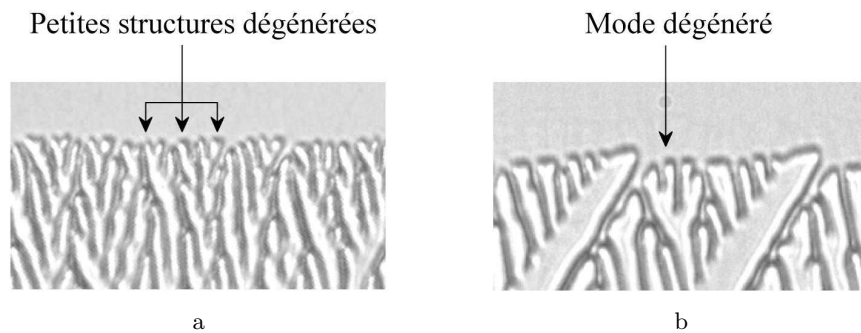


FIG. 5.6: Mode dit "dégénéré" qui intervient à bas nombre de Péclet et grande ouverture. (a) Le front se compose de petites structures qui se coupent à la pointe. Il est alors impossible de définir une taille et un angle de croissance. (b) On retrouve cette même structure dans les branchements des dendrites très inclinées.

### 5.2.2 Evolution du mode dégénéré

Nous décrivons ici les trois phases que traverse le mode dégénéré : la création, la propagation et la disparition.

#### Naissance du mode dégénéré

Pour des vitesses de poussée assez élevées, le mode dégénéré reste localisé dans les branchements des dendrites tandis que leur pointe reste stationnaire. En revanche, lorsque la vitesse diminue, certaines de ces branches croissent dans la direction opposée à celle des dendrites et interagissent avec leurs pointes. Cela conduit à une diminution de la taille de leur pointe. La direction de croissance de la dendrite se redresse alors en direction de  $\mathbf{G}$  et finalement, on observe la



coupure de sa pointe. La nucléation des germes de mode dégénéré est homogène. Sur la figure ??, nous présentons le détail de la naissance du mode dégénéré.

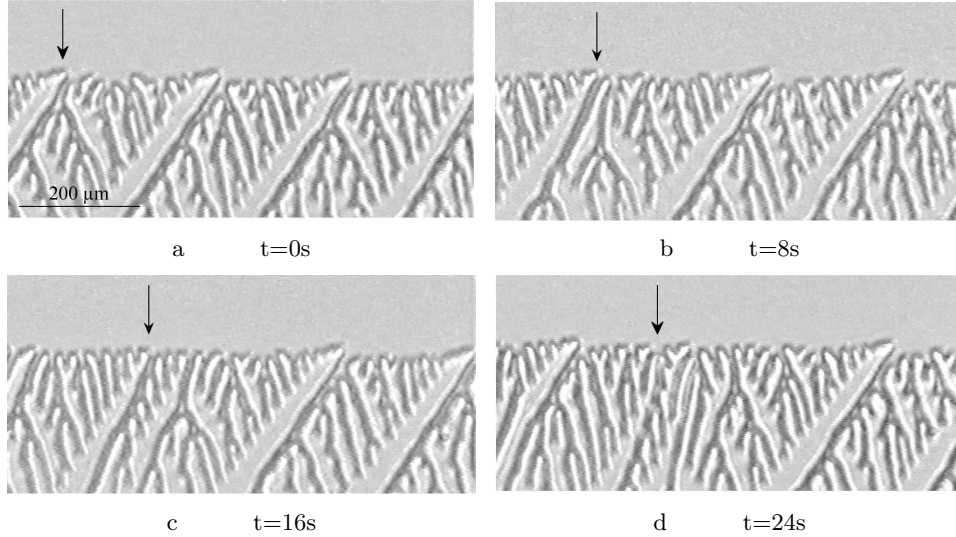


FIG. 5.7: Séquence présentant la naissance du mode dégénéré. On constate que la taille de la pointe de la dendrite considérée diminue et que sa direction de croissance se redresse. Une coupure de pointe survient alors et les deux cellules filles évoluent chacune selon une direction principale de croissance différente : une suivant **a**, l'autre selon son perpendiculaire.  $V_G = 35\mu m.s^{-1}$  et  $\Theta_0 = 43.1^\circ$ .

### Propagation du mode dégénéré

La déstabilisation des dendrites par le mode dégénéré ne s'opère pas simultanément sur chaque dendrite mais de manière sporadique le long du front. Chaque domaine de mode dégénéré créé s'étend alors par croissance de ses frontières.

Pour la suite, il est utile de définir l'amont d'une dendrite comme la partie du front vers laquelle dérive la dendrite et l'aval comme la partie du front déjà traversée par la dendrite. On distingue ainsi la propagation de la frontière amont et de la propagation de la frontière aval dans le référentiel lié à la matière.

Les dendrites rencontrant le mode dégénéré par leur frontière aval se déstabilisent par le même mécanisme que lors de la création décrite ci-dessus. La frontière aval du mode dégénéré est quasi-stationnaire comme présentée sur la figure ??.

Sur la frontière amont, le mode dégénéré est attaché au cortège de branchement de la dendrite qui la précède. Ainsi, la propagation de la frontière amont s'effectue à la même vitesse que cette dendrite. Nous représentons sur la figure ?? ce type de propagation du mode dégénéré.

Par ces deux mécanismes, le mode dégénéré envahit la totalité du front. Cela est schématisé sur la figure ?? qui rend compte de l'évolution temporelle du mode dégénéré dans un échantillon où naissent trois germes de mode dégénéré.

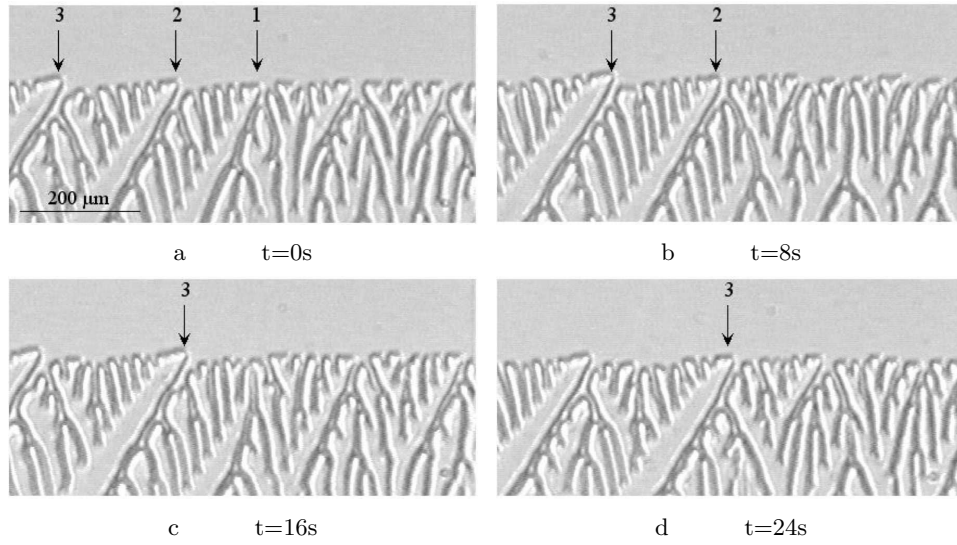


FIG. 5.8: Séquence présentant la propagation de la frontière aval du mode dégénéré. Les dendrites 1 et 2 se déstabilisent successivement à son contact.  $V_G = 24\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $\Theta_0 = 43.1^\circ$ .

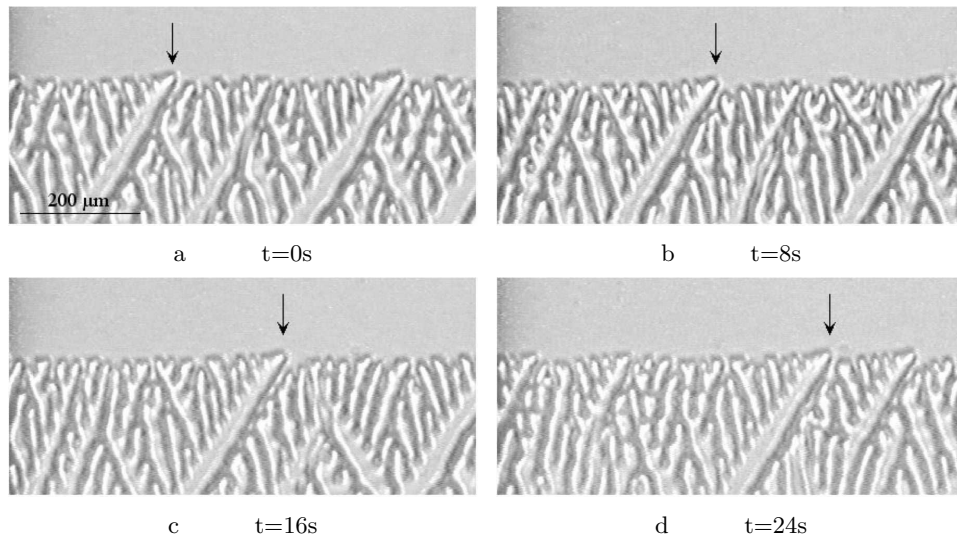


FIG. 5.9: Séquence présentant la propagation de la frontière amont du mode dégénéré. Le cortège de branchement emmené par la dendrite se déstabilise en mode dégénéré. Ainsi, le mode dégénéré se propage à la même vitesse que la dendrite.  $V_G = 24\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $\Theta_0 = 43.1^\circ$ .

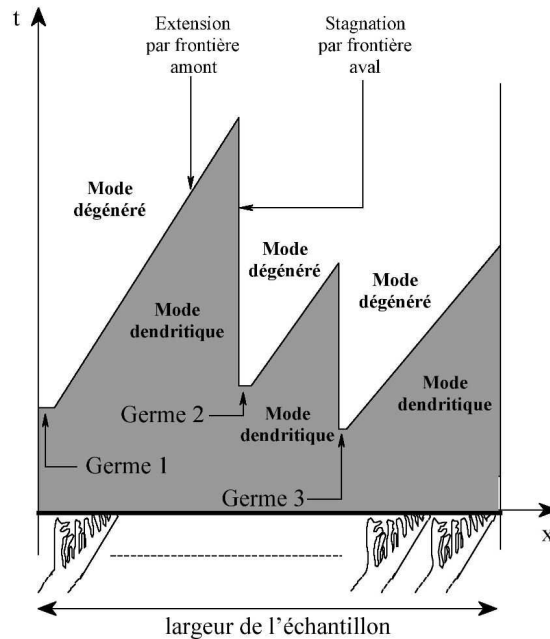


FIG. 5.10: Evolution au cours du temps du mode dégénéré sur la largeur d'un échantillon. On note par 1,2,3 les germes de mode dégénéré qui naissent de manière homogène le long du front et qui se propagent dans les deux directions. Le mode dégénéré fini par envahir totalement le front.

### Disparition

Lorsque le mode dégénéré a envahi l'ensemble du front et qu'on augmente la vitesse de poussée, quelques petites structures le composant parviennent à croître sans subir d'instabilités de coupure de pointe. Leur taille augmente, elles s'inclinent et finissent par former de nouvelles dendrites. Nous représentons sur la figure ?? une séquence de disparition du mode dégénéré.

#### 5.2.3 Mesure de la transition dendrite/mode dégénéré

Afin de détecter précisément l'apparition du mode dégénéré, nous nous plaçons à  $\Theta_0$  fixé. Nous poussons l'échantillon à haute vitesse afin d'obtenir un front totalement dendritique, puis nous diminuons  $V$  suffisamment lentement pour ne pas entraîner d'instabilités autres que celle de la transition au mode dégénéré. A chaque saut de vitesse, nous attendons un temps très supérieur à  $D/V_G^2$  afin d'obtenir des structures stationnaires. On réitère l'expérience en diminuant la vitesse jusqu'à ce que le front soit entièrement dégénéré. Les dernières dendrites stables dont la taille est  $\Lambda_l$ , définissent la transition.

La transition s'opère en fonction de deux variables : la vitesse  $V_G$  et la taille des dendrites  $\Lambda_l$ . Nous construisons le nombre de Péclet limite  $Pe_l = (\Lambda_l V_G)/D$  en dessous duquel les dendrites sont entièrement déstabilisées. Sur la figure ??a nous représentons le nombre de Péclet limite en fonction de l'ouverture pour les deux gradients de température utilisés  $G = 70K.cm^{-1}$  et  $G = 140K.cm^{-1}$ .

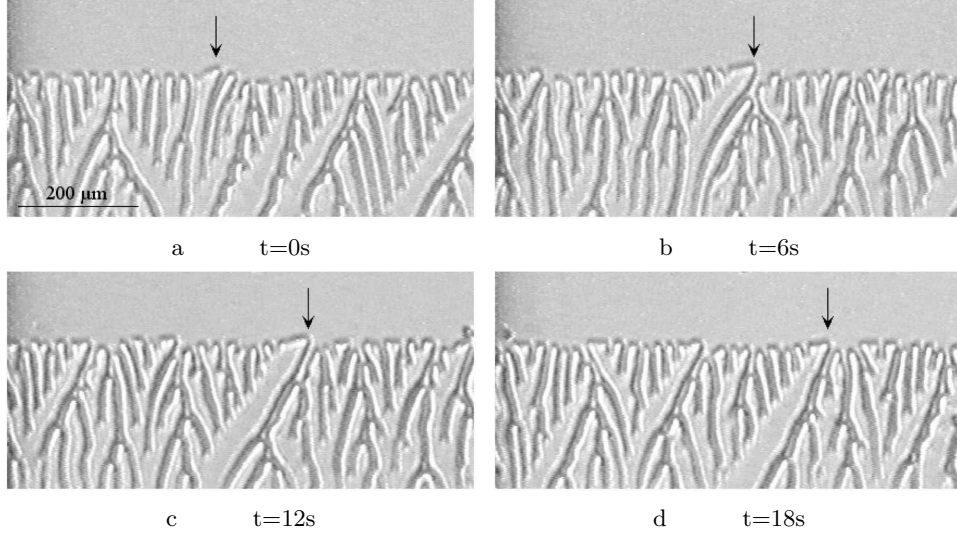


FIG. 5.11: Séquence qui représente la disparition du mode dégénéré. Une petite structure devient suffisamment grande pour émerger du mode dégénéré, se transformer en dendrite et rester pérenne.

On trace également le même diagramme en utilisant  $\tilde{\Lambda}_l$ , la taille définie hors branchement et introduite au chapitre 4, dans le nombre de Péclet sur la figure ??b. Sur les deux graphiques, les données expérimentales s'accumulent sur une courbe croissante  $Pe_l(\Theta_0)$  et  $\tilde{Pe}_l(\Theta_0)$  séparant les deux modes observés sur le diagramme de stabilité. On s'attend à ce que le seuil diverge à  $\Theta_0 = 45^\circ$  sur la figure ??a puisque une dendrite est alors susceptible de posséder un sillage infini de mode dégénéré. En revanche, sur la figure ??b, le fait d'utiliser la taille  $\tilde{\Lambda}$  qui est indépendante du nombre de branchements, doit faire saturer le nombre de Péclet limite  $\tilde{Pe}_l$  pour  $\Theta_0$  tendant vers  $45^\circ$ . On constate par ailleurs que cette frontière est indépendante du gradient thermique  $G$ .

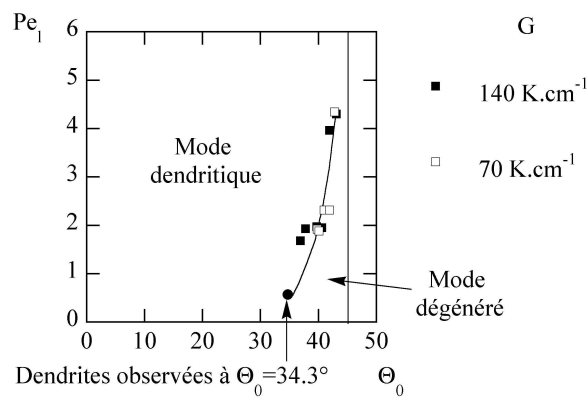
Il est à noter que pour les vitesses utilisées, le mode dégénéré n'est pas observé pour l'ouverture  $\Theta_0 = 34.3^\circ$ . En revanche, il est présent à  $\Theta_0 = 36.9^\circ$  ce qui implique que l'apparition du mode dégénéré a vraisemblablement lieu entre ces deux valeurs de l'ouverture. Cela est en bon accord avec les travaux numériques de T. Ihle rapportant que cet angle limite vaut  $\Theta_0 = 36^\circ$  pour le tétrabromure de carbone [?].

#### 5.2.4 Conclusion

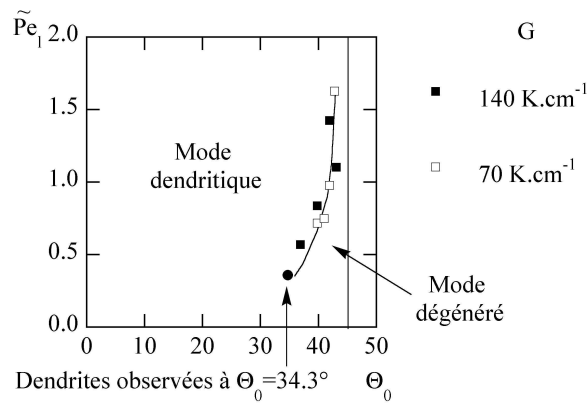
Nous avons déterminé la limite de stabilité des dendrites vis-à-vis du mode dégénéré. Pour cela, nous avons caractérisé son évolution le long du front de croissance et repéré son apparition en fonction de la vitesse normale au front  $V_G$  et de la taille limite  $\Lambda_l$  des structures stables. Il est alors apparu que le mode dégénéré ne peut survenir, pour notre alliage de succinonitrile, qu'au-delà d'un angle d'ouverture compris entre  $\Theta_0 = 34.3^\circ$  et  $\Theta_0 = 36.8^\circ$ . Ceci est en accord avec les simulations numériques de T. Ihle pour lesquelles cet angle vaut  $\Theta_0 = 36^\circ$

## 5. Instabilités

[?]. Au-delà de cet angle, le seuil d'apparition du mode dégénéré, mis sous forme de nombre de Péclet limite  $Pe_l = \Lambda_l V_G / D$ , augmente fortement lorsque l'angle d'ouverture tend vers l'angle limite  $45^\circ$ .



a



b

FIG. 5.12: Diagrammes de stabilité pour  $G = 140 \text{ K.cm}^{-1}$  et  $G = 70 \text{ K.cm}^{-1}$ . (a) On utilise  $\Lambda_l$  et  $V_G$  pour former  $Pe_l$ . (b) On utilise  $\tilde{\Lambda}_l$  et  $V_G$  pour former  $\tilde{Pe}_l$ . Les lignes sur les diagrammes sont des guides visuels.

### 5.3 Conclusion sur les instabilités

La gamme de stabilité des cellules et dendrites est bornée par trois instabilités : instabilité de création, d'élimination et de mode dégénéré. Les deux premières sont largement traitées dans la littérature pour  $\Theta_0 = 0^\circ$  alors que la troisième, se manifestant pour  $\Theta_0$  proche de  $45^\circ$ , ne l'est pas. De même, l'évolution de ces instabilités avec  $\Theta_0$  restait à déterminer. Nous l'avons étudié ici aboutissant ainsi aux diagrammes de stabilité correspondants.

Nous avons caractérisé les bornes de la gamme de stabilité des instabilités de création et disparition en fonction de  $\Theta_0$  par des regroupements heuristiques successifs des variables  $G$  et  $V_g$  en loi de puissance :  $\Lambda_{max,min} \propto \Gamma(\Theta_0) V_g^{-0.23} G^{-0.47}$ . La largeur des gammes de stabilité s'est avérée augmenter avec  $\Theta_0$ . Ces diagrammes seront utilisés dans le chapitre 6 sur des fronts inhomogènes.

La transition au mode dégénéré n'apparaît que lorsque  $\Theta_0 \gtrsim 36^\circ$ . Ce mode fixe alors la limite inférieure de stabilité des dendrites en supplantant l'instabilité d'élimination. Cette limite a été caractérisée par le nombre de Péclet limite en-dessous duquel le front est entièrement déstabilisé. Elle s'est révélée augmenter rapidement avec  $\Theta_0$  entre  $36^\circ$  et  $45^\circ$ .

Ces différents diagrammes de stabilité peuvent en principe permettre de contrôler la morphologie de l'interface et donc la ségrégation de soluté piégé dans le solide. Il est notamment ainsi envisageable de faire croître, selon les paramètres de vitesse, de gradient thermique et d'ouverture, soit un front en mode dégénéré, soit des fronts possédant de plus ou moins grandes distributions de tailles de dendrites.



## Chapitre 6

# Configurations inhomogènes

Nous avons abouti aux chapitres 3 et 4 à des résultats universels sur l'orientation des structures dans des configurations homogènes. Le présent chapitre a pour but d'étudier l'extension de ces résultats à des configurations hétérogènes où les paramètres de contrôle sont spatialement non-uniformes. Pour cela, nous appliquerons sur chaque état inhomogène une hypothèse dite "locale" selon laquelle les directions de croissance des structures sont données par les lois des états homogènes : le comportement local ne dépend que des valeurs locales des paramètres et non de leurs gradients (gradients de  $\Lambda$ , de  $G$ , de  $\Theta_0$ ).

Nous abordons ainsi la question de l'orientation des structures pour des fronts soit composés de dendrites de tailles variables, soit courbés ou encore placés dans un gradient de température non-constant. Chaque modulation de taille, de gradient de température ou d'ouverture est envisagée à grande échelle. Ces expériences se rapprochent des conditions industrielles de solidification de lingot métallique ou bien de creuset pour lesquels le front de solidification présente une courbure ou des variations de l'orientation cristalline et de l'intensité du gradient de température. Nous conservons cependant une géométrie bidimensionnelle qui permet de nous affranchir des effets de convection.

Le chapitre est composé de trois parties se rapportant chacune à l'étude d'une configuration particulière. Ainsi, nous étudions successivement des fronts rectilignes composés de dendrites de tailles variables, des fronts faiblement courbés et des fronts le long desquels le gradient de température varie. Les deux premières parties ont trait à la cinématique des structures alors que la dernière est axée sur les instabilités secondaires.



## 6.1 Réseau de dendrites de tailles variables

Notre objectif est de tester et de préciser l'hypothèse "locale" en étudiant l'évolution de dendrites de tailles variables le long d'un front rectiligne. Cette hypothèse consiste à considérer un front inhomogène comme un front homogène localement. Cela est justifié dans nos expériences car leur nombre de Péclet est suffisamment grand,  $Pe > 1$ , pour que les dendrites aient peu d'interactions diffusives. Pour tester cette hypothèse, nous suivons expérimentalement la cinématique des structures inhomogènes en taille le long du front. Nous la comparons ensuite à la cinématique reconstruite par simulation numérique basée sur l'hypothèse locale et la loi de croissance du chapitre 3.

### 6.1.1 Dispositif expérimental

Afin d'obtenir un réseau de tailles variables, nous utilisons le même dispositif expérimental que précédemment en y ajoutant un échantillon contenant un fil électrique (cf. chapitre 2) de manière à perturber localement le front. Pour cela, nous délivrons des impulsions de puissance dans le fil via un générateur de fonction Agilent 33120A. Ainsi, le front fond localement dans l'environnement immédiat du fil (Fig. ??). Les impulsions délivrées ont alors pour effet d'entraîner la création de structure par instabilité conduisant une dendrite à se transformer en deux dendrites. Les tailles moyennes des dendrites sont ainsi diminuées localement. On arrête alors le signal tandis que la perturbation dérive le long du front du fait de l'inclinaison des structures. On attend un temps suffisamment long pour que la zone perturbée s'éloigne du fil avant de commencer l'enregistrement d'une séquence. La diffusion de phase étant pratiquement nulle, le front ne subit pas d'homogénéisation le long du front durant cette durée.

Nous utilisons ici une unique orientation  $\Theta_0 = 25.2^\circ$  pour une seule vitesse  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$ . La direction du gradient de température est constante et son intensité vaut  $140K.cm^{-1}$ .

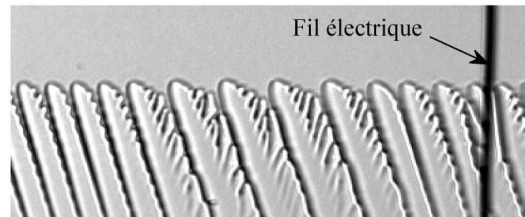


FIG. 6.1: Dendrites inclinées et fil électrique sans signal. Le front est alors peu perturbé par le fil.

### 6.1.2 Cinématique de sillon

Afin de valider l'hypothèse locale, nous considérons un diagramme spatio-temporel de trajectoires de dendrites de tailles inhomogènes. Pour une dizaine de dendrites, nous mesurons les distances pointes à pointes à leur voisines amont et aval ainsi que leur angle de croissance  $\Theta$  (Fig. ??). Comme les distances pointes à pointes amont et aval diffèrent, il en résulte une ambiguïté quant à la distance

$\Lambda$  à considérer pour appliquer la loi  $\Theta/\Theta_0(Pe)$ . Pour la lever, nous calculons les deux angles correspondant à une mesure de  $\Lambda$  aval et amont vis-à-vis de la pointe de la dendrite considéré et nous la comparons à l'angle de croissance mesuré (Fig ??).

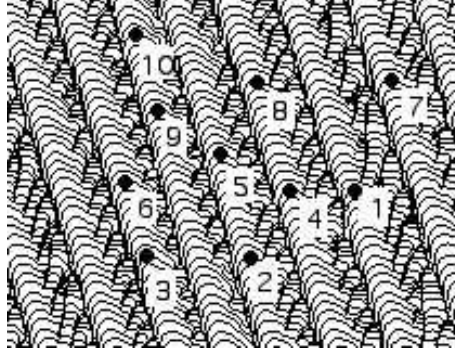


FIG. 6.2: Trajectoires de dendrites de tailles différentes. Les dix points représentent les lieux où on mesure  $\Theta$  ainsi que les tailles  $\Lambda$  en amont et en aval des dendrites.

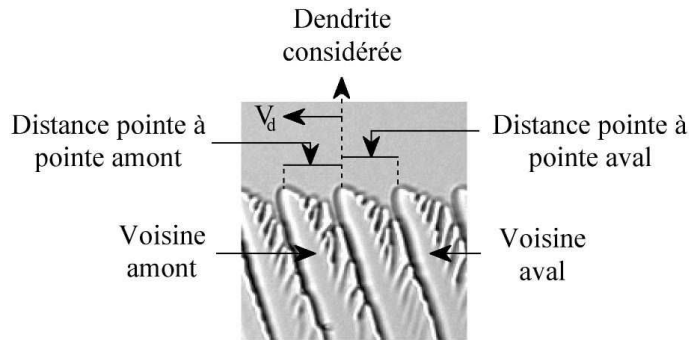


FIG. 6.3: Définition des dendrites amont et aval vis-à-vis d'une pointe dérivant à la vitesse  $V_d$ .

L'expérience est menée pour  $\Theta_0 = 25.2^\circ$  à la vitesse  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$  et  $G = 140K.cm^{-1}$ . Les angles et les tailles mesurés sur le diagramme Fig. ?? et calculés sont reportés dans le tableau ?? . Les angles de la quatrième et de sixième colonne sont pratiquement égaux. Cela signifie que chaque dendrite croît selon une direction imposée par la structure située en *amont*, *i. e.* par la distance pointe à pointe à celle-ci. En particulier, on peut considérer que le sillon compris entre les pointes croît selon une direction  $\Theta$  fonction de la distance entre les deux pointes qui l'entourent. Dans cette interprétation, la dynamique de croissance se ramène à une dynamique de sillon pilotée par la distance entre ses bornes : les pointes des dendrites qui l'entourent.

Ce résultat peut s'interpréter en considérant la pointe d'une dendrite croissant dans une direction d'angle  $\Theta$ . Comme elle dérive le long du front dans une direction dite *amont*, elle traverse le champ de concentration perturbé par sa voisine *amont*, *i. e.* la voisine qui la précède, quelques instant plus tôt (Fig. ??). Ceci introduit un couplage asymétrique sur le front entre une dendrite et ses voisines

## 6. Configurations inhomogènes

*amont* et aval : la dendrite est largement plus sensible à sa voisine *amont*. Comme les inclinaisons de dendrite sont fonction de leur tailles, ce couplage paramétrise ainsi la direction de croissance d'une dendrite par la taille de sa voisine *amont*.

D'après l'analyse faite au chapitre 4 sur la taille effective des structures, il aurait été préférable d'utiliser la définition de  $\tilde{\Lambda}$  pour la mesure des tailles des dendrites afin de se ramener à la loi universelle  $\Theta/\Theta_0 = f(\tilde{Pe})$ . La distance  $\tilde{\Lambda}/2$  ne serait alors plus reportée de chaque coté de la pointe de la dendrite considérée, comme sur un réseau homogène, mais doublée et reportée en amont à partir de cette même pointe. Cela nous conduirait cependant à une analyse de sous-échelle délicate à mener en pratique. De manière pragmatique et en vue d'une utilisation dans un modèle à l'échelle des dendrites, nous utiliserons ci-dessous les distances entre pointes de dendrite comme distance caractéristique, quitte à utiliser la fonction moyenne  $\Theta/\Theta_0$  défini par les relations (3.1) (3.2).

Numéro	$\Lambda$ amont	$\Lambda$ aval	$\Theta$ calculé ( $\Lambda$ amont)	$\Theta$ calculé ( $\Lambda$ aval)	$\Theta$ expérimental
1	142	157	7.12°	6.50°	7.1°
2	102	136	9.41°	7.40°	9.7°
3	132	112	7.60°	8.73°	7.6°
4	124	138	8.02°	7.3°	8.1°
5	108	126	8.99°	7.91°	8.8°
6	130	115	7.7°	8.54°	7.8°
7	155	140	6.58°	7.21°	6.5°
8	126	138	7.91°	7.31°	8°
9	117	108	8.42°	8.99°	8.6°
10	119	110	8.3°	8.86°	8.5°

TAB. 6.1: Valeurs des tailles mesurées sur les dix points de la figure ???. On calcule ensuite les angles de croissance  $\Theta$  correspondants qu'on compare à la valeur mesurée sur le diagramme. L'angle  $\Theta$  expérimental correspond bien à  $\Theta$  calculé ( $\Lambda$  amont).

### 6.1.3 Evolution temporelle d'un réseau inhomogène en taille

Dans ce paragraphe, nous menons un test plus global de l'hypothèse locale. Pour cela, nous analysons l'évolution temporelle d'un large réseau de dendrites de tailles variables sur une longue durée. Nous représentons sur la figure ??? trois clichés extraits d'une telle séquence. Les paramètres de l'expérience sont identiques à ceux énoncés précédemment.

#### Expériences

Comme les structures sont de tailles différentes, les vitesses de dérive le sont également et varient au cours du temps, de sorte que les trajectoires des dendrites ne sont pas rectilignes. De ce fait, un suivi particulier des trajectoires est nécessaire afin d'en déterminer précisément les courbures. Nous mettons alors au point un programme avec le logiciel NIH image afin de repérer les positions de chaque pointe au cours du temps. Ceci fournit les trajectoires discrètes de

toutes les dendrites. Afin de les rendre continues, nous interpolons chaque trajectoire par un polynôme dont le degré permet le meilleur accord avec les points expérimentaux. La figure ?? montre la superposition des trajectoires discrètes et des trajectoires continues. Elle révèle des zones où les lignes sont resserrées et d'autres où elles sont écartées (dendrites larges). On remarque par ailleurs que ces lieux se propagent à travers le réseau spatio-temporel de dendrites. Pour caractériser cette évolution, nous repérons sur la figure ?? les minima et maxima en taille le long du front au cours du temps. Ceux-ci, reportés en figure ??, montrent des propagations à vitesses différentes, variables en temps et globalement plus faibles que les vitesses propres de dérive. Ceci les conduit à sauter de dendrites en dendrites. Par ailleurs, l'intensité des extrema a tendance à se combler au cours du temps. Pour illustrer cela, nous représentons sur la figure ??, l'évolution des tailles d'un maximum ( $t = 0s; x = 3500\mu m$ ) et d'un minimum ( $t = 30s; x = 3820\mu m$ ) adjacents, issus de la figure ??.

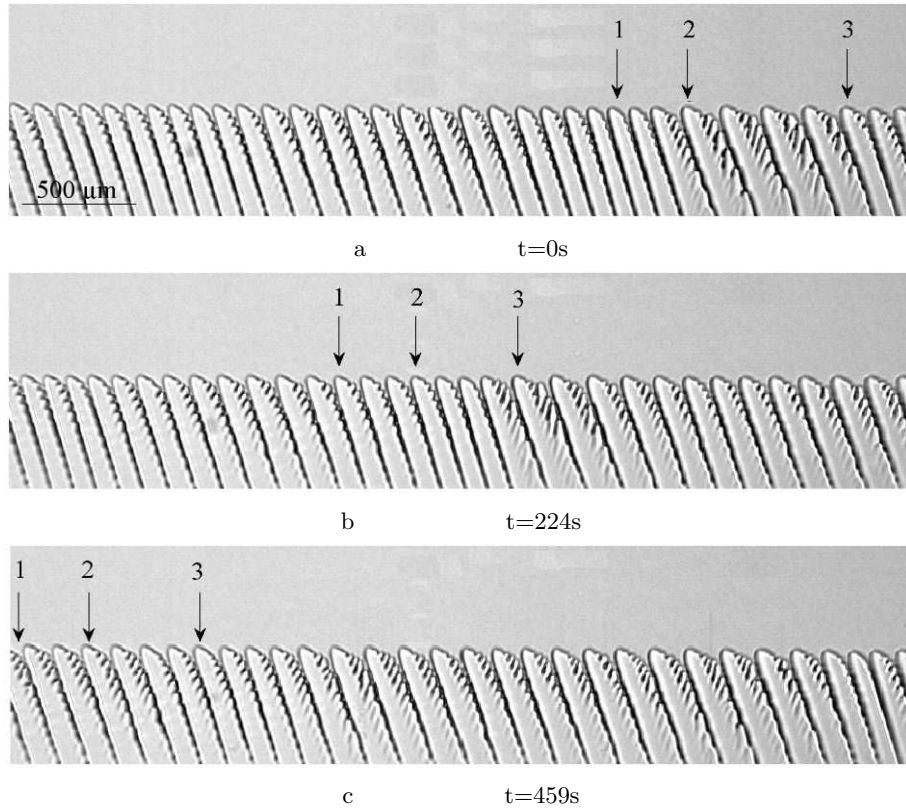


FIG. 6.4: Images extraites de la séquence pour  $\Theta_0 = 25.2^\circ$ ,  $V_G = 20\mu m.s^{-1}$  et  $G = 140K.cm^{-1}$ . On repère sur chaque photo la position de trois dendrites. (a) 1.  $\Lambda = 90\mu m$ , 2.  $\Lambda = 168\mu m$ , 3.  $\Lambda = 117\mu m$ . (b) 1.  $\Lambda = 112\mu m$ , 2.  $\Lambda = 105\mu m$ , 3.  $\Lambda = 167\mu m$ . (c) 1.  $\Lambda = 124\mu m$ , 2.  $\Lambda = 126\mu m$ , 3.  $\Lambda = 122\mu m$ . On note une évolution en taille des dendrites, hors instabilités. Le réseau obtenu en (c) est beaucoup plus homogène que le réseau en (a).

## 6. Configurations inhomogènes

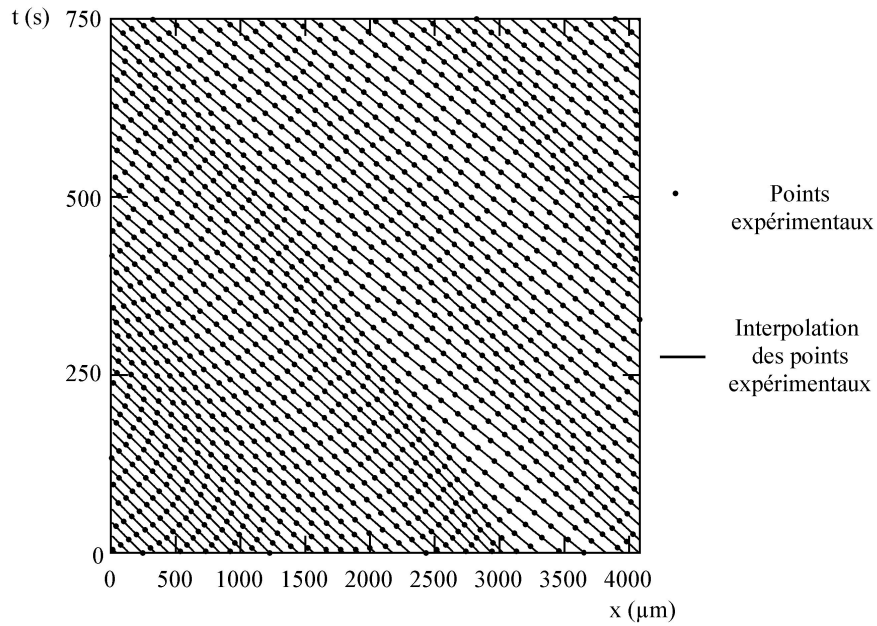


FIG. 6.5: Carte des trajectoires expérimentales des dendrites. Les lignes représentent les trajectoires interpolées des pointes de dendrites dans l'échantillon. On distingue clairement les zones où les dendrites sont larges et les zones où elles sont étroites.

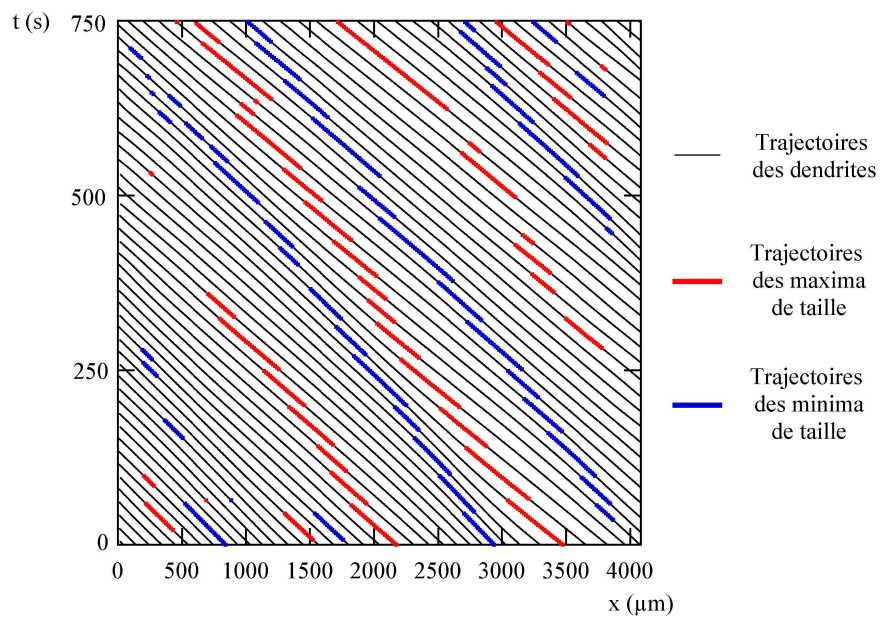


FIG. 6.6: Tracé des trajectoires expérimentales des dendrites sur lesquelles on superpose les extrema selon  $x$  à chaque instant. De cette représentation émergent des trajectoires d'extrema différentes de celles des dendrites.

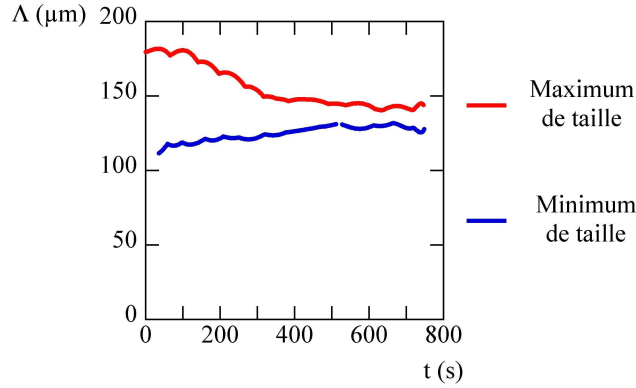


FIG. 6.7: Evolution de la taille d'un maximum ( $t = 0s; x = 3500\mu m$ ) et d'un minimum ( $t = 30s; x = 3820\mu m$ ) issus de la figure ??.

## Simulation

Nous souhaitons valider ici l'hypothèse locale en retrouvant la cinématique expérimentale par intégration du modèle correspondant. Vu que l'échelle de variation de  $\Lambda$  est très grande devant  $\Lambda$ , l'évolution des réseaux de dendrites peut être décrite par un modèle basé sur un développement en gradient de la phase associée aux structures. A l'ordre le plus bas, ce modèle est purement cinématique. A l'ordre suivant, il comporterait un terme de diffusion de la phase. Nous montrons cependant dans ce qui suit que ce terme diffusif est ici sans utilité à savoir qu'un modèle purement cinématique suffit à décrire l'évolution spatio-temporelle du réseau.

Nous construisons donc un modèle numérique cinématique générant à partir des conditions initiales expérimentales, la cinématique issue d'une dynamique locale. Suite aux remarques du paragraphe 6.1.3, ce modèle doit être asymétrique afin de tenir compte du couplage avec la dendrite amont.

Nous faisons l'approximation selon laquelle la pointe et le sillon amont d'une dendrite ont la même dynamique. Cela est légitime étant donné l'apparente constance de la distance entre ces deux points à la résolution expérimentale utilisée.

Le principe du modèle est le suivant : à chaque pas de temps, nous calculons la taille des structures le long du front. Chaque taille impose une certaine orientation à la dendrite située en aval d'après l'analyse faite au paragraphe 6.1.3. Chacune de ces dendrites dérive alors à une vitesse propre  $V_d$  et se retrouve ainsi déplacée, après la durée du pas de temps  $\Delta t$ , de  $V_d \Delta t$  le long du front. Cela implique un changement de leur taille respectives. On calcule alors leur nouvelle taille et ainsi de suite.

Nous notons  $\Lambda_n^t$  la taille de la dendrite numéro  $n$  à l'instant  $t$  prise comme distance entre les positions  $P_n^t$  et  $P_{n+1}^t$  des pointes des dendrites  $n$  et  $n+1$  dans le référentiel du liquide au repos ??.

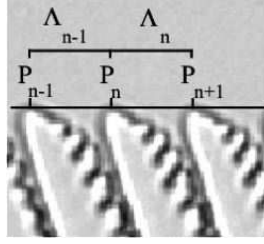


FIG. 6.8: Schéma représentant les tailles et les pointes des dendrites à prendre en compte dans le modèle numérique.

On a donc :

$$\Lambda_n^t = P_{n+1}^t - P_n^t$$

Chaque dendrite  $n$  possède une vitesse de dérive qui lui est propre et qui est donnée par la relation (3.1) (3.2) obtenue en conditions homogènes :  $V_d = V_G \tan(\Theta_0 - \Theta_n^t)$  où  $\Theta_0$  désigne l'angle d'ouverture et  $\Theta_n^t$  l'inclinaison de la direction de croissance de la dendrite. Suite à l'analyse sur l'asymétrie du paragraphe 6.1.3, on paramétrise l'angle  $\Theta_n^t$  par la taille de la dendrite *amont*, ici  $\Lambda_{n-1}^t$  :  $\Theta_n^t = \Theta_n^t(\Lambda_{n-1}^t)$ . Ainsi, en utilisant les équations (3.1) et (3.2), la vitesse de dérive pour la dendrite  $n$  à l'instant  $t$  s'écrit :

$$V_{d,n} = V_G \tan[\Theta_0 \{1 - (1 + \alpha(\Theta_0)(Pe_{n-1}^t)^{5/4})^{-1}\}]$$

où  $\Theta_0 = 25.2^\circ$  et  $Pe_{n-1}^t = \Lambda_{n-1}^t V_G / D$

Avec :

$$\begin{aligned} \frac{dP_n}{dt} &= V_{d,n} \\ V_{d,n} &= V_{d,n}(\Lambda_{n-1}) \end{aligned}$$

On obtient ainsi le modèle discret :

$$\begin{aligned} P_n^{t+1} &= P_n^t + V_{d,n}(\Lambda_{n-1}^t) \Delta t \\ \Lambda_{n-1}^t &= P_n^t - P_{n-1}^t \end{aligned}$$

Le pas de temps  $\Delta t$  n'ayant pas d'influence forte sur la convergence du modèle, on prend  $\Delta t = 0.2s$ . Les conditions initiales du modèle sont prises identiques à celles de l'expérience, *i. e.* à l'état du front en  $t = 0s$  sur la figure ???. La dérive des structures le long du front conduit, dans le champ d'observation fixe de l'expérience, à un flux entrant de cellules en aval et à une flux sortant en amont. Le premier est important car les dendrites nouvellement entrées vont interagir dans le champ d'observation. C'est pourquoi nous calquons le flux entrant du modèle à  $x = 4580\mu m$  sur celui de l'expérience à  $x = 4580\mu m$  (Fig. ??). Le flux sortant est en revanche laissé libre en  $x = 0\mu m$ .

La figure ?? montre la superposition des trajectoires expérimentales et numériques. Il apparaît que les lignes expérimentales et numériques sont quasiment

identiques. Les écarts maximums ne dépassent pas une demi-dendrite sur une étendue de plus de 100 tailles moyennes de structures selon  $x$  : L'hypothèse locale est ainsi validée dans l'extension et dans la durée.

Il est intéressant de remarquer que le fait de paramétriser l'angle  $\Theta_n^t$  par  $\Lambda_n^t$  entraîne la divergence du modèle en provoquant l'augmentation des différences de taille. Cela a pour effet, *in fine*, de déstabiliser les structures (Fig. ??). Le même effet est obtenu pour une moyenne pondérée entre  $\Lambda_n$  et  $\Lambda_{n-1}$ .

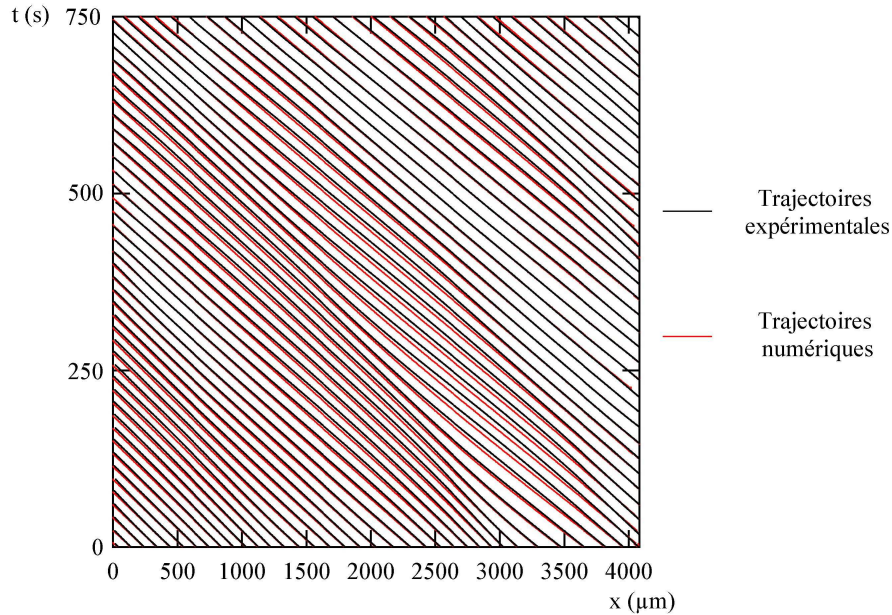


FIG. 6.9: Superposition des trajectoires expérimentales et numériques des dendrites.

La figure ?? représente les maxima et minima de taille obtenus au cours du temps dans l'expérience et par la modélisation. On constate que les trajectoires des extrema sont bien décrites par la simulation. Si on prolonge la simulation sur des temps plus longs, on s'aperçoit que chaque maximum rejoint un minimum pour finalement disparaître. Cela confirme le fait que les écarts en taille ont tendance à diminuer au cours du temps.

#### 6.1.4 Conclusion

L'analyse locale de l'évolution des directions de croissance des dendrites formant un réseau de tailles variables a fait émerger une cinématique de sillon paramétrée par la distance entre les pointes qui l'entoure. Cela a permis d'élaborer un modèle numérique cinématique selon lequel chaque dendrite d'un front inhomogène est pilotée par la taille locale de la dendrite la précédant dans le sens global de dérive des structures. Pour cela, nous avons utilisé les résultats du chapitre 3 sur l'orientation des structures. La comparaison entre la simulation et l'expérience a conduit à la validation à grande échelle de cette dynamique locale. Tout écart entre trajectoires expérimentales et trajectoires numériques pourrait être imputé à une diffusion de la phase non prise en compte dans le modèle



## 6. Configurations inhomogènes

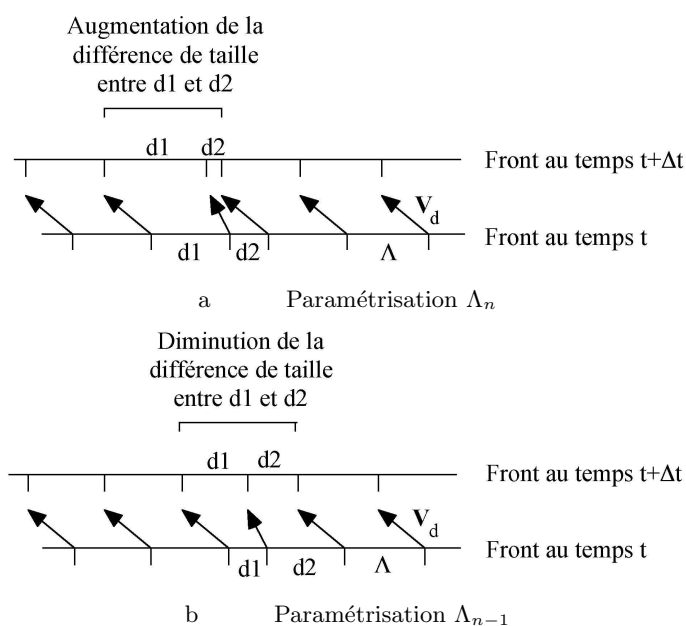


FIG. 6.10: Différence entre la paramétrisation par  $\Lambda_n$  et  $\Lambda_{n-1}$  de  $\Theta_n^t$ . (a) La paramétrisation par  $\Lambda_n$  augmente les différences de taille et conduit à des instabilités. (b) La paramétrisation par  $\Lambda_{n-1}$  stabilise le réseau et réduit les différences de taille.

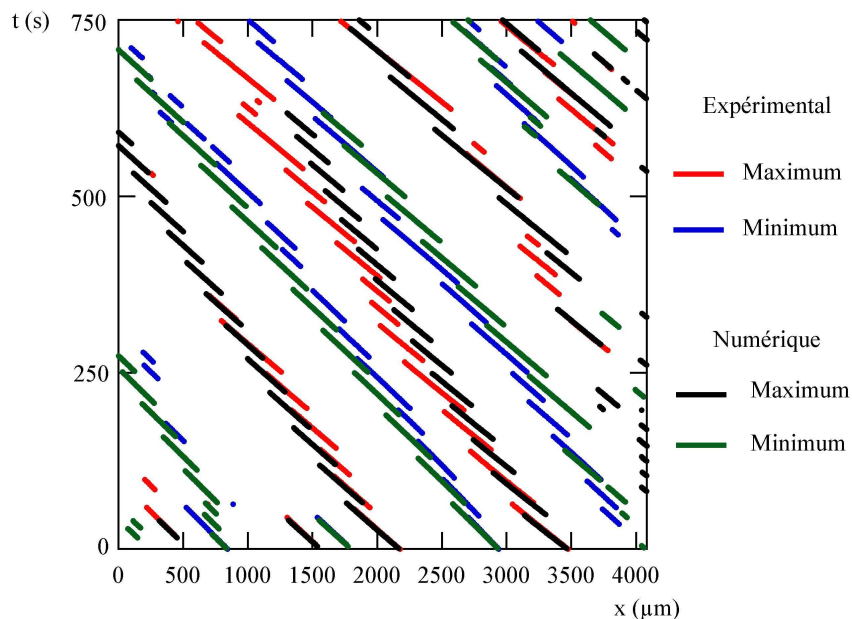


FIG. 6.11: Superposition des minima et maxima au cours du temps pour l'expérience et la simulation.

cinématique. Cependant, ces écarts sont en pratique trop faibles pour permettre de déterminer un mécanisme éventuel de diffusion de phase. Ainsi, le modèle

cinématique suffit à rendre compte ici de l'évolution des réseaux considérés.

Il est ainsi *a priori* possible de prédire l'évolution d'un réseau quelconque de dendrites sur un front plan, toutes instabilités mises à part.

## 6.2 Fronts courbés

Après avoir testé dans le paragraphe 6.1 l'hypothèse locale d'orientation des structures vis-à-vis de l'inhomogénéité de leur taille, nous souhaitons la tester vis-à-vis de l'inhomogénéité de l'ouverture  $\Theta_0$ . Pour cela, nous menons des expériences sur des fronts faiblement courbés sur des durées permettant d'éviter le déclenchement d'instabilités d'étirement [?, ?]. Cette partie est consacrée à l'étude de la cinématique sur de tels fronts concaves ou convexes selon que la partie solide du matériau est concave ou convexe.

Nous décrivons ci-dessous les dispositifs expérimentaux qui permettent l'observation de tels fronts. Nous analysons ensuite les diagrammes spatio-temporels issus des séquences expérimentales. Le modèle cinématique précédent est ensuite adapté aux fronts courbés et comparé aux expériences. Cela nous permettra de statuer sur la validité d'une dynamique locale dans cette configuration.

### 6.2.1 Dispositif expérimental

Nous mettons au point deux systèmes différents afin d'obtenir un front concave et un front convexe. Pour chaque configuration, des extensions adaptées aux dispositifs chauffants et réfrigérants sont fabriquées à l'atelier du laboratoire. Pour le front concave, quatre plaques présentant des extrémités en arcs de cercle complémentaires entre les parties chaudes et froides sont utilisées (Fig. ??a).

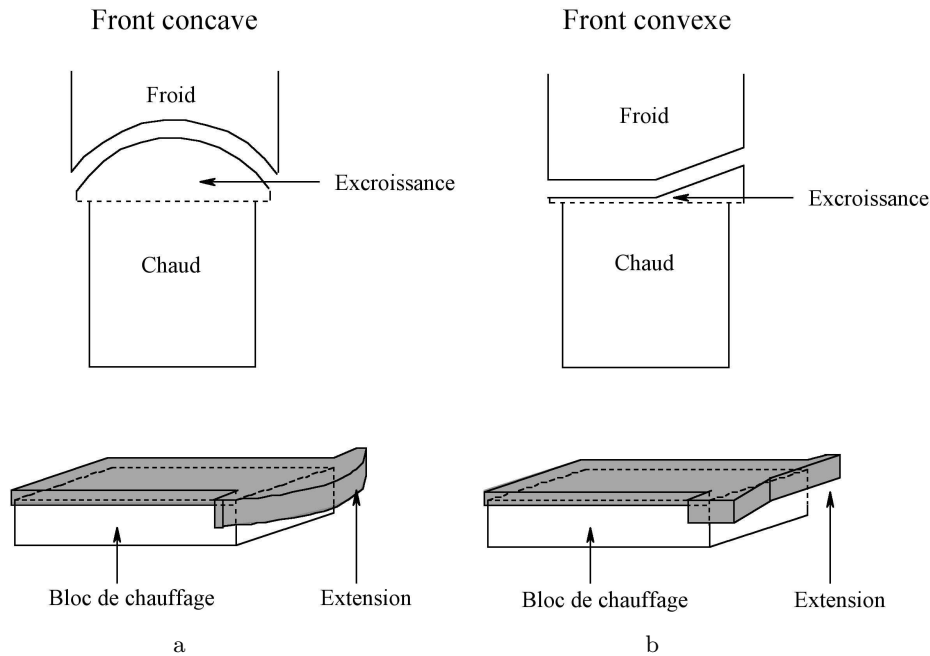


FIG. 6.12: Schéma des plaques s'adaptant sur les fours. Extensions permettant de créer le front (a) concave et (b) convexe.

Les rayons de courbure sont respectivement de  $40\text{mm}$  et  $45\text{mm}$ . Les plaques sont espacées de  $5\text{mm}$  afin de créer au centre du gap un gradient de température de  $140\text{K.cm}^{-1}$ .

Pour créer le front convexe, nous utilisons également quatre plaques présentant un angle entre deux régions planes inclinées respectivement de  $0^\circ$  et  $10^\circ$  (Fig. ??b). Malgré la présence de la pointe à la jonction des deux régions, le front présente bien une courbure continue due à la réponse diffusive du champ de température à l'évolution des conditions aux limites. Les courbures créées par les deux jeux de plaques sont cinq à six fois plus faibles que celles utilisées par A. Pocheau et S. Bottin-Rousseau dans leur étude de la synchronisation des instabilités sur les fronts courbés pour des vitesses proches du seuil [?, ?].

Pour les deux fronts courbés, nous utilisons un échantillon de succinonitrile dont l'orientation du grain par rapport à la direction de poussée est de  $5.8^\circ$ . Nous poussons les échantillons à une unique vitesse  $V = 15\mu\text{m.s}^{-1}$ .

### 6.2.2 Expériences

Pour le front concave, nous enregistrons une séquence de  $2260\text{s}$  dont nous présentons trois extraits sur la figure ??a. Nous plaçons le bord gauche du champ de la caméra au centre de l'échantillon. Le front est alors incliné de  $0^\circ$  sur la gauche des images et de  $7.3^\circ$  sur la droite. Pour le front convexe, la durée de la séquence est de  $1200\text{s}$  (Fig. ??b). L'image est centrée sur la zone de courbure. Les inclinaisons du front à droite et à gauche des images sont alors de  $2.7^\circ$  et  $11.5^\circ$  respectivement.

Sur la première expérience, on remarque que les tailles des structures diminuent au cours du temps alors que sur la seconde, on observe une augmentation des tailles. Cela est dû à la combinaison de deux effets :

- Un effet géométrique provenant d'une croissance normale pour laquelle la distance entre deux points le long du front converge au cours du temps pour le front concave et diverge pour le front convexe [?, ?].
- Un effet d'inclinaison des dendrites qui conduit à une vitesse de dérive supplémentaire.

Afin d'extraire la cinématique des dendrites au cours du temps, on construit les diagrammes spatio-temporels des fronts en prenant comme ligne courante le front moyen. Cela implique que les isotemps sont des droites ce qui facilite l'analyse. Les diagrammes sont reportés sur la figure ?. On y constate les évolutions des tailles décrites ci-dessus.

## 6. Configurations inhomogènes

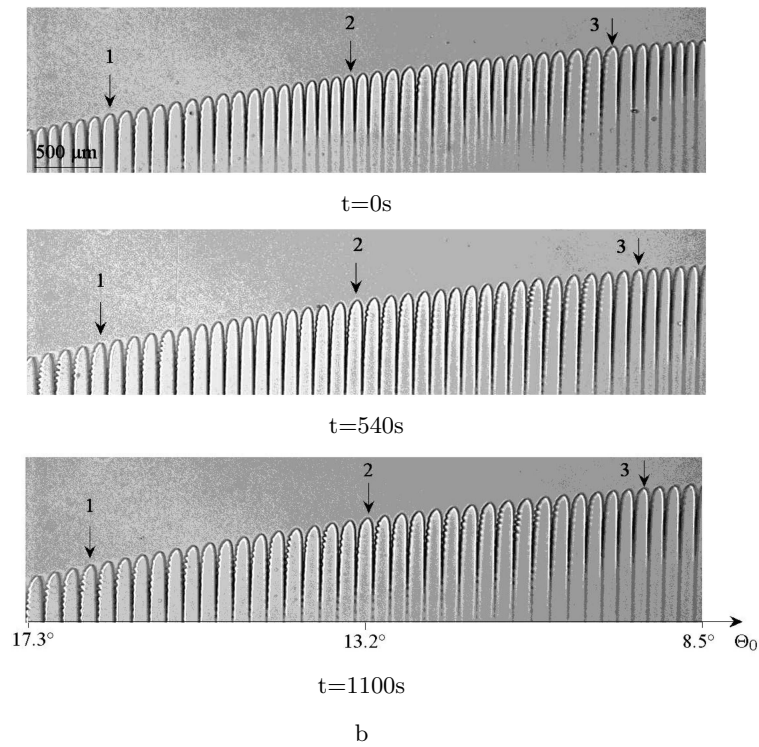
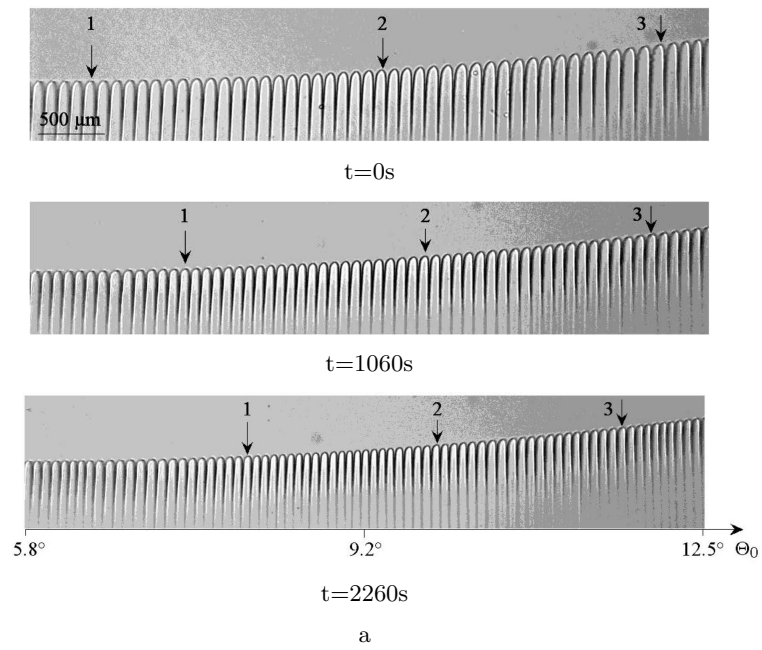
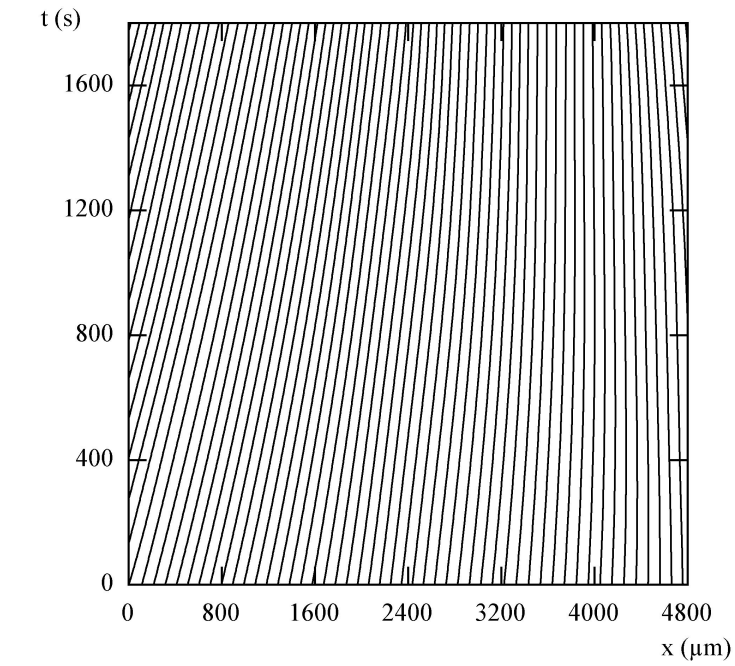
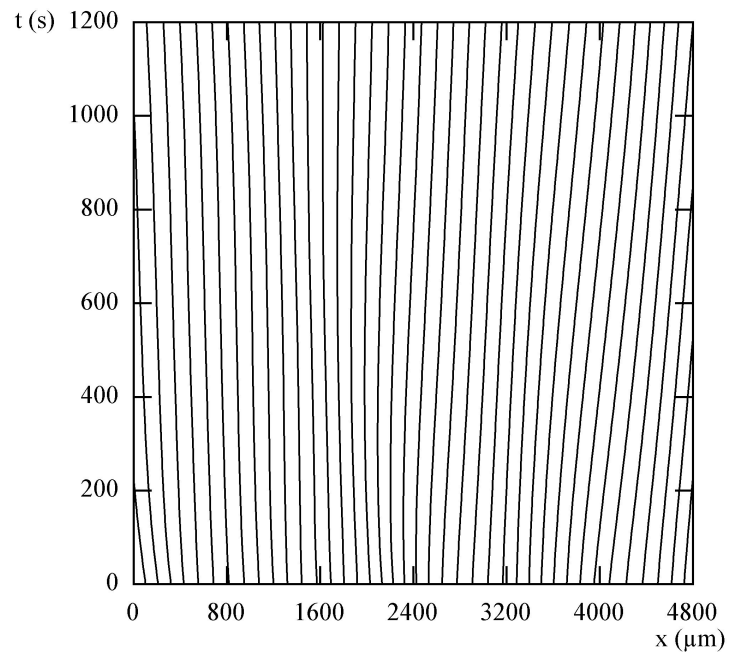


FIG. 6.13: Images des séquences sur les fronts courbés. (a) Front concave : le nombre de structures augmente entre la première et la troisième image. (b) Front convexe : on constate entre les trois séquences une diminution du nombre de dendrites et une augmentation des tailles.



a



b

FIG. 6.14: Diagrammes spatio-temporel des séquences sur les fronts courbés. (a) Front concave. (b) Front convexe. On note les différences d'évolutions des deux fronts dues aux courbures opposées.

### 6.2.3 Simulation numérique

Dans le but de vérifier l'hypothèse d'évolution locale des structures, nous utilisons la simulation numérique basée sur le modèle cinématique du paragraphe 6.1.5 en l'adaptant aux configurations présentes.

Le calcul de la vitesse de dérive des structures est soumis à deux hypothèses :

- La forme globale du front se conserve au cours de sa translation à vitesse  $\mathbf{V}$ .
- Le front moyen est une isotherme.

Cela permet de décomposer la vitesse de translation  $\mathbf{V}$  en  $\mathbf{V}_g$  et  $\mathbf{V}_d$ , où  $\mathbf{V}_g$  est la vitesse de croissance des dendrites et  $\mathbf{V}_d$  leur vitesse de dérive tenant compte des effets géométriques et d'inclinaison énoncés au paragraphe précédent :

$$\mathbf{V} = \mathbf{V}_g - V_d \cdot \mathbf{t}$$

où  $\mathbf{t}$  est le vecteur tangent au front. Il vient ensuite :

$$\begin{aligned} V_d &= -(\mathbf{V} - \mathbf{V}_g) \cdot \mathbf{t} \\ V_d &= -V \sin(\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{n}) + V_g \sin(\Theta_0 - \Theta) \end{aligned}$$

où  $-V \sin(\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{n})$  représente la vitesse de dérive d'origine géométrique avec  $\mathbf{e}_z = \mathbf{V}/V$  et  $V_g \sin(\Theta_0 - \Theta)$  représente la vitesse de dérive due à l'inclinaison des structures. De plus,  $V_G = V_g \cos(\Theta_0 - \Theta)$ . Cela conduit finalement à :

$$V_d = -V \sin(\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{n}) + V_G \tan(\Theta_0 - \Theta)$$

En reprenant les notations du paragraphe 6.1 et en explicitant les dépendances des variables vis-à-vis de l'abscisse curviligne  $x$ , le modèle numériques s'écrit alors :

$$\begin{aligned} V_{d,n} &= V_G(x) \tan[\Theta_0(x)(1 - (1 + \alpha(\Theta_0(x))(Pe_{n-1}^t)^{5/4})^{-1})] \\ &\quad - V \sin(\mathbf{e}_z \cdot \mathbf{n}(x)) \\ \text{où } \Theta_0(x) &= \arctan(x \times 2.3568 \times 10^{-5}) \quad \text{front concave} \\ \text{et } \Theta_0(x) &= \arctan((7511 - x) \times 2.7228 \times 10^{-5}) \quad \text{front convexe} \\ \frac{dP_n}{dt} &= V_{d,n}(\Lambda_{n-1}) \end{aligned}$$

Nous construisons numériquement les diagrammes spatio-temporels des deux expériences précédentes en prenant comme conditions initiales les données de l'expérience. Les conditions aux limites pour la simulation du front concave en  $x = 0 \mu m$  et  $x = 4800 \mu m$  sont identiques à celles de l'expérience (Fig. ??a). La figure ?? représente la superposition des trajectoires expérimentales et numériques des dendrites. On y constate un déplacement maximal d'environ une demi-dendrite sur une distance de 300 tailles moyennes en  $x$  pour la simulation de front concave et de moins d'un quart de dendrites sur environ 200 tailles pour le front convexe. De ce fait, l'approximation locale sur la variation de  $\Theta_0$  est vérifiée.

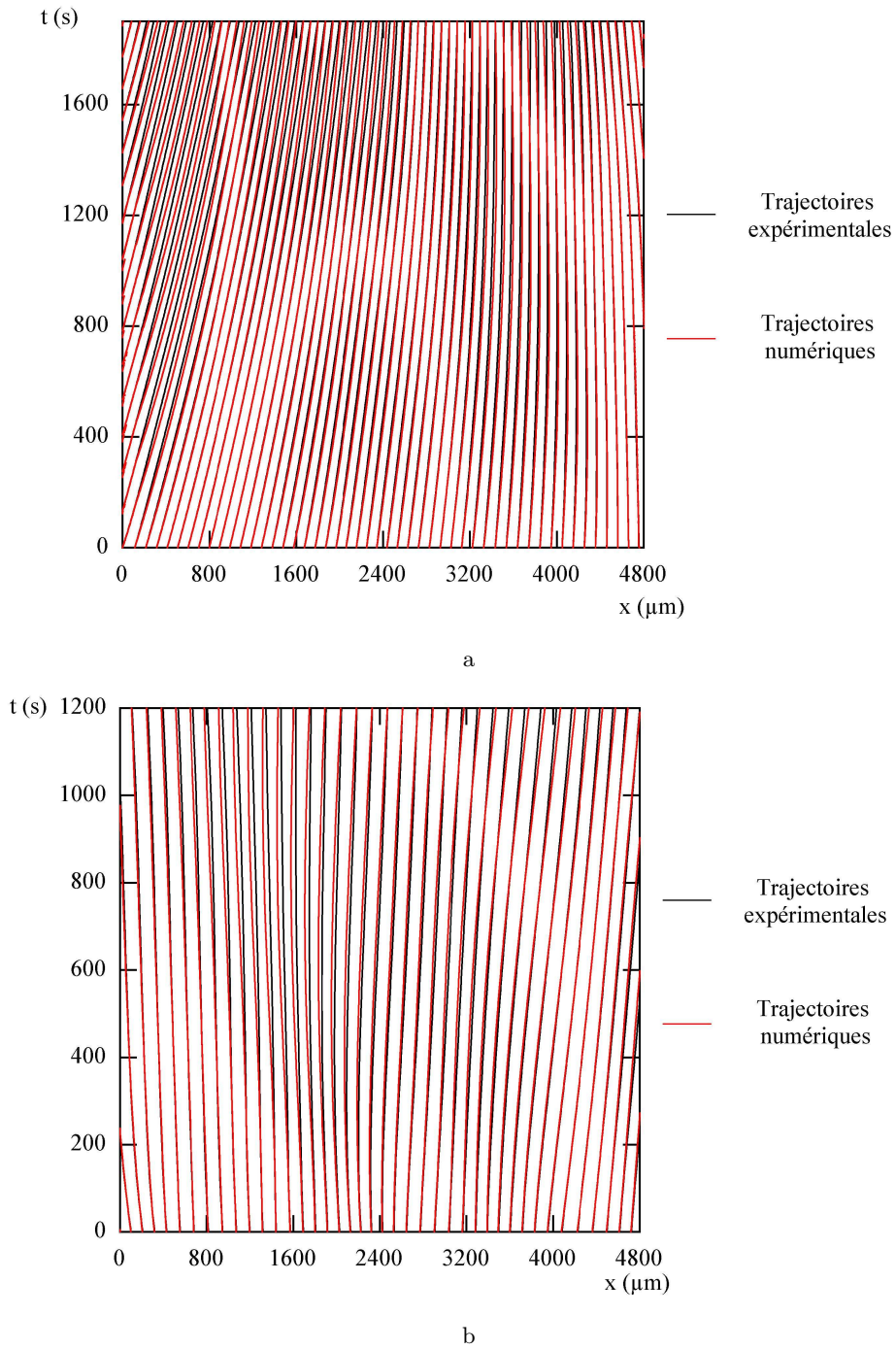


FIG. 6.15: Superposition des diagrammes spatio-temporels numériques et expérimentaux. (a) Front convexe. (b) Front concave.



### 6.2.4 Conclusion

Afin de tester l'approximation locale vis-à-vis de  $\Theta_0$  sur les fronts faiblement courbés, nous avons adapté le modèle cinématique en y incorporant la variation de l'ouverture le long du front. La simulation a permis de valider l'hypothèse locale en retrouvant, avec un bon accord, la cinématique expérimentale des dendrites. Cela implique qu'un front faiblement courbé peut être considéré comme une succession de fronts rectilignes inclinés dont l'angle d'ouverture varie.

Le modèle numérique permet de prendre en compte l'effet local de l'ouverture ainsi que celui des tailles des structures. Cela pourrait être applicable à la détermination des directions de croissance des structures en solidification massive d'alliage dans des cylindres ou des creusets où le front entre les phases liquide et solide est courbée [?].

## 6.3 Intensité variable du gradient de température

Dans l'industrie métallurgique, l'intensité du gradient de température  $G$  n'est pas, *a priori*, contrôlée, notamment lors de la solidification d'un lingot. Or, une variation de  $G$  en temps ou en espace peut engendrer des effets importants sur les structures de solidification. Ce paragraphe vise à les caractériser et à en déduire les conséquences quant à la dynamique des structures. En particulier, comme d'après l'étude du chapitre 4, l'intensité de  $G$  n'a pas d'effet notable sur la direction de croissance  $\Theta$  et donc sur la cinématique des structures, nous ciblons l'étude sur les instabilités encourues par les dendrites.

### 6.3.1 Méthodes expérimentales

Nous désirons obtenir un gradient thermique d'intensité variable le long d'un front rectiligne sans avoir à varier les températures des fours [?]. Pour cela, nous adaptons le dispositif expérimental en conséquence, puis nous décrivons comment conserver un front plan quelle que soit la vitesse. Enfin, nous donnons la distribution de  $G$  obtenue le long du front.

#### Dispositif expérimental

De façon à obtenir un gradient non constant, des extensions symétriques entre les éléments chauds et froids sont fabriquées pour des ouvertures variables. Ces pièces sont également symétriques sur la longueur de l'échantillon. Elles sont représentées sur la figure ???. Lorsque les plaques sont positionnées dans le dispositif, elles sont séparées sur les bords par une distance  $d = 3.5\text{mm}$ .

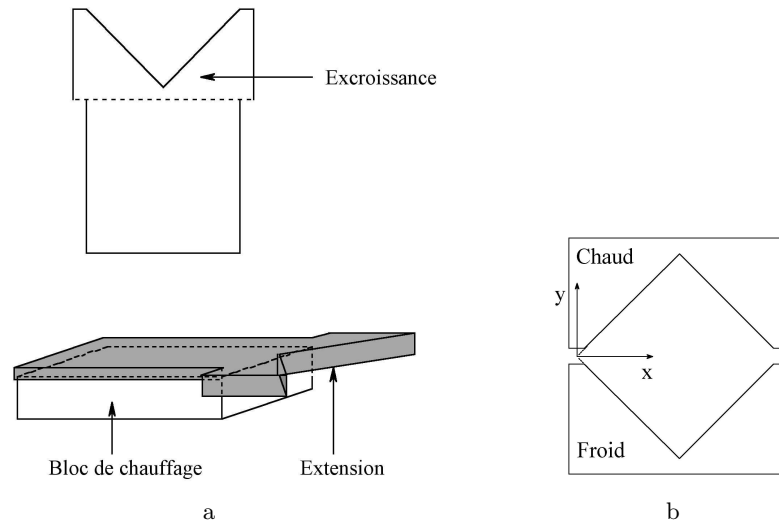


FIG. 6.16: Plaques permettant d'obtenir le gradient de température variable. (a) Schéma d'une plaque s'appliquant sur un bloc de chauffage. (b) Ensemble des extensions entre les fours chauds et froids. Nous définissons également le repère  $(x, y)$  qui sera utile pour repérer le front entre les fours.

## 6. Configurations inhomogènes

L'existence d'un grand espace vide entre les plaques est susceptible d'engendrer des mouvements de convection dans l'air entre les éléments chauds et froids. Pour les éviter, nous intercalons des éléments qui inhibent les courants convectifs (Fig. ??). Un élément est constitué d'une lame de verre sur laquelle nous collons un morceau de carton alvéolé.

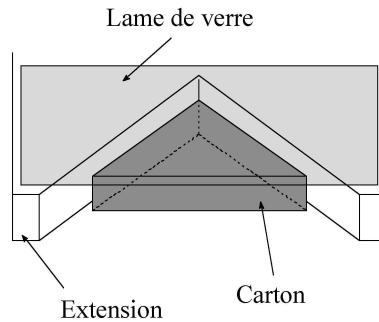


FIG. 6.17: Schéma d'un élément anti-convection. Il est composé d'une lame de verre rectangulaire sur laquelle est collé un morceau de carton alvéolé. Celui-ci se loge alors exactement dans l'espacement laissé libre par l'ouverture des fours. Chaque plaque de cuivre possède un tel élément.

### Obtention d'un front rectiligne

Nous souhaitons obtenir à chaque vitesse de poussée un front rectiligne. Or, les valeurs de la vitesse de poussée ainsi que les consignes de température des éléments thermiques jouent un rôle essentiel sur la rectitude du front. En effet, la vitesse de poussée  $V$  déplace les isothermes suite à l'advection thermique par les plaques de verre de l'échantillon en mouvement et donc la position du front. Afin d'obtenir un front plan, nous compensons ces variations par une variation de températures des fours. On note  $c$ , la distance maximale entre le front au centre du dispositif et l'axe de symétrie entre les fours chauds et froids ( $y = 0$  sur la figure ??). Le critère de rectitude du front sur une large partie centrale sera  $c \simeq 0$ . Il se trouve confirmé expérimentalement par observation des fronts.

Dans un premier temps, nous déterminons l'effet de la vitesse de poussée sur le front à des valeurs de température fixées. Pour cela, on étudie la forme du front de succinonitrile poussé à  $V_G = 0, 10, 20, 30, 40$  et  $50 \mu m.s^{-1}$  et à une température de  $10^\circ C$  pour l'élément froid et  $95^\circ C$  pour l'élément chaud. On s'aperçoit que le front est plus ou moins courbé et éloigné de l'axe de symétrie entre les fours chauds et froids.

On reporte les valeurs de  $c$  pour les différentes vitesses sur la figure ?? a. Nous pouvons raisonnablement effectuer une interpolation linéaire de ces six points afin de connaître la position du front pour toutes les vitesses. Nous constatons alors que le front est censé être rectiligne pour une vitesse de  $27 \mu m.s^{-1}$ . Lors de la vérification expérimentale, le front est quasiment plan et présente une déviation d'amplitude maximale  $c$  de l'ordre de  $100 \mu m$ .

A présent, nous compensons la dérive du front à chaque vitesse en effectuant une variation de température  $\Delta T$  sur les fours. Pour cela, nous fixons la vitesse à

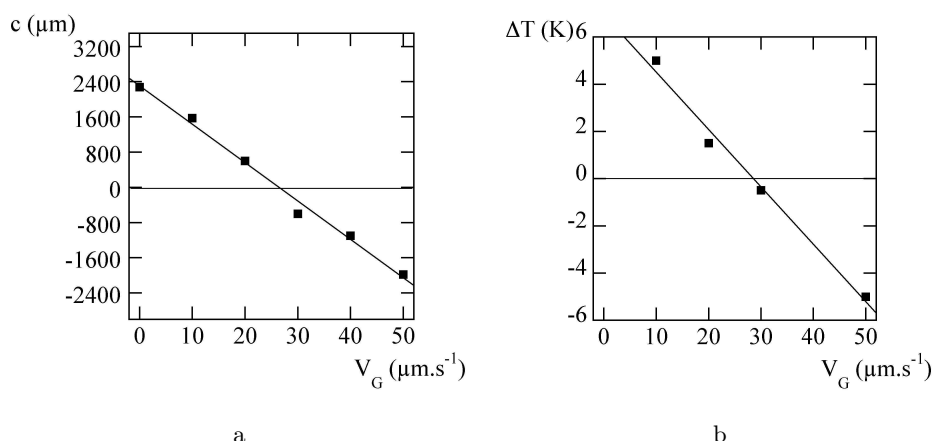


FIG. 6.18: Caractérisation de la rectitude du front. (a) La température des fours est fixée et la vitesse varie. On trace la déviation  $c$  par rapport à la ligne  $y = 0$ . (b) La vitesse est fixée et les température des fours varient pour obtenir un front plan.

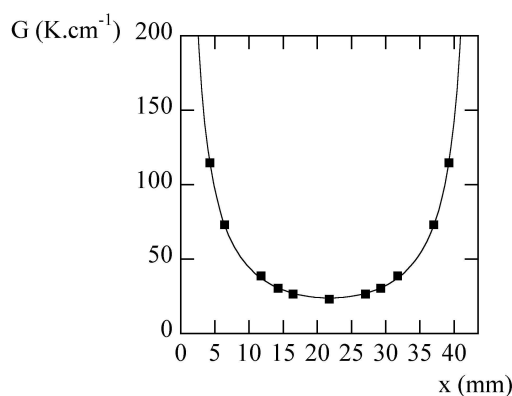


FIG. 6.19: Valeurs du gradient de température dans le dispositif à  $y = 0$ . On interpole les points par la fonction  $G(x) = A - \frac{B}{x(x-43.5)}$  où  $A = -25.6$  et  $B = 23484$ .

$V_G = 10, 20, 30, 50 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  et nous varions les températures des fours. Les écarts en température  $\Delta T$  pour lesquels on retrouve un front rectiligne à  $c = 0$  sont représentés sur la figure ??b. Les températures de référence sont  $10^\circ\text{C}$  et  $95^\circ\text{C}$ .

Les résultats précédents sont utilisés par la suite pour conserver des fronts rectilignes lors des expériences.

### Mesure de $G(x)$

Nous mesurons le gradient de température sur la ligne  $y = 0$ . Pour cela, nous utilisons l'échantillon avec thermocouples pour dresser la carte des températures en quelques points compris entre  $x = 0\text{mm}$  (bord gauche de l'échantillon) et  $x = 21.75\text{mm}$  (centre de l'échantillon), puis pour calculer les valeurs de  $G$ . Nous reportons alors ces valeurs sur la partie droite de l'échantillon par symétrie vis-à-vis de l'axe situé à  $x = 21.75\text{mm}$ . Les valeurs de  $G$  représentées sur la

## 6. Configurations inhomogènes

---

figure ?? sont interpolées par la fonction  $G(x) = A - \frac{B}{x(x-43.5)}$  afin d'obtenir une valeur de  $G$  en tout point d'abscisse  $x$ . On trouve  $A = -25.6$  et  $B = 23484$ . Les données obtenues s'interrompent près des bords de l'échantillon en  $x = 1.75mm$  et  $x = 41.75mm$ . D'après la relation obtenue, cela correspond à un gradient thermique  $G$  de  $300K.cm^{-1}$  pour  $x < 1.75mm$  ou  $x > 41.75mm$ . Le gradient minimum rencontré au centre de l'échantillon est en revanche de  $24K.cm^{-1}$ .

Nous menons par la suite des expériences pour une unique ouverture  $\Theta_0 = 22^\circ$  aux vitesses  $V = 10, 30$  et  $50\mu m.s^{-1}$ .

### 6.3.2 Evolution des structures

Nous mettons à profit la vitesse de dérive des structures afin que celles-ci explorent les différentes valeurs du paramètre de contrôle  $G$ . Nous nous plaçons dans l'hypothèse quasi-stationnaire selon laquelle les structures s'adaptent au gradient de température plus rapidement qu'elles ne sont advectées. Pour cela, nous comparons le temps  $\tau$  que met une structure de  $100\mu m$  à se déplacer de sa propre taille à une vitesse  $V_G = 10\mu m.s^{-1}$  au temps de mise à l'équilibre  $D/V_G^2$ . On obtient  $\tau = 60s$  et  $D/V_G^2 = 13s$  de sorte que  $\tau \gtrsim 5D/V_G^2$ . Cela supporte l'hypothèse de quasi-stationnarité.

Nous enregistrons des séquences le long du front à chaque vitesse. On présente sur la figure ??a un exemple de prise de vue pour  $V_G = 10\mu m.s^{-1}$  extraite de la partie gauche,  $x \in [3; 21.75]$ , de l'échantillon. On y observe des instabilités de disparition. En revanche, les images de la partie droite de l'échantillon,  $x \in [21.75; 43.5]$ , obtenue à  $V_G = 30\mu m.s^{-1}$ , révèlent des instabilités de création (Fig. ??b).

Afin de mettre en lumière ces instabilités, nous enregistrons sur une zone de disparition de cellules, une séquence de 30 minutes à  $V_G = 30\mu m.s^{-1}$ . Puis nous déterminons le diagramme spatio-temporel correspondant (Fig. ??), après un traitement d'image destiné à mettre en exergue les instabilités. On constate sur le diagramme que les instabilités surviennent localement sur certaines cellules. On obtient le même type de diagramme concernant les créations des structures. Etant donné que  $G$  varie sur le front, on va alors tester si, dans le cadre de l'hypothèse quasi-stationnaire, les instabilités sont cohérentes avec les évolutions du diagramme de stabilité de  $G$  du chapitre 5.

Nous utilisons la courbe de la figure ?? reliant  $\Lambda_g G^{0.47} V_g^{0.23}$  à  $\Theta_0$ . Or, ici, nous mesurons les tailles le long du front, ce qui nous conduit plutôt à utiliser  $\Lambda$  et  $V_G$ . Ces deux représentations diffèrent d'un facteur  $(\cos(\Theta_0 - \Theta))^{3/4}$  qui, aux faibles ouvertures utilisées ici,  $\Theta_0 - \Theta < 10^\circ$ , est proche de l'unité :  $(\cos(\Theta_0 - \Theta))^{3/4} < 0.05$ . En l'assimilant à 1, nous conservons ainsi la même représentation que dans le chapitre 5 soit :

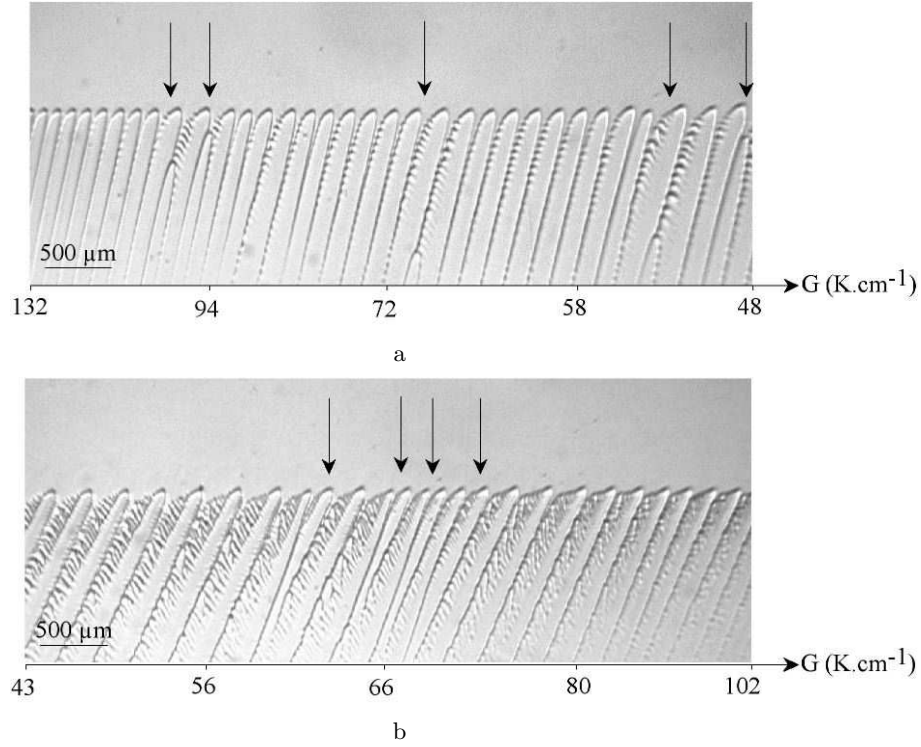


FIG. 6.20: Zones d'instabilités. Les instabilités sont pointées par des flèches noires. (a) Zone d'élimination. La vitesse est  $V_G = 10 \mu\text{m.s}^{-1}$ . (b) Zone de créations. La vitesse est  $V_G = 30 \mu\text{m.s}^{-1}$ .

$$\Lambda_{max} = 54.6G^{-0.47}V_G^{-0.23} \quad (6.1)$$

$$\Lambda_{min} = 15.9G^{-0.47}V_G^{-0.23} \quad (6.2)$$

En reportant la relation  $G(x)$  dans (6.1) et (6.2), nous obtenons les valeurs des limites de stabilité pour chaque position le long du front :

$$\Lambda_{max}(x) = 54.6V_G^{-0.23} \left( (-25.6 - \frac{23484}{x(x-43.5)}) 10^{-4} \right)^{-0.47} \quad (6.3)$$

$$\Lambda_{min}(x) = 15.9V_G^{-0.23} \left( (-25.6 - \frac{23484}{x(x-43.5)}) 10^{-4} \right)^{-0.47} \quad (6.4)$$

Afin de vérifier l'hypothèse quasi-stationnaire, nous comparons, aux trois vitesses étudiées, les tailles instables aux bornes données à l'endroit de l'instabilité par les relations (6.3) et (6.4). La figure ?? représente, pour chaque valeur de vitesse, les points expérimentaux et les courbes correspondants aux équations (6.3) et (6.4). L'accord obtenu est très satisfaisant pour les éliminations. Les tendances sont également vérifiées pour les créations. Cependant, on observe un désaccord entre les instabilités dans le cas homogène et le cas inhomogène. Ceci pourrait être dû aux incertitudes sur les équations (6.3) et (6.4).

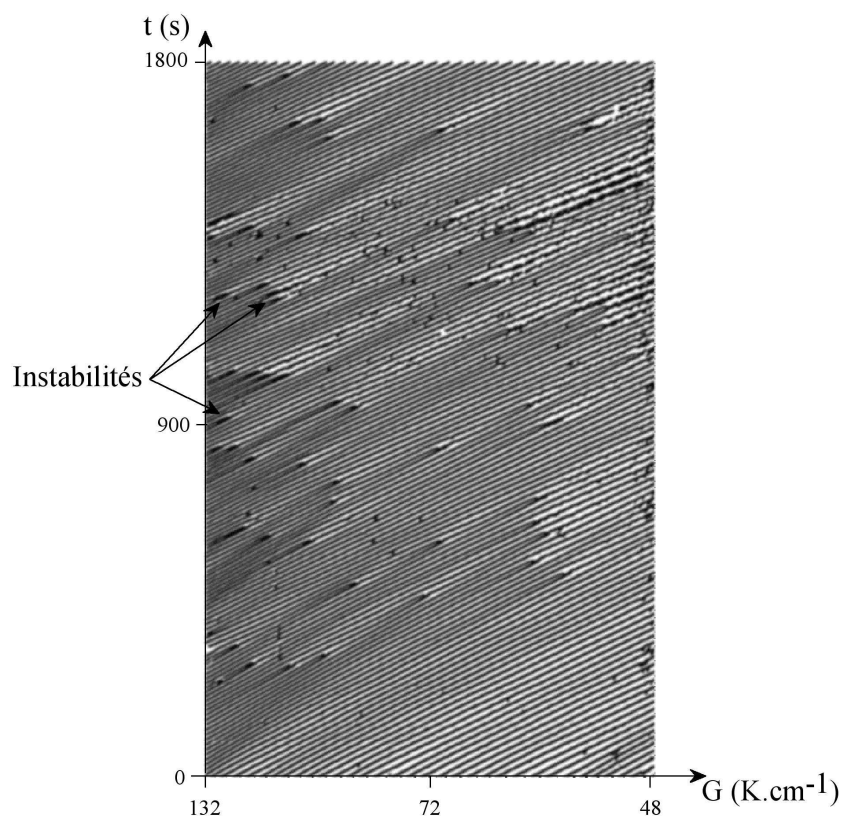


FIG. 6.21: Diagramme spatio-temporel de la même zone que la photo ??a mais pour une vitesse  $V_G = 30\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

### 6.3.3 Utilisation du dispositif

Le système utilisé permet aux dendrites de dériver dans un milieu jusqu'à y rencontrer des limites de stabilité. Deux phénomènes dominent alors : la vitesse de dérive des structures grâce à laquelle elles se déplacent le long du front ; les seuils de stabilité variables le long du front. Ceci nous conduit à étudier l'évolution à long terme des tailles moyennes.

#### Evolution des tailles moyennes

Nous parcourons le front lors des expériences en notant les tailles moyennes des structures et leurs positions. Les moyennes sont effectuées sur cinq dendrites voisines ne comportant pas de traces d'instabilités récentes et sont affectées à la dendrite centrale. Ces mesures sont effectuées à plusieurs intervalles de temps depuis le début de la croissance. Elles conduisent à des distributions de tailles le long du front présentées en figure ?? à  $V_G = 30\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  pour trois instants différents. On constate clairement une évolution des tailles de structures au cours du temps. La première mesure a lieu après 5 minutes de croissance, la seconde à 25 minutes et enfin la dernière à 45 minutes. Le front atteint alors un état permanent. On trace également sur la figure ?? les courbes de création et de disparition issues des relations (6.3) et (6.4).

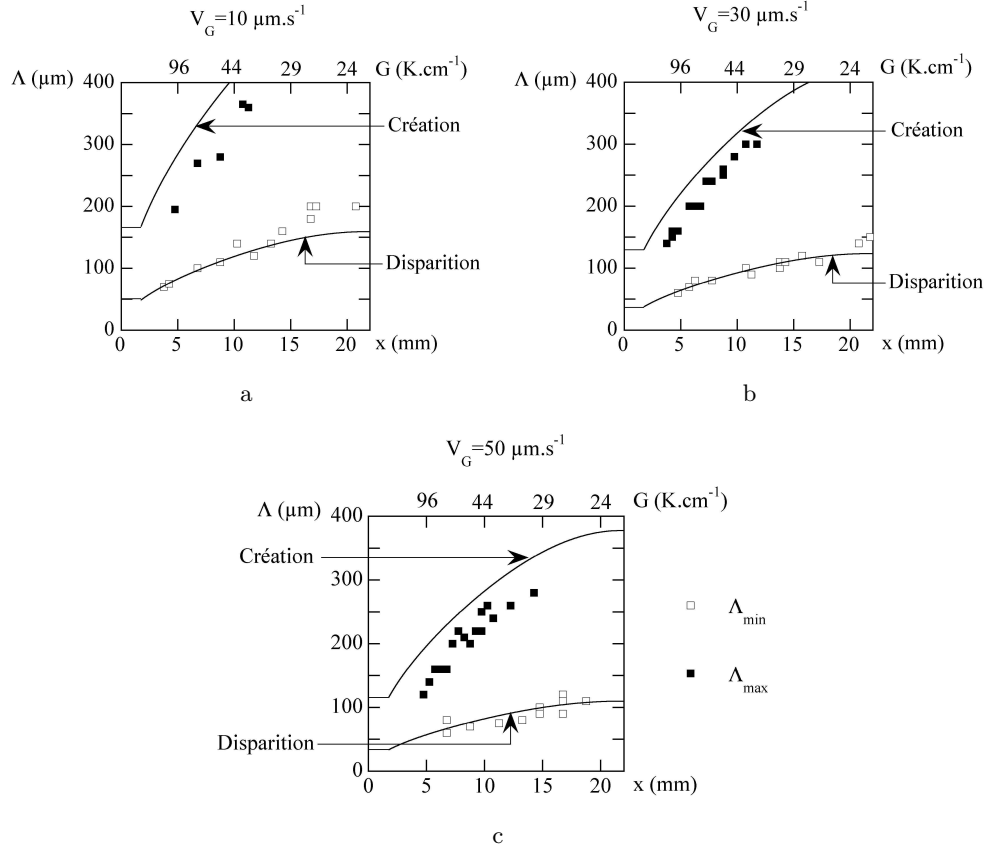


FIG. 6.22: Courbes de stabilité du chapitre 5 (traits pleins) comparées aux valeurs expérimentales obtenues de cette étude pour les trois vitesses données.

Après 5 minutes d'expérience, nous constatons que la courbe obtenue présente une forme de cloche (courbe rouge sur la figure ??). Cela s'explique par le fait que juste après la mise en route de l'expérience, le front plan se déstabilise et est le siège d'un grand nombre d'instabilités secondaires. Celles-ci engendrent une distribution de tailles qui suit les variations de  $\Lambda_{max}$  et  $\Lambda_{min}$  et donc de  $G$ .

Ensuite, durant la période transitoire (courbe verte sur la figure ??), les structures se déplacent à la vitesse  $V_d$  vers les  $x$  croissants. La déformation de la courbe se comprend en suivant l'évolution de deux ensembles de dendrites de tailles différentes à l'instant initial dans la zone  $x \in [0; 21.75]$  (Fig. ??).

La première dendrite (type 1) a une taille comprise entre les maxima des deux courbes de stabilité. Elle est donc supérieure au maximum  $\Lambda_{d,m}$  de la courbe de disparition. La seconde (type 2) présente une taille inférieure à ce maximum. La première dendrite dérive alors à sa vitesse  $V_d$  sans rencontrer de limite de stabilité de sorte que sa taille n'évolue pratiquement pas. En revanche, la seconde dendrite rencontre, après dérive, la limite de stabilité de la courbe de disparition. Ceci a pour effet de la faire disparaître et d'augmenter, en première approche, la taille de ses deux voisines. Ce mécanisme se répète jusqu'à ce que la taille des voisines dépasse le maximum de la courbe de stabilité. Les deux trajectoires sont représentées sur la figure ??a.



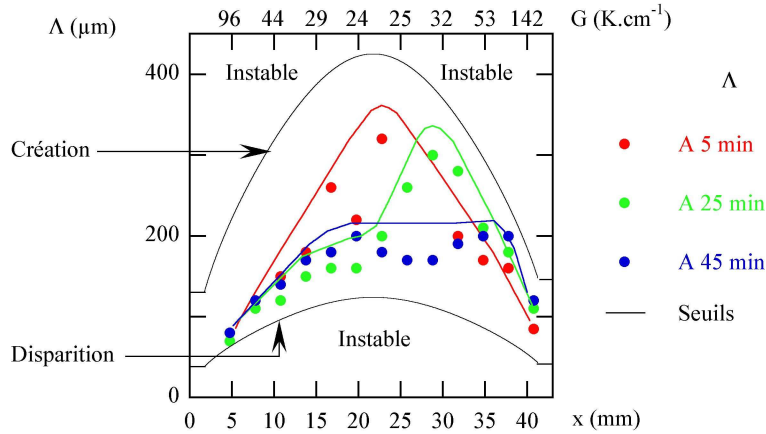


FIG. 6.23: Distribution des tailles pour  $V_G = 30\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  à trois instants donnés après le démarrage ( $t = 0\text{s}$ ) de l'expérience. On représente également les limites de stabilité. On constate une forte évolution des courbes de taille. Les traits fins sont des guides pour les yeux.

A l'issue de chacune des deux trajectoires, les dendrites présentent, dans la zone  $x \in [21.75; 43.5]$ , une taille initiale comprise entre les deux maxima des courbes de stabilité. Nous les appelons dendrites de type 3. Ces dendrites rencontrent, après dérive, la courbe d'instabilité de création. Un de leurs branchements devient alors une dendrite. Les deux structures résultantes alors présentent une taille plus faible que la dendrite initiale. Le processus se réitère jusqu'à ce que les dendrites soient stables. Cette trajectoire est représentée sur la figure ??b.

### Etat stationnaire

En observant la courbe finale des tailles (courbe bleue sur la figure ??), on note qu'au bout de 45 minutes, le front présente des tailles moyennes plus faibles qu'aux temps antérieurs. En première approximation, la distribution de tailles suit en particulier les limites de stabilité inférieure pour  $x < 21.75\text{mm}$  et les limites de stabilité supérieure pour  $x > 35\text{mm}$ . Elle semble par ailleurs constante entre les deux. L'état permanent atteint par le système est présenté schématiquement sur la figure ??a. L'épaisseur de la bande de dendrites stables obtenues est assez faible au regard de la bande de taille à laquelle le système peut prétendre. Il apparaît alors possible d'utiliser le système afin de réduire de manière conséquente la gamme de tailles accessibles. En effet, en adaptant le dispositif comme indiqué en figure ??b, il serait possible de sélectionner par instabilités successives, une faible bande de tailles stables.

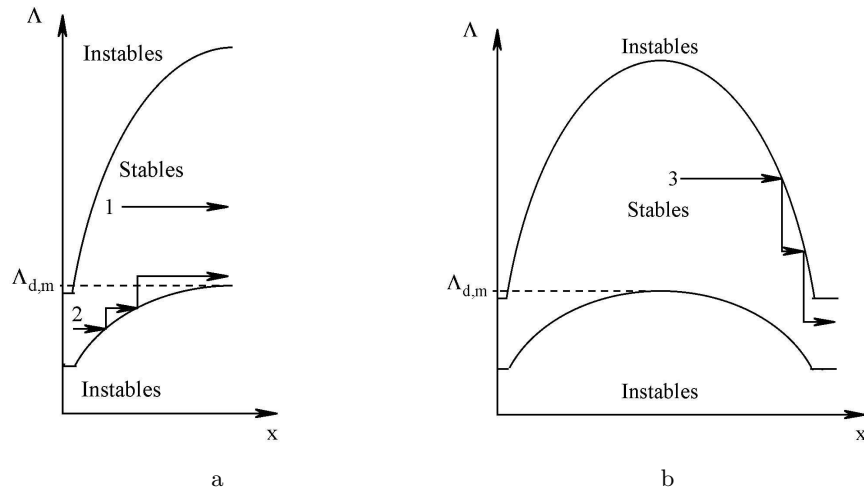


FIG. 6.24: Evolution schématique des dendrites entre les limites de stabilité. (a) La dendrite de type 1 n'évolue pas en taille. La dendrite de type 2 disparaît pour laisser place à ses voisines qui ont alors leur taille qui augmente. Le processus se répète. (b) La dendrite de type 3 rencontre la limite supérieure de stabilité qui a pour effet de créer des structures de plus petites tailles.

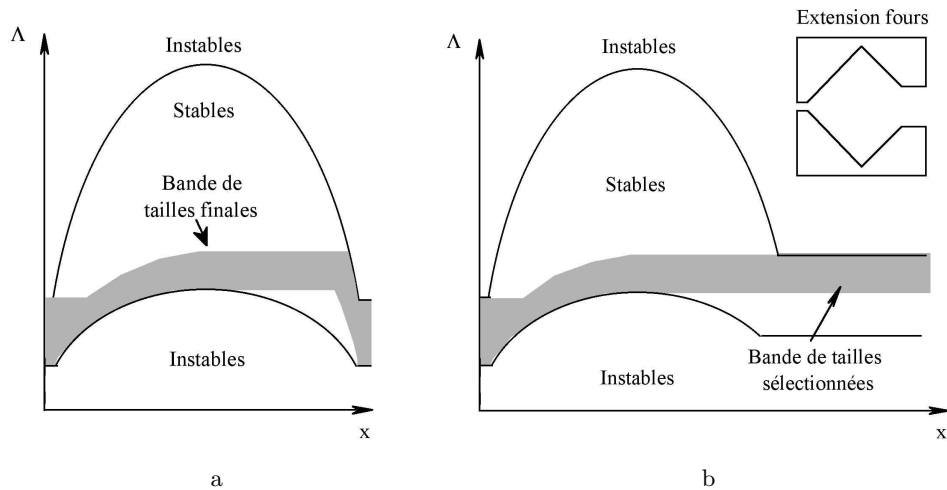


FIG. 6.25: Schémas représentant les états finals pour deux systèmes. (a) Le système actuel. (b) Un système appliqué à la sélection de taille.

### 6.3.4 Conclusion

L'étude des fronts présentant un gradient thermique variable a permis de constater que leurs structures sont gouvernées par le paramètre  $G$  local auquel elles sont soumises. Pour y parvenir, nous avons d'une part fabriqué un dispositif original permettant de former un gradient variable le long du front sans avoir à varier spatialement les températures des fours et d'autre part exploité le fait que les structures se déplacent le long du front à vitesse  $V_d$ .

Par ailleurs, le dispositif expérimental utilisé, permet, en régime asymptotique, de diminuer considérablement la gamme de taille accessible par le système. De ce fait, il est envisageable d'utiliser ce mécanisme dynamique afin de sélectionner, dans un dispositif adapté, une gamme de taille, voire une taille unique.

## 6.4 Conclusion sur les fronts inhomogènes

Au cours de ce chapitre, nous avons abordé un ensemble de situations qui s'écartent des configurations classiques de laboratoire en solidification directionnelle. Sur ces différentes configurations, nous avons vérifié la validité de l'hypothèse locale selon laquelle un état inhomogène peut être considéré localement comme un état homogène. Ceci permet ainsi d'appliquer les résultats obtenus sur la direction de croissance des structures en réseaux homogènes aux situations inhomogènes suivantes : réseau de dendrites de tailles variables ; réseau de dendrites sur un front courbé à grande échelle ; réseau de dendrites sur un front rectiligne le long duquel le gradient thermique varie.

En couplant ces différentes configurations, il serait *a priori* possible, en incluant les instabilités de création et de disparition dans le modèle cinématique utilisé, de prédire l'évolution de dendrites dans des situations complexes, comme celles rencontrées en métallurgie (creuset...).

Par ailleurs, le dispositif permettant de sélectionner les tailles des structures par dynamique d'instabilités offre des perspectives d'applications pratiques intéressantes. Il pourrait en effet conduire à sélectionner des tailles privilégiées du système, en vue d'obtenir, par une méthode relativement simple, des matériaux dont la concentration en soluté serait répartie de manière plus homogène.



# Conclusion

Lors de cette thèse, nous avons considéré des configurations de solidification directionnelle plus proches de celles rencontrées dans la nature ou l'industrie où ni les directions propres des cristaux ni l'homogénéité des variables ne sont *a priori* contrôlées ou imposées. Dans ce but, nous avons étudié les effets de l'anisotropie cristalline sur les microstructures de solidification et ses implications dans des conditions inhomogènes. Notre étude a permis de dégager trois points principaux :

1) Nous avons déterminé une loi de croissance des structures en fonction des variables du problème pour des fronts rectilignes dans des conditions homogènes en taille de dendrite et en gradient thermique. Pour cela, nous avons conduit une étude exhaustive des directions de croissance  $\Theta$  des cellules et dendrites de succinonitrile en fonction de l'angle d'ouverture  $\Theta_0$  entre la direction principale d'anisotropie et la direction du gradient thermique, de la vitesse du front et des tailles des structures. Nous avons élaboré un traitement original de données permettant d'aboutir à une relation fonctionnelle faisant émerger une loi algébrique en nombre de Péclet  $Pe$ . Cette loi d'orientation des structures implique un regroupement non-linéaire des données expérimentales :

$$\begin{aligned}\Theta/\Theta_0 &= [1 + \alpha(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1} \\ \alpha(\Theta_0) &= 1.1[1 - (\Theta_0/46)^4]\end{aligned}$$

Elle est indépendante du gradient de température et de la nature des matériaux tant que  $\Theta_0$  reste suffisamment petit :  $\Theta_0 < 30^\circ$ . Au-delà, les différences de réponse entre les matériaux ont conduit à définir une nouvelle taille des structures, prise hors branchement, par un algorithme indépendant du matériau et de la structure. La prise en compte de cette taille dans le nombre de Péclet a modifié la loi expérimentale en une loi universelle indépendante du gradient thermique, de l'angle d'ouverture et de la nature de l'alliage.

2) Nous avons exploré les gammes de stabilité des structures en fonction des paramètres usuels de vitesse et de gradient thermique ainsi que des angles d'ouverture. Ceci a conduit à dresser le diagramme de stabilité borné par les instabilités de création et d'élimination. La limite de stabilité vis-à-vis du mode dégénéré a également été caractérisée. Dans chacun des cas, l'angle d'ouverture joue un rôle important sur les limites de stabilité : la bande de stabilité vis-à-vis des instabilités secondaires s'est ainsi révélée augmenter d'un facteur 1.5 entre  $\Theta_0 = 0^\circ$  et  $\Theta_0 = 35^\circ$  ; la transition au mode dégénéré, représentée par le nombre de Péclet en dessous duquel le front est totalement déstabilisé, n'apparaît qu'au-

dessus de l'angle d'ouverture  $36^\circ$  et augmente fortement avec  $\Theta_0$ .

3) Nous avons testé une hypothèse "locale" selon laquelle un front inhomogène peut être approché localement par un état homogène. Afin de la vérifier sur des fronts courbés ou inhomogènes en tailles, nous avons mis au point un modèle numérique issu d'une cinématique locale de sillon permettant une comparaison avec les trajectoires expérimentales des dendrites. L'approximation locale a alors été vérifiée non seulement pour les deux types de fronts ci-dessus mais également vis-à-vis des instabilités de création et de disparition le long de front à gradient thermique variable. Le dispositif expérimental créé à cet effet a par ailleurs servi à la sélection dynamique par instabilité d'une bande étroite de tailles stables.

Nous avons obtenu une loi expérimentale universelle sur l'orientation des structures de solidification variant entre deux asymptotes de nature très différentes : l'une d'origine microscopique liée à la structure cristalline du matériau ; l'autre d'origine macroscopique donnée par le gradient thermique. Malgré ces différences, nous avons cependant abouti à une réponse expérimentale en orientation unique, indépendante de la nature de l'alliage. Ceci appelle à sa vérification numérique par exemple par les méthodes de champ de phase.

Le modèle numérique cinématique, ainsi que le dispositif expérimental conçu pour l'étude de gradients thermiques variables le long du front offrent enfin des perspectives intéressantes quant à la maîtrise et la prédiction de l'évolution des tailles des microstructures le long de fronts quelconques.

# Articles



## Etude expérimentale de fronts inclinés en solidification directionnelle

J. Deschamps, A. Pocheau et M. Georgelin

*Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Equilibre*  
*Technopôle de Château-Gombert - 49, rue Joliot Curie - 13084 Marseille*  
 deschamps@irphe.univ-mrs.fr

### Résumé

Nous étudions l'orientation des cellules de croissance directionnelle lorsque la direction du gradient thermique, la direction privilégiée par l'anisotropie du cristal et la direction de poussée dans le gradient sont distinctes. L'expérience est réalisée dans un échantillon en lame mince rempli d'un alliage dilué de succinonitrile et pour des isothermes planes. Seules les deux premières directions sont dans ce cas pertinentes. La direction d'avancée des cellules se place alors entre celle du gradient et celle privilégiée par l'anisotropie, d'une manière qui s'avère dépendante du nombre de Péclet des cellules et de l'ouverture entre ces deux directions limites. Nous clarifions le couplage entre ces variables, l'homothétie des réponses en orientation des cellules, leurs transitions morphologiques et les relations respectives entre ces différents phénomènes.

## 1 Introduction

La solidification d'un matériau dans un gradient de température variable est le mécanisme dominant de production de la plupart des solides qui nous entourent. Son étude a donné lieu à des configurations modèles pour lesquelles les champs physiques importants ont été considérés, par souci de simplification, uniformes et parallèles. Ainsi, la plupart des montages expérimentaux de croissance réalisés en couche mince, de même que les travaux théoriques associés, se sont inscrits dans le cadre où le gradient de température  $\mathbf{G}$ , la vitesse de croissance  $\mathbf{V}$  par rapport aux isothermes et la direction privilégiée de croissance  $\mathbf{a}$  sous l'effet de l'anisotropie sont uniformes et parallèles à une même direction :  $\mathbf{G} \parallel \mathbf{V} \parallel \mathbf{a}$ .

Ces études modèles de croissance directionnelle ont considérablement accru la connaissance de la morphologie et de la dynamique des structures de croissance d'alliages binaires. Sur cette base, il apparaît maintenant utile de déterminer les spécificités que pourraient entraîner, dans des conditions plus naturelles, les variations des trois champs de croissance :  $\mathbf{G}$ ,  $\mathbf{V}$  et  $\mathbf{a}$  (Fig. 1).

Dans une première étape, l'expérience présentée ici se propose de conserver un gradient de température  $\mathbf{G}$  et une direction privilégiée de croissance  $\mathbf{a}$  *homogènes*, tout en variant leur *direction* par rapport à la vitesse  $\mathbf{V}$  de poussée de l'échantillon :  $(\mathbf{V}, \mathbf{G}) = \theta_0 \neq 0$ ,  $(\mathbf{V}, \mathbf{a}) = \theta_1 \neq 0$ .

Dans cette configuration, les isothermes sont planes, de sorte que la composante tangentielle de la vitesse de poussée sur celles-ci se rapporte à une vitesse de glissement du milieu en croissance le long des lignes d'iso-température (Fig. 1). Ce mouvement étant sans effet physique, seule la composante normale  $V_n = \mathbf{V} \cdot \mathbf{G} / G$  de la vitesse de poussée  $\mathbf{V}$  dans la direction du gradient  $\mathbf{G}$  influera sur la croissance. Par simplicité pratique, nous conserverons cependant dans la suite la direction de  $\mathbf{V}$  comme axe de référence.

L'objet de l'étude sera l'orientation et la stabilité des cellules de croissance pour des directions  $(\theta_0, \theta_1)$  quelconques, un gradient thermique  $\mathbf{G}$  et une vitesse de poussée  $V$  variable. En particulier, en notant  $\theta$  l'angle de la direction de croissance des cellules avec la direction de référence  $\mathbf{V}$ , nous chercherons à déterminer la réponse en orientation des cellules  $\theta = \varphi(\theta_0, \theta_1, V_n, \Lambda)$  aux inclinaisons du gradient thermique,  $\theta_0$ , ou de l'axe privilégié de croissance,  $\theta_1$ , aux variations de vitesse de poussée effective  $V_n = \mathbf{V} \cdot \mathbf{G} / G$  et de largeur cellulaire  $\Lambda$  (Fig. 1).

## 2 Configuration et méthode expérimentales

Usuellement, les expériences de solidification directionnelles sont menées pour  $\theta_0 = \theta_1 = 0$  selon le dispositif classique introduit par Jackson et Hunt (Fig. 2a) [1]. Celui-ci est constitué de deux fours de températures différentes,  $T_2 > T_1$ , distants de  $l$ , qui créent un gradient  $G = (T_2 - T_1)/l$  dans lequel un échantillon en lame mince est poussé à vitesse  $\mathbf{V} // \mathbf{G}$ .

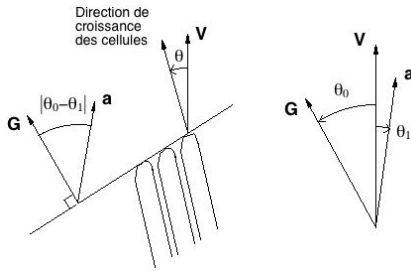


FIG. 1 – Représentation des trois champs de croissance  $\mathbf{G}, \mathbf{V}$  et  $\mathbf{a}$ , ainsi que des angles associés  $\theta_0, \theta_1$  et  $\theta$ .

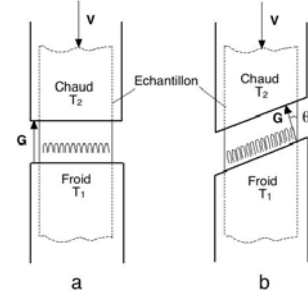


FIG. 2 – a) Schéma du dispositif usuel de croissance directionnelle :  $(\mathbf{V}, \mathbf{G}) = 0$ . b) Schéma du dispositif utilisé ici où les fours sont inclinés de  $\theta_0$  par rapport à la direction de croissance :  $(\mathbf{V}, \mathbf{G}) = \theta_0 \neq 0$ .

L'échantillon est rempli ici d'un alliage dilué de succinonitrile en couche mince ( $4\text{cm} \times 15\text{cm} \times 50\mu\text{m}$ ). La gamme de vitesse s'étend de  $5\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  à  $50\mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  et  $\mathbf{G}$  vaut  $140\text{K} \cdot \text{cm}^{-1}$ . L'angle  $\theta_1$  représente l'orientation d'un mono-grain sélectionné par tirage d'un germe unique. Usuellement, ceci est réalisé selon l'axe de l'échantillon, i.e. la direction  $\mathbf{V}$ , de sorte que  $\theta_1 = 0$ . Changer  $\theta_1$  revient ainsi à sélectionner un nouveau mono-grain dans l'ensemble de l'échantillon, ce qui est long, délicat et source d'imprécisions. Il apparaît donc préférable de conserver le même grain, donc le même  $\theta_1$ , le plus souvent possible et de varier plutôt l'angle  $\theta_0$  en modifiant l'orientation des fours (Fig. 2b). Ceux-ci étant usinés finement, ce changement angulaire peut être accompli de manière reproductible à une grande précision et sans accumulation d'erreur. En pratique, l'angle  $\theta_1$  a pris les valeurs suivantes sur les différents échantillons,  $0.7^\circ, 7.9^\circ, 14^\circ, 26.6^\circ, 29.3^\circ, 43.1^\circ$  et l'angle  $\theta_0$  a été modifié sur chacun par sauts de  $5^\circ$  à  $10^\circ$  sur une gamme de  $0^\circ$  à  $45^\circ$ .

L'angle  $\theta$  repère la direction de croissance des pointes de cellules par rapport à la direction de référence  $\mathbf{V}$  (Fig. 3a). Il est à noter qu'elle diffère de la direction de l'axe des sillons car ceux-ci sont soumis à un processus de refonte en aval des pointes. Pour mesurer  $\theta$ , il convient de déterminer la position des pointes de cellules à chaque instant, puis de

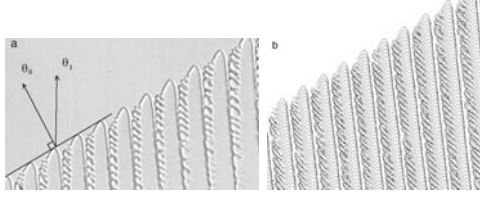


FIG. 3 – a) Image brute du front pour  $\theta_0 = 29.9^\circ$ ,  $\theta_1 = -0.7^\circ$ ,  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ,  $V = 30\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . b) Trajectoire des pointes de cellules dans un diagramme spatio-temporel de leur mouvement. On remarque que, suite aux refontes en aval des pointes, l'orientation des sillons de dendrites en (a) diffère de celle des lignes d'accumulation des trajectoires en (b). La largeur des images correspond à 1.2mm.

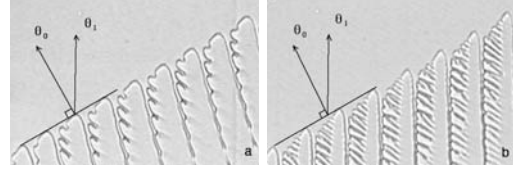


FIG. 4 – a) Image du front pour  $\theta_0 = 29.9^\circ$ ,  $\theta_1 = -0.7^\circ$ ,  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ,  $V = 10\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . b) Même configuration mais pour  $V = 50\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . On note que pour de faibles vitesses, les dendrites s'orientent selon  $\theta_0$  alors que pour des vitesses plus élevées, elles s'inclinent selon  $\theta_1$ . La largeur des images correspond à 1mm.

reconstituer leur trajectoire. Pour cela, les contours de l'interface sont extraits à intervalle de temps régulier  $\tau$  d'un film de l'interface, puis superposés après décalage constant d'une quantité  $\mathbf{V}\cdot\tau$  dans la direction de poussée  $\mathbf{V}$ . On recompose ainsi le chemin suivi par les pointes de cellules dans l'échantillon (Fig. 3b).

La direction de poussée par rapport à laquelle les angles  $\theta_0$ ,  $\theta_1$  sont comptés étant sans statut physique, seules les différences angulaires  $\Theta = |\theta - \theta_1|$  et  $\Theta_0 = |\theta_0 - \theta_1|$  seront pertinentes. Elles reviennent à prendre la direction privilégiée de croissance  $\mathbf{a}$  comme direction de référence pour la discussion physique.

### 3 Résultats expérimentaux

Lorsqu'on pousse, pour  $\theta_1 \neq 0$ , l'échantillon au-delà de la vitesse critique de Mullins-Sekerka [2], l'interface plane solide/liquide se déstabilise en un réseau de cellules asymétriques. A plus haute vitesse, celles-ci émettent des branchements et deviennent dendritiques (Fig. 3, 4).

La gamme d'observations s'est étendue de  $\Theta_0 = 5.7^\circ$  à  $43.1^\circ$ . Notons que, par raison de symétrie du cristal, elle ne peut dépasser  $45^\circ$  sous peine d'induire la croissance du branchement orthogonal pour lequel l'angle  $\Theta_0$ , complémentaire du précédent, reviendrait alors sous les  $45^\circ$ .

Pour  $\Theta_0$  et  $\Lambda$  donnés, on constate, à faibles vitesses de poussée  $V$ , que les cellules sont orientées selon une direction proche de la direction du gradient  $\mathbf{G}$  (Fig. 4a). A plus haute vitesse  $V$ , leur direction de croissance s'oriente sur une direction fixe asymptotique  $\mathbf{a}'$  voisine de celle du grain  $\mathbf{a}$  (Fig. 4b). La différence entre  $\mathbf{a}'$  et  $\mathbf{a}$ , si elle existe, n'étant pas mesurable, nous admettrons dans la suite que ces deux directions sont confondues. Le même type de comportement est observé en fixant  $\Theta_0$  et  $V$  et en augmentant la taille  $\Lambda$  des cellules. Cette dualité est confirmée dans la figure 5 où, pour chaque angle d'ouverture  $\Theta_0$  entre  $\mathbf{G}$  et  $\mathbf{a}$ , les angles  $\Theta$  se placent sur une même courbe fonction du nombre de Péclet  $Pe = \Lambda V_n/D$ . On retrouve en particulier les orientations limites :  $\Theta = \Theta_0$ , i.e.  $\theta = \theta_0$ , à bas  $Pe$  et  $\Theta = 0$ , i.e.  $\theta = \theta_1$ , à haut  $Pe$ .

L'angle d'ouverture  $\Theta_0$  détermine donc la gamme de variation de l'orientation  $\Theta$  des

cellules. Pour investiguer les implications de la largeur de gamme  $\Theta_0$  envers la forme de la courbe de réponse en orientation  $\Theta(Pe)$ , nous considérons la variation réduite  $\Theta/\Theta_0$  en fonction de  $Pe$ . Deux comportements sont observés. Pour  $\Theta_0 < 30^\circ$ , une courbe de réponse commune apparaît en variable réduite (Fig. 6a) : ceci montre que les courbes initiales  $\Theta(Pe)$  étaient homothétiques. Pour  $\Theta_0 > 30^\circ$ , les courbes de réponse en variable réduite restent distinctes (Fig. 6b) : les formes mêmes des courbes initiales sont donc différentes. La synthèse de ces comportements indique que la réponse en orientation  $\Theta$  des cellules est une fonction à deux variables  $\Theta = g(Pe, \Theta_0)$  qui est plus que linéaire en  $\Theta_0$  comme le souligne la figure 7. Elle ne peut donc pas en particulier être à variables séparables car une écriture sous la forme  $\Theta = h(\Theta_0)k(Pe)$  conduirait, pour  $Pe = 0$ , à  $h(\Theta_0) = g(0, \Theta_0) = \Theta_0$ , i.e. à une variation linéaire en  $\Theta_0$ . La réponse en orientation du système met ainsi en jeu un couplage entre le nombre de Péclet  $Pe$  et l'angle d'ouverture  $\Theta_0 = (\mathbf{a}, \mathbf{G})$ . De ce fait, elle doit être étudiée dans l'espace bidimensionnel  $(Pe, \Theta_0)$ .

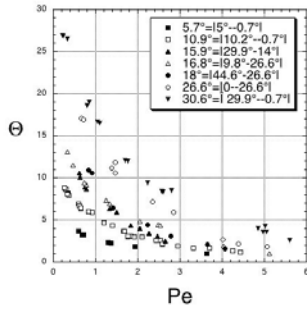


FIG. 5 – Evolution de  $\Theta$  pour différents  $\Theta_0 < 30^\circ$ . Dans la légende sont explicitées les valeurs de  $\Theta_0$ .

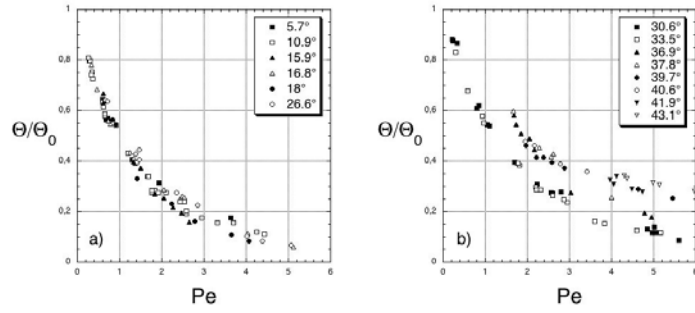


FIG. 6 – Evolution de  $\Theta/\Theta_0$  en fonction de  $Pe$ . On distingue deux régimes: a)  $\Theta_0 < 30^\circ$ , le comportement est décrit par  $\Theta/\Theta_0 = f(Pe)$ . b)  $\Theta_0 > 30^\circ$ , le comportement est décrit par  $\Theta = g(Pe, \Theta_0)$ .

La figure 6b montre par ailleurs une interruption des points expérimentaux à bas Péclet pour  $\Theta_0 \gtrsim 30^\circ$ . Ceci correspond à une transition morphologique conduisant pour les basses vitesses de croissance à des coupures de pointes répétitives réminiscentes de la croissance en algues (Fig. 9a) [5]. Dans ce mode "dégénéré" [5], la morphologie des structures de croissance est évolutive et très couplée à leurs voisines, ce qui interdit en pratique la définition d'une direction stable de croissance. Pour des vitesses plus élevées, le front retrouve cependant une structure dendritique (Fig. 9b). Le nombre de Péclet limite  $Pe_l$  de cette transition est reporté en fonction de  $\Theta_0$  en figure 8. Il apparaît croissant au delà d'un seuil proche de  $\Theta_0 = 30^\circ$  et voisin de la valeur de  $\Theta_0$  au delà de laquelle les courbes  $\Theta/\Theta_0(Pe)$  de la figure 6 ne sont plus superposables. Il est ainsi intéressant de constater que la rupture d'homothétie des courbes de réponse en orientation des cellules coïncide avec la transition morphologique au mode dégénéré.

## 4 Discussion

Deux directions importantes orientent ainsi la croissance des cellules : la direction du gradient thermique  $\mathbf{G}$  et celle,  $\mathbf{a}$ , de croissance privilégiée par anisotropie. La direction de

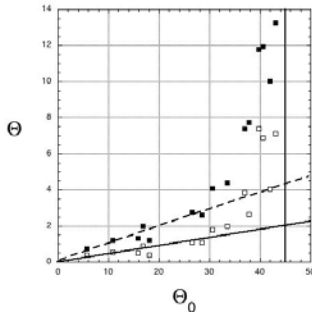


FIG. 7 – Représentation de la dérive pour deux  $Pe$  fixés: ■  $Pe = 5$ , □  $Pe = 10$ . La ligne oblique pleine (resp. pointillée) est un guide pour les yeux dans le régime  $\Theta < 30^\circ$  pour  $Pe = 5$  (resp.  $Pe = 10$ ).

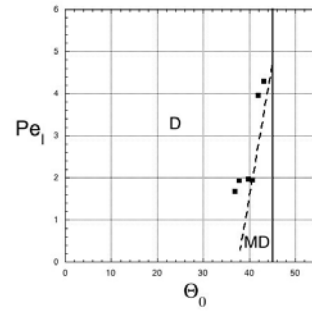


FIG. 8 – Représentation de  $Pe_l$  en fonction de  $\Theta_0$ . La ligne pointillée sépare deux domaines d'existence: D mode dendritique (carrés pleins), MD mode dégénéré. La ligne s'interrompt volontairement à  $Pe = 0.1$ , limite de notre étude.

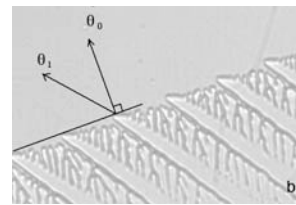
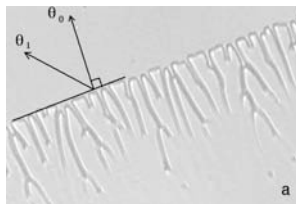


FIG. 9 – a) Mode dégénéré pour  $\theta_0 = 20^\circ$ ,  $\theta_1 = 60.6^\circ$ ,  $\Theta_0 = 40.6^\circ$ ,  $V = 12\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . b) Mode dendritique pour  $V = 50\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  à autres conditions inchangées. La largeur des images correspond à 1mm.

croissance des cellules reste intermédiaire entre les deux selon une proportion réglée par le nombre de Péclet  $Pe = V_n\Lambda/D$ .

Ce résultat corrobore, pour tout angle d'ouverture  $\Theta_0$ , les conclusions d'une étude expérimentale [3] effectuée aux deux angles  $\Theta_0 = 30^\circ$  et  $40^\circ$  dans une configuration où  $\mathbf{G}\parallel\mathbf{V}$ , ainsi que celles de deux études numériques effectuées à  $\Theta_0 = 17^\circ$  et à  $\Theta_0 = 30^\circ$  [3, 4]. La comparaison de ces deux courbes de réponse expérimentales  $\theta(Pe, 30^\circ)$  et  $\theta(Pe, 40^\circ)$  a montré des asymptotes différentes à grand  $Pe$  ( $\theta \rightarrow \Theta_0 = 30^\circ$  ou  $40^\circ$ ), mais des pentes à petit  $Pe$  identiques. Ceci indique que ces courbes ne sont pas homothétiques, ce que confirme notre étude en l'étendant à tout angle  $\Theta_0$  supérieur à  $30^\circ$ . La dépendance de l'orientation des cellules à l'angle  $\Theta_0$  a été par ailleurs investiguée par simulation numérique à Péclet fixé à  $Pe = 2.925$  [3]. Une tendance linéaire a été observée à faible  $\Theta_0$  suivie par une infléchissement notable. Cette observation de la loi  $\Theta(2.925, \Theta_0)$  à  $Pe$  fixé ne peut cependant préjuger de la loi générale  $\Theta(Pe, \Theta_0)$  et, notamment, de la validité d'un découplage des deux variables  $Pe$  et  $\Theta_0$  dans certains domaines de paramètres. Pour ce faire, une étude bidimensionnelle dans l'espace  $(Pe, \Theta_0)$  est nécessaire.

En autorisant une variation aisée de l'angle entre le gradient  $\mathbf{G}$  et la vitesse  $\mathbf{V}$ , l'expérience présentée ici nous a permis d'investiguer un large domaine de l'espace  $(Pe, \Theta_0)$ . Ceci nous a conduit à conclure au découplage de l'influence des variables  $Pe$  et  $\Theta_0$  aux faibles  $\Theta_0$  et à leur couplage au delà. En particulier, pour  $\Theta_0 < 30^\circ$ ,  $\theta = \Theta_0 g(Pe)$

alors que, pour  $\Theta_0 > 30^\circ$ , cette séparation n'a pas cours. Pour préciser ce changement de comportement, nous avons réalisé un ajustement des données expérimentales à une famille de fonctions  $\Theta(Pe)$  décroissant entre 1 et 0 :  $\Theta = (1 + aPe^b)^{-1}$ , les paramètres  $a$  et  $b$  étant fonction de  $\Theta_0$ . Cet ajustement bidimensionnel conduit à un paramètre  $b$  constant mais à un paramètre  $a$  constant jusqu'à  $\Theta_0 \approx 25^\circ$  puis décroissant d'un facteur 3 jusqu'à  $\Theta_0 = 45^\circ$ .

La non-linéarité de la réponse en orientation de la cellule se trouve ainsi principalement contenue dans la fonction  $a(\Theta_0)$ . Celle-ci constitue de ce fait un guide pour la compréhension de l'orientation des cellules mais aussi un challenge de la prise en compte couplée des phénomènes de transport et d'anisotropie en croissance directionnelle.

## 5 Conclusion

Nous avons étudié expérimentalement l'orientation  $\mathbf{n}$  des cellules de croissance directionnelle en fonction des directions du gradient de température  $\mathbf{G}$ , de la vitesse de poussée  $\mathbf{V}$  du milieu dans le gradient et de celle,  $\mathbf{a}$ , privilégiée par l'anisotropie. Notre méthode expérimentale nous a permis d'explorer l'espace  $(Pe, \Theta_0)$  des nombres de Péclet  $Pe = \Delta V_n / D$  et des angles d'ouverture  $\Theta_0 = (\mathbf{a}, \mathbf{G})$ . Ceci nous a conduit à corroborer une variation en  $Pe$  des orientations  $\Theta = (\mathbf{a}, \mathbf{n})$  de croissance des cellules, puis à démontrer un découplage à bas  $\Theta_0$  des influences respectives des variables  $Pe$  et  $\Theta_0$ , suivi d'un couplage notable de ces variables au delà.

La compréhension de la non-linéarité de la réponse en orientation des cellules, et donc de la forme de la relation  $\Theta(Pe, \Theta_0)$ , s'avère un enjeu notable pour appréhender les mécanismes influençant la croissance, qu'ils soient d'origine microscopique (anisotropie), macroscopique (gradient thermique), ou couplés.

## Références

- [1] K. A. Jackson, J. D. Hunt, *Acta Metall.* **13** (4), 1212, 1965.
- [2] W.W. Mullins, R.F. Sekerka, *J. Appl. Phys.*, **30**, 444, 1964.
- [3] S. Akamatsu, T. Ihle, *Similarity law for tilt angle of dendrites in directional solidification of non-axially-oriented crystals*, *Phys. Rev. E*, **56** (4), 4479, 1997.
- [4] T. Okada, Y. Saito, *Simulation of unidirectional solidification with a tilted crystalline axis*, *Phys. Rev. E*, **54** (1), 650, 1996.
- [5] S. Akamatsu, G. Faivre, T. Ihle, *Symmetry-broken double fingers and seaweed patterns in thin-film directional solidification of a nonfaceted crystal*, *Phys. Rev. E*, **51** (5), 4751, 1995.

## Crystal anisotropy and growth directions in directional solidification

J. DESCHAMPS, M. GEORGELIN and A. POCHEAU

*IRPHE, Universités Aix-Marseille I & II, CNRS, Technopôle de Château-Gombert  
49 rue Joliot-Curie, B.P. 146, F-13384 Marseille, Cedex 13, France*

received 13 April 2006; accepted in final form 17 August 2006

published online 8 September 2006

PACS. 68.70.+w – Whiskers and dendrites (growth, structure, and nonelectronic properties).

PACS. 81.10.Aj – Theory and models of crystal growth; physics of crystal growth, crystal morphology, and orientation.

PACS. 81.30.Fb – Solidification.

**Abstract.** – In directional solidification, the growth directions of cells and dendrites into the melt vary with the pulling velocity from the direction of the thermal gradient to that of a principal crystalline axis. We experimentally determine them in a succinonitrile alloy in the whole available range of variables. Data reveal a non-linear collapse onto a master curve that synthesizes the orientational response of cells and dendrites to the growth conditions.

Solidification of a material from a melt involves solid-liquid interfaces that advance into the liquid phase as the phase change proceeds. When they are rough at the atomic scale, these interfaces get distorted by morphological instabilities into needle forms called cells, possibly emitting sidebranches, so-called dendrites. The form of these growing structures then monitors the microsegregation process and thus the main features of the resulting solid [1, 2]. In directional solidification where growth proceeds in a thermal gradient, the dynamics and the morphology of cells and dendrites however strongly depend on their growth direction in the melt frame [1–12]. In particular, a direction tilted with respect to the thermal gradient promotes the development of secondary branches on dendrites and makes both cells and dendrites drift along the interface. Interestingly, for increasing pulling velocity, the growth direction is found to rotate from a macroscopically defined direction, that of the thermal gradient, to a microscopically prescribed direction, that of a principal axis of the crystalline solid [1–12]. However, following the experimental difficulties in accurately monitoring the direction of crystalline axes, growth directions have been finely studied for few configurations only [3–6]. Despite the paramount importance of these directions for the local and global dynamics of growth interfaces, one thus lacks a global ground for analyzing and modeling their implications on the overall interface dynamics and on the resulting material microstructure. This has motivated us to achieve an exhaustive experimental study of the growth directions displayed by an anisotropic crystal growing in a thermal gradient.

In this letter, we determine the evolution of the growth direction of cells and dendrites in a succinonitrile alloy in the whole available range of variables. We first finely document

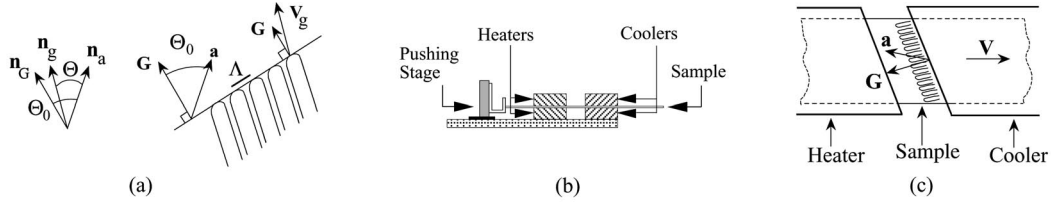


Fig. 1 – Sketch of the growth system and of the experimental set-up. (a) Characteristic directions of the growth system: the growth direction  $\mathbf{n}_g = \mathbf{V}_g/V_g$ , the heat flow direction  $\mathbf{n}_G = \mathbf{G}/G$  and the principal crystalline axis direction  $\mathbf{n}_a$ . The opening angle  $\Theta_0 = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$  denotes the misorientation between the crystal and the heat flow. The angle  $\Theta = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  specifies the growth direction. (b) Side view of the classical set-up of directional solidification. A sample is pushed at a prescribed velocity in a controlled thermal gradient aligned with the pushing direction. (c) Top view of the modified set-up. The thermal-gradient direction is rotated by turning the direction of the thermal boundaries.

experimentally this direction on the accessible range of pulling velocities, dendrite spacing, and misorientation angle between the thermal gradient and the principal crystalline axes. We next point out the main non-linear features of the resulting relationship, including the non-separability of its variables. However, turning attention to the relative values of growth directions, we evidence an unexpected collapse of data on a master curve whose internal symmetries select a power law for its form. This provides a non-linear relationship that synthesizes the evolution of the growth directions of growth structures in the present material.

Directional solidification consists in pulling a melt at a controlled velocity  $V$  in a thermal gradient  $\mathbf{G}$ . The solid-liquid interface, initially planar, destabilizes into cells above a critical velocity  $V_c$ . In steadily growing states, cells and dendrites advance in the steady liquid phase at a translation velocity  $\mathbf{V}_g$  which corresponds to their growth velocity with respect to the liquid medium. On the other hand, the crystalline order of the resulting solid provides preferred growth directions: the principal axes  $(1, 0, 0)$  of the crystal. This is reflected in the orientations of faceted crystals but, interestingly, also in the growth direction  $\mathbf{n}_g = \mathbf{V}_g/V_g$  taken by rough interfaces. In free growth, this direction is simply the direction  $\mathbf{n}_a$  of a principal axis  $\mathbf{a}$  of the crystal [1, 2]. In directional solidification, it is found to move with the pulling velocity from the thermal gradient direction  $\mathbf{n}_G = \mathbf{G}/G$  to the principal axis direction  $\mathbf{n}_a$  [1–12].

To follow the rotation of the growth direction  $\mathbf{n}_g$ , we consider the angle  $\Theta = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  between the relevant principal crystalline axis  $\mathbf{a}$  and the growth direction  $\mathbf{n}_g$  and we denote  $\Theta_0 = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$  the angle between the directions of  $\mathbf{a}$  and  $\mathbf{G}$  (fig. 1a). For increasing pulling velocity, the angle  $\Theta$  then decreases from  $\Theta_0$  to 0 in a way that depends on  $\Theta_0$ ,  $V$ ,  $G$  and  $\Lambda$ , the distance between the tips of cells or dendrites. Our purpose is to clarify it in the whole accessible range of variables.

The selection by anisotropy of the growth direction of dendrites as a principal crystalline axis is well known in free growth [1, 2]. In directional solidification, the implications of anisotropy on the growth direction of dendrites have been noticed experimentally [1, 2, 7–11] and studied experimentally [3–6] and numerically [6, 12]. The first quantitative experimental studies revealed general trends but did not report on the cell or dendrite spacing [3, 5] or overlooked the Péclet number [4]. Later on, the variations of growth directions at a fixed pulling velocity observed in [5] have been shown in [6] to refer to the dendrite spacing  $\Lambda$ , the relevant variable to consider being the Péclet number  $Pe = \Lambda V/D$ , where  $D$  denotes the solutal diffusivity. Quantitative studies have then focused attention on definite opening angles



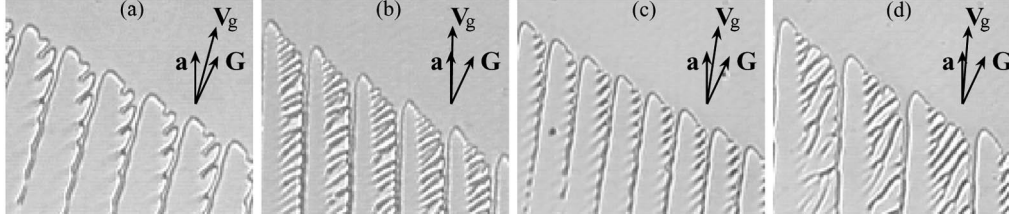


Fig. 2 – Effect of a change of velocity  $V$  (a,b), and dendrite spacing  $\Lambda$  (c,d) on the growth direction of dendrites.  $\Theta_0 = 30.6^\circ$ ,  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$ . (a)  $V = 10 \mu\text{ms}^{-1}$ ,  $\Lambda = 142 \mu\text{m}$ . (b)  $V = 50 \mu\text{ms}^{-1}$ ,  $\Lambda = 152 \mu\text{m}$ . (c)  $V = 30 \mu\text{ms}^{-1}$ ,  $\Lambda = 105 \mu\text{m}$ . (d)  $V = 30 \mu\text{ms}^{-1}$ ,  $\Lambda = 213 \mu\text{m}$ .

$\Theta_0$  or Péclet numbers  $Pe$ , experimentally ( $\Theta_0 = 32^\circ$  and  $40^\circ$ ,  $0.5 < Pe < 7$  [6]) or numerically ( $\Theta_0 = 30^\circ$ ,  $Pe = 2.92$  [6];  $\Theta_0 = 17^\circ$ ,  $Pe = 2.76$  [12]). They evidenced a response to either  $\Theta_0$  or  $Pe$  whose non-linear features call for an investigation of the *whole* surface  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  for characterizing the way dendrites adapt their growth direction to the growth conditions.

Our experimental set-up has been designed so as to enable a systematic study of dendrite growth directions on a large range of opening angles  $\Theta_0$  and Péclet numbers  $Pe$ . It is derived from a classical directional growth apparatus in which thin, wide and long samples,  $50 \mu\text{m} \times 4 \text{ cm} \times 15 \text{ cm}$ , are pushed at a constant velocity  $\mathbf{V}$  in a uniform thermal gradient  $\mathbf{G}$  aligned with the pulling direction (fig. 1b) [13]. Keeping this configuration where  $\mathbf{G}$  is fixed would have required varying the crystal orientation so as to scan the expected range of opening angles  $\Theta_0$ . This, in practice, would have called for iterative selections of various single-crystal orientations. To better allow the practical achievement of an exhaustive and accurate study, we preferred to manage instead a macroscopically defined direction, that of the thermal gradient. This was simply achieved by rotating the direction of the boundaries of the heaters and coolers that drive the thermal gradient  $\mathbf{G}$  (fig. 1c). This way, rotation steps of a few degrees could be routinely performed with an accuracy of  $0.1^\circ$ .

To allow *in situ* visualization of growth interfaces, we used a transparent plastic crystal, the succinonitrile, which involves rough interfaces that mimics the solidification of metals. Its melt contains ethylene as the dominant impurity at a concentration that provides a critical velocity of  $2.3 \mu\text{ms}^{-1}$  at  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$ . Determination of grain orientations was performed from the growth direction of rapidly solidifying dendrites. A selected grain was then used as a nucleus for the solidification of the whole sample, thereby yielding a unique single crystal. The selection procedure rejected seaweed structures. As a result, the crystal orientation involved a principal axis  $(1, 0, 0)$  normal to the sample plane. This was confirmed at large misorientation,  $\Theta_0 \approx 45^\circ$ , by the evidence of a degenerate mode instead of a seaweed mode or a doublon mode [11, 14]. According to this, the direction  $\mathbf{n}_a$  of another principal axis  $\mathbf{a}$  was sufficient for specifying the whole crystalline orientation. In practice, this direction was not determined from the crystal shape at equilibrium but from the growth direction of dendrites at large pulling velocities. We checked however that it actually corresponds to one of the directions displayed by the cross shape of freely growing germs.

The melting temperature was about  $56^\circ\text{C}$ , the gap between heaters and coolers 5 or 11 mm and the thermal gradient  $G = 140$  or  $70 \text{ Kcm}^{-1}$ . Pulling velocities extended from 5 to  $50 \mu\text{ms}^{-1}$  with relative fluctuations of 3% at most. They have been changed by step, care being taken to wait a sufficient time  $\tau \approx 300 \text{ s}$  for recovering equilibrium growth conditions:  $D/V^2 < 50 \text{ s} < \tau$ ,  $\Lambda^2/D < 30 \text{ s} < \tau$ ,  $D = 1.35 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ . At each velocity, a range of spacing  $\Lambda$  could be obtained depending on the growth history. Measurements only referred to steadily

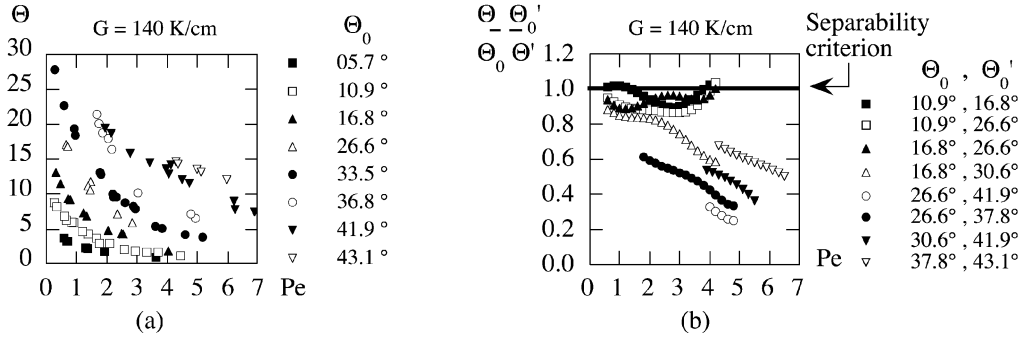


Fig. 3 – Growth direction  $\Theta = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  as a function of the Péclet number  $Pe$  for various opening angles  $\Theta_0 = (\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$ . (a) Data in the  $(\Theta, Pe)$  space for various  $\Theta_0$ . (b) Ratios  $\Theta/\Theta_0 \times \Theta'_0/\Theta'$  with  $\Theta \equiv \Theta(\Theta_0, Pe)$  and  $\Theta' \equiv \Theta'(\Theta'_0, Pe)$  as a function of  $Pe$ . They are deduced from data by continuous interpolation. If variables  $(\Theta_0, Pe)$  were separate in function  $\Theta(\Theta_0, Pe)$ , these ratios would be unity.

growing states involving the same spacing over a dozen of neighboring cells or dendrites. As solidification keeps on modifying the dendrite shape and thus its overall orientation while growth proceeds, the growth direction  $\mathbf{n}_g$  of dendrites in the liquid phase had to be determined from the trajectories of the dendrite tips revealed by spatio-temporal diagrams of the interface.

Figure 2 reports dendritic patterns referring to the same opening angle  $\Theta_0 = 30.6^\circ$  at  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$ . It shows asymmetric dendrites whose axes rotate toward the preferred crystalline direction as the pulling velocity (figs. 2a, b) or the dendrite spacing (figs. 2c, d) is increased. It also evidences secondary branches succeeding in growing up to the line joining the dendrite tips (figs. 2b, d). They then result in a noticeable increase of the spacing  $\Lambda$  between dendrites.

Following reference [6], one expects the dependence on pulling velocity and dendrite spacing to reduce to a dependence on the Péclet number. This is exemplified in fig. 2 by the fact that dendrites referring to the same opening angle  $\Theta_0$  rotate toward the preferred crystalline direction when either the pulling velocity (fig. 2b) or the dendrite spacing (fig. 2d) is increased. However, it is worth noticing here that the component of the pulling velocity normal to the thermal gradient only serves to make both the whole interface and the solute concentration field uniformly glide on the straight isothermal lines. This corresponds to a neutral mode of the growth system with no physical implication. In contrast, the component  $V_G$  of  $\mathbf{V}$  parallel to  $\mathbf{G}$  determines the rate at which the far solute concentration field is transported toward the mean interface. It thus stands here as the relevant velocity scalar to gauge the magnitude of advection. This yields us to generalize the definition of Péclet numbers  $Pe$  to the present case where  $\mathbf{V}$  and  $\mathbf{G}$  make an angle:  $Pe = V_G \Lambda / D$ , where  $V_G = \mathbf{V} \cdot \mathbf{n}_G$ .

Measurements of growth directions at  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$  are reported in fig. 3a for various opening angles  $\Theta_0$  and Péclet numbers  $Pe$ . They refer to velocities and spacings ranging from  $V = 5$  to  $50 \mu\text{ms}^{-1}$  and from  $\Lambda = 72$  to  $230 \mu\text{m}$ . They show a monotonous decrease of  $\Theta(Pe)$  from  $\Theta_0$  to 0. Data referring to large  $\Theta_0$  could not be obtained at low Péclet numbers because of a transition to another morphology, a degenerate mode [11], in which multiple growth directions are displayed. These data represent the first exhaustive experimental library of growth directions in a given material. Interestingly, the large density of experimental points provides us with the opportunity of identifying the law of variation  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  of the growth directions by data analysis.

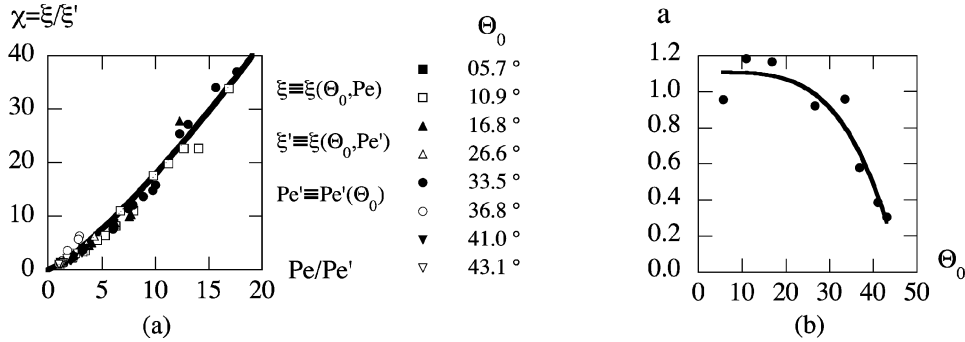


Fig. 4 – Evolution of the relative position  $\xi = (\Theta - \Theta_0)/\Theta$  with  $\Theta_0$  and  $Pe$ . (a) Collapse of the reduced values ( $\chi, Pe/Pe'$ ) on a single curve where  $\chi = \xi/\xi'$ ,  $\xi \equiv \xi(\Theta_0, Pe)$ ,  $\xi' \equiv \xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  and  $Pe' \equiv Pe'(\Theta_0)$ . Here  $Pe'$  and  $\xi'$  stand for normalization factors in each family of opening angles  $\Theta_0$ . The internal symmetry of the curve implies a power law form  $\xi(\Theta_0, Pe) = a(\Theta_0)Pe^b$ . Exponent  $b$  is found to be  $5/4$  (thick line). (b) Fit of prefactor  $a(\Theta_0)$  to the polynomial form  $a(\Theta_0) = \alpha[1 - (\Theta/\Theta_m)^\beta]$  with integer  $\beta$ . The optimal values are  $\alpha = 1.1$ ,  $\beta = 4$  and  $\Theta_m = 46^\circ$  (thick line).

For this, we first question the separation of variables  $(\Theta_0, Pe)$  in the relationship  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  by considering the ratios  $\Theta/\Theta_0 \times \Theta'_0/\Theta'$  in which  $\Theta \equiv \Theta(\Theta_0, Pe)$  and  $\Theta' \equiv \Theta'(\Theta'_0, Pe)$  refer to the *same*  $Pe$  but to different  $\Theta_0$  and  $\Theta'_0$ . In particular, separate variables would correspond to  $\Theta(\Theta_0, Pe) = \varphi(\Theta_0)\psi(Pe)$  and, following the initial condition  $\Theta(\Theta_0, 0) = \Theta_0$ , to  $\Theta/\Theta_0 = \psi(Pe)$ , so that the above ratios would be unity. Figure 3b shows that this is nearly so for small values of  $(\Theta_0, \Theta'_0)$  but definitely not when large values of opening angles are considered.

We next focus attention to the relative position  $\xi(\Theta_0, Pe) = (\Theta_0 - \Theta)/\Theta$  of the growth direction  $\mathbf{n}_g$  in the angular sector  $(\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_G)$ . It corresponds to the angle ratio  $(\mathbf{n}_g, \mathbf{n}_G)/(\mathbf{n}_a, \mathbf{n}_g)$  and satisfies  $\xi(\Theta_0, 0) = 0$  and  $\xi(\Theta_0, \infty) = \infty$ . Again, we question the separability of variables  $(\Theta_0, Pe)$  by considering the normalized variable  $\chi = \xi(\Theta_0, Pe)/\xi[\Theta_0, Pe'(\Theta_0)]$  where  $Pe'(\Theta_0)$  stand as arbitrary Péclet numbers used to normalize data in each family of opening angles  $\Theta_0$ . *A priori*, variable  $\chi$  explicitly depends on each variable  $\Theta_0, Pe$  and  $Pe'(\Theta_0)$ . However, taking for  $Pe'(\Theta_0)$  the minimum Péclet number recorded at each  $\Theta_0$ , we observe in fig. 4a a collapse of data on a *single* curve only dependent, for *all* values of  $\Theta_0$ , on the Péclet number ratio  $Pe/Pe'(\Theta_0)$ . This shows that the function  $\chi(.,.)$  reduces to a *mono-variate* function  $\chi \equiv \chi[Pe/Pe'(\Theta_0)]$  which, by definition, satisfies  $\chi(1) = 1$ .

As might be expected, these properties are not a coincidence linked to the particular choice of the normalization Péclet numbers  $Pe'(\Theta_0)$ . In particular, the *same* collapse on the *same* master curve is again obtained by taking for them other values  $Pe''$  than the minima of the data library. However, by definition,  $\chi(Pe/Pe'') = \chi(Pe/Pe')\chi(Pe'/Pe'')$ . As  $Pe/Pe'' = Pe/Pe' \times Pe'/Pe''$ , the function  $\chi(.)$  thus satisfies the functional relationship  $\chi(xy) = \chi(x)\chi(y)$ , whose only solution not everywhere discontinuous is a power law:  $\exists b; \chi(Pe/Pe') = (Pe/Pe')^b$ . The fit of the master curve of fig. 4a then gives  $b = 1.246 \pm 0.005$ . For the sake of simplicity, we shall adopt its close rounded value  $b = 5/4$  in the following.

Following the identification of function  $\chi(.,.)$ , function  $\xi(.,.)$  writes  $\xi(\Theta_0, Pe) = a(\Theta_0)Pe^b$  and displays separate variables. The values of prefactors  $a(\Theta_0)$ , fitted on each data family of opening angles  $\Theta_0$ , are reported in fig. 4b. Their smooth variations can be modeled by a simple polynomial form  $a(\Theta_0) = \alpha[1 - (\Theta/\Theta_m)^\beta]$  with integer  $\beta$ . The best agreement is found for  $\alpha = 1.1$ ,  $\beta = 4$  and  $\Theta_m = 46^\circ$ .

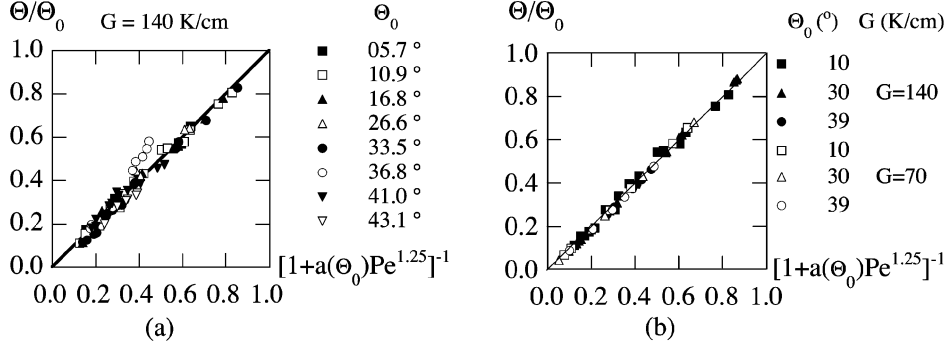


Fig. 5 – Collapse of data onto the function  $\Theta/\Theta_0 = [1 + a(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}$  with  $a(\Theta_0) = 1.1 [1 - (\Theta_0/\Theta_m)^4]$  and  $\Theta_m = 46^\circ$ . (a) Data library at  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$ . (b) Data libraries at  $G = 70$  and  $140 \text{ Kcm}^{-1}$ .

Altogether, we thus obtain the global characterization (1) (2) of growth directions in the present material. This is attested by the non-linear collapse of data displayed in fig. 5a for  $G = 140 \text{ Kcm}^{-1}$ . Interestingly, the same collapse also extends to the half thermal gradient  $G = 70 \text{ Kcm}^{-1}$  (fig. 5b). This denies an influence of the magnitude of the thermal gradient on the growth direction, except possibly close to the onset. This conclusion agrees with the equality between the growth directions displayed in numerical simulations at  $(\Theta_0, Pe) = (30^\circ, 2.925)$  for two gradients,  $G = 40 \text{ Kcm}^{-1}$  and  $160 \text{ Kcm}^{-1}$  [6]. It however extends it experimentally to the whole variable space  $(\Theta_0, Pe)$  for the two above gradients.

$$\Theta/\Theta_0 = [1 + a(\Theta_0)Pe^{5/4}]^{-1}, \quad (1)$$

$$a(\Theta_0) = \alpha [1 - (\Theta_0/\Theta_m)^\beta]; \quad \alpha = 1.1; \quad \beta = 4; \quad \Theta_m = 46^\circ. \quad (2)$$

The existence of a collapse of data by the *same* kind of transformations (1) (2) for *all* opening angles  $\Theta_0$  and Péclet numbers  $Pe$  reveals an unexpected universality in the response of growth directions to growth conditions. This is reflected in the single power law form selected for the reduced function  $\chi(\cdot)$  by internal symmetry (fig. 4a). This universality suggests that the non-linearity of the orientational response of cells and dendrites refers, not to a change of regime, but to a common tendency shared by all of them. In particular, the continuous nature of transformations (1) (2) denies the existence of an onset in opening angle  $\Theta_0$  or in pulling velocity  $V$  below which the growth direction would reduce to the heat flow direction [3, 4, 9, 10]. In contrast, the reduction of the whole data library to a common relationship (1) (2) provides a definite ground for understanding in a unique framework how a tiny anisotropy-induced modulation of surface tension or of kinetic undercooling succeeds in rotating the growth direction of mesoscopic objects, the dendrites.

The large extension of the range of Péclet ratios of the data library, about 20 here, supports the relevance of the collapse evidenced in fig. 4a and the accuracy of the measurement of exponent  $b$ . On the other hand, the fact that  $\Theta_0$  indexes the curves  $\xi(\Theta_0, \cdot)$  that are found to collapse means that their power law form represents a mean tendency over the families of data referring to each opening angles  $\Theta_0$ . Especially, prefactor  $a(\Theta_0)$  stands as an average parameter over the  $\Theta_0$ -family which, for instance, quantifies the mean effect of the enlargement of the spacing  $\Lambda$  by secondary branches. On another ground, beyond the present identification of the orientational response of dendrites, it would be worth determining the sensitivity of the type of law (1) (2) and of its parameters  $(b, \alpha, \beta, \Theta_m)$  to the kind of anisotropy of the material (surface tension anisotropy or kinetic anisotropy) and to its magnitude. The former

issue requires a library of growth directions in another material made with data as dense and accurate as those reported here for a succinonitrile alloy. As the two pioneering experiments previously performed on pivalic acid-ethanol [3,4] and  $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$  [6] mixtures did not provide enough data for that, new experiments are required to conclude.

We have experimentally determined the first exhaustive library of growth directions of cells and dendrites in a given material. The library of growth angles  $\Theta$  extends over more than eighty data to an accuracy of 0.1 degree. It spreads over a large range of pulling velocity, spacing, thermal gradient and misorientation angle  $\Theta_0$  between thermal gradient and crystal orientation. The  $Pe$  number dependence observed in [6] has been confirmed on the whole variable space and the relationship  $\Theta(\Theta_0, Pe)$  has been shown to couple variables in a non-linear way that involves non-separability. Interestingly, the relative position  $\xi = (\Theta_0 - \Theta)/\Theta$  of angle  $\Theta$  in the range  $(0, \Theta_0)$  has been evidenced to satisfy a power law variation with  $Pe$ , following the internal symmetry implied by the collapse of its normalized values onto a single curve at all values of  $\Theta_0$ . Back to variable  $\Theta/\Theta_0$ , this provides a collapse of data onto a non-linear master curve that displays a constant exponent on  $Pe$ , a definite dependence on  $\Theta_0$  and no evidence of a discontinuity at the onset of sidebranching. Other data libraries on other materials are required to state the relative importance of surface tension anisotropy and kinetic undercooling anisotropy on growth directions. On a more general ground, understanding the main non-linear features of the orientational response evidenced here represents a challenging issue for elucidating the statistical link between modulations at the atomic scales and their mesoscopic implications on growth interfaces.

\* \* \*

We acknowledge the Centre National d'Etudes Spatiales for financial support.

#### REFERENCES

- [1] KURZ W. and FISCHER D. J., *Fundamentals of Solidification* (Trans tech Publications, Zurich) 1984.
- [2] CHALMERS B., *Principles of Solidification* (Wiley, New York) 1964.
- [3] TRIVEDI R., *Appl. Mech. Rev.*, **43** (1990) 79.
- [4] TRIVEDI R., SEETHARAMAN V. and ESHELMAN M. A., *Metall. Trans. A*, **22** (1991) 585.
- [5] OSWALD P., MOULIN M., METZ P., GÉMINARD J. C., SOTTA P. and SALLEN L., *J. Phys. III*, **3** (1993) 1891.
- [6] AKAMATSU S. and IHLE T., *Phys. Rev. E*, **56** (1997) 4479.
- [7] SHARP R. M. and HELLAWELL A., *J. Cryst. Growth*, **11** (1971) 77.
- [8] HESLOT F. and LIBCHABER A., *Phys. Scr.*, **11** (1985) 126.
- [9] BORISOV A. G., FEDOROV O. P. and MASLOV V. V., *J. Cryst. Growth*, **112** (1991) 463.
- [10] HE G., LI J., MAO X. and FU H., *J. Mater. Sci. Technol.*, **14** (1998) 200.
- [11] AKAMATSU S., FAIVRE G. and IHLE T., *Phys. Rev. E*, **51** (1995) 4751.
- [12] OKADA T. and SAITO Y., *Phys. Rev. E*, **54** (1996) 650.
- [13] POCHEAU A. and GEORGELIN M., *Phys. Rev. E*, **73** (2006) 011604.
- [14] UTTER B. and BODENSCHATZ E., *Phys. Rev. E*, **72** (2005) 011601.

## Résumé

La thèse porte sur les effets d'anisotropie induits par croissance d'interface rugueuse en solidification directionnelle. Ceux-ci se manifestent notamment par des directions de croissance variables des structures et des phénomènes morphologiques associés importants : dissymétrie, long cortège de branchements, instabilités. Cette étude est menée dans un premier temps sur des structures homogènes avant d'être étendue à des situations inhomogènes.

Lorsque la vitesse de croissance augmente, la direction de croissance des dendrites s'oriente depuis une direction macroscopique donnée par le gradient thermique jusqu'à une direction microscopique fixée par les symétries cristallines. Leur étude expérimentale exhaustive a fourni ici un grand nombre de données dont le traitement a révélé une symétrie interne. Celle-ci conduit à la sélection d'une loi d'orientation fonction du nombre de Péclet et de l'écart entre les directions fixes macroscopique et microscopique du problème. Une nouvelle définition de la taille caractéristique des structures a cependant permis d'exprimer l'orientation relative des dendrites en fonction du seul nombre de Péclet par une courbe devenue indépendante de l'angle entre les deux directions fixes. La nouvelle loi ainsi obtenue est universelle car elle est indépendante de l'intensité du gradient thermique, des caractéristiques d'anisotropie et même de la nature de l'alliage solidifié. Enfin, l'application locale aux fronts inhomogènes des résultats obtenus sur les fronts homogènes permettent de comprendre la dynamique propre engendrée par des variations de taille de structures, d'orientation et d'intensité du gradient thermique.

## Summary

The thesis addresses the implications of anisotropy induced by rough interface growth in directional solidification. They notably include variable growth directions and dramatic morphological effects such as asymmetry, set of very large sidebranches and instabilities. The study is first focused on homogeneous structures before being widened to inhomogeneous situations.

As the growth velocity increases, the growth direction of dendrites turns from a macroscopic direction given by the thermal gradient to a microscopic direction prescribed by the crystalline symmetries. Their exhaustive experimental study has provided here a large number of data whose analysis reveals an internal symmetry. This symmetry leads to the selection of an orientation's law that is function of the Péclet number and of the angular distance between the fixed directions (thermal gradient and anisotropy). However, a new definition of the characteristic size of the growth structures has led the relative orientation of dendrites to only depend on the Péclet number and to be made independent of the angle between the two prescribed directions. This new law is universal since it is no longer parametrized by the intensity of the thermal gradient, the anisotropy features and the nature of the solidified alloy. Finally, the results obtained on homogeneous fronts are locally applied to inhomogeneous fronts. This enables the understanding of the dynamics implied by the variations of structure size, thermal gradient orientation and thermal gradient intensity.











## Résumé

La thèse porte sur les effets d'anisotropie induits par croissance d'interface rugueuse en solidification directionnelle. Ceux-ci se manifestent notamment par des directions de croissance variables des structures et des phénomènes morphologiques associés importants : dissymétrie, long cortège de branchements, instabilités. Cette étude est menée dans un premier temps sur des structures homogènes avant d'être étendue à des situations inhomogènes.

Lorsque la vitesse de croissance augmente, la direction de croissance des dendrites s'oriente depuis une direction macroscopique donnée par le gradient thermique jusqu'à une direction microscopique fixée par les symétries cristallines. Leur étude expérimentale exhaustive a fourni ici un grand nombre de données dont le traitement a révélé une symétrie interne. Celle-ci conduit à la sélection d'une loi d'orientation fonction du nombre de Péclet et de l'écart entre les directions fixes macroscopique et microscopique du problème. Une nouvelle définition de la taille caractéristique des structures a cependant permis d'exprimer l'orientation relative des dendrites en fonction du seul nombre de Péclet par une courbe devenue indépendante de l'angle entre les deux directions fixes. La nouvelle loi ainsi obtenue est universelle car elle est indépendante de l'intensité du gradient thermique, des caractéristiques d'anisotropie et même de la nature de l'alliage solidifié. Enfin, l'application locale aux fronts inhomogènes des résultats obtenus sur les fronts homogènes permettent de comprendre la dynamique propre engendrée par des variations de taille de structures, d'orientation et d'intensité du gradient thermique.

## Summary

The thesis addresses the implications of anisotropy induced by rough interface growth in directional solidification. They notably include variable growth directions and dramatic morphological effects such as asymmetry, set of very large sidebranches and instabilities. The study is first focused on homogeneous structures before being widened to inhomogeneous situations.

As the growth velocity increases, the growth direction of dendrites turns from a macroscopic direction given by the thermal gradient to a microscopic direction prescribed by the crystalline symmetries. Their exhaustive experimental study has provided here a large number of data whose analysis reveals an internal symmetry. This symmetry leads to the selection of an orientation's law that is function of the Péclet number and of the angular distance between the fixed directions (thermal gradient and anisotropy). However, a new definition of the characteristic size of the growth structures has led the relative orientation of dendrites to only depend on the Péclet number and to be made independent of the angle between the two prescribed directions. This new law is universal since it is no longer parametrized by the intensity of the thermal gradient, the anisotropy features and the nature of the solidified alloy. Finally, the results obtained on homogeneous fronts are locally applied to inhomogeneous fronts. This enables the understanding of the dynamics implied by the variations of structure size, thermal gradient orientation and thermal gradient intensity.