



Dynamique de la formation de la structure de grains dans les alliages métalliques et dans le silicium multi-cristallin pour les applications photovoltaïques

Nathalie Mangelinck-Noël

► To cite this version:

Nathalie Mangelinck-Noël. Dynamique de la formation de la structure de grains dans les alliages métalliques et dans le silicium multi-cristallin pour les applications photovoltaïques. Matériaux. Aix-Marseille Université, 2013. tel-00945414

HAL Id: tel-00945414

<https://theses.hal.science/tel-00945414>

Submitted on 17 Feb 2014

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.

Aix-Marseille Université



Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence
UMR CNRS 7334, Universités Aix-Marseille et Sud Toulon-Var

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Nathalie Mangelinck-Noël

Dynamique de la formation de la structure de
grains dans les alliages métalliques et dans le
silicium multi-cristallin pour les applications
photovoltaïques

Soutenance le 03 Juillet 2013 devant le jury composé de :

Pr. G. Amberg (Université KTH, Suède)
Pr. H. Combeau (Institut Jean Lamour, Nancy)
Pr. P. Schumacher (University of Leoben, Autriche)
Dr. J. Baruchel (ESRF, Grenoble)
Dr. D. Camel (INES/CEA, Le Bourget du Lac)
Pr. C. Girardeaux (Aix-Marseille Université, Marseille)
Dr. B. Billia (IM2NP, Marseille)

Rapporteur
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Examineur
Examineur

*«Telle est la vie des hommes.
Quelques joies très vite effacées par d'incubliables chagrins.
Il n'est pas nécessaire de le dire aux enfants.»*

Marcel Pagnol

*A Dominique pour toutes ces années ensemble dans le respect mutuel
et à nos merveilles :
Lysen et Elean.*

Remerciements

J'ai commencé mon travail de recherche en thèse au laboratoire MATOP (Matériaux Organisation et Propriétés) à Marseille sous la direction de Bernard Billia et de Haïk Jamgotchian. Je souhaite les remercier tous les deux pour les aspects très différents de la recherche qu'ils m'ont fait découvrir et pour tout ce qu'ils m'ont appris dans un domaine, la solidification, que je découvrais pratiquement au cours de ma thèse.

Mes recherches post-thèses en Suisse et à Singapour m'ont permis de découvrir d'autres domaines de recherche et également d'autres cultures. Je voudrais remercier plus particulièrement le professeur Andreas Mortensen pour ses qualités humaines et sa patience. Ce fut un plaisir de travailler dans son équipe internationale à l'EPFL.

Ma carrière au CNRS a commencé au laboratoire EPM (Elaboration par Procédés Magnétiques) à Grenoble. Ces quelques années ont été passionnantes et m'ont permis de travailler dans le cadre de collaborations de recherche directes avec des industriels et, également, dans un domaine, le silicium pour les applications photovoltaïque, qui me passionne d'un point de vue sociétal aussi bien que scientifique. Je tiens plus particulièrement à remercier Thierry Duffar et Yves Fautrelle pour m'avoir permis de développer mes recherches dans le cadre de leurs projets. Je conserve avec plaisir des relations amicales et de travail avec tous mes collègues du laboratoire EPM devenu SIMAP.

Depuis 2004, je continue mon travail de recherche à l'IM2NP. Je remercie Bernard Billia de m'avoir (ré)-accueillie au sein de l'équipe MCA et de m'avoir toujours soutenue et guidée dans mon travail de recherche depuis ma thèse. Je remercie les autres permanents de l'équipe : Henri Nguyen-Thi, Nathalie Bergeon, Guillaume Reinhart et Jean-Jacques Furter pour le travail dans la bonne humeur, la passion de la recherche que nous partageons et leur amitié. Je souhaite remercier plus particulièrement Guillaume pour son implication dans le projet Si-X et dans le travail de thèse d'Amina Tandjaoui.

Je tiens également à remercier le personnel administratif du laboratoire que nous mettons beaucoup à contribution ainsi que tous les collègues de l'IM2NP et en particulier, ceux avec qui je travaille dans le cadre de l'axe transverse matériaux pour l'énergie (Olivier Palais, Isabelle Périchaud, Damien Barakel, Marcel Pasquinelli, Gabrielle Régula...) et ceux que je cotoie pour l'organisation des séminaires.

Les étudiants en thèse que j'ai co-encadrées : Kader Zaïdat, Hyjein Jung, Amina Tandjaoui m'ont également beaucoup apporté grâce à leur motivation et à leurs personnalités et compétences différentes qui ont rendu notre travail commun encore plus intéressant.

Je tiens également à remercier les collègues de l'ESRF et en particulier, Tamzin Lafford, José Baruchel et Jurgen Härtwig pour leur soutien dans le travail que nous menons ensemble avec l'équipe MCA sur l'imagerie X de la solidification des matériaux.

Je voudrais remercier tous les collègues et stagiaires avec qui j'ai travaillé dans les différents laboratoires où j'ai effectué mes recherches et que je n'ai pas pu tous citer ici.

Enfin, je remercie également les membres du jury d'avoir accepté d'examiner mon habilitation à diriger les recherches et plus particulièrement, les professeurs Amberg et Schumacher d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce document rédigé en français.

Nathalie Mangelinck-Noël

Avant-propos

Mes travaux depuis mon recrutement au CNRS et actuellement au sein de l'équipe MCA de l'IM2NP concernent principalement la solidification des matériaux. Les propriétés des matériaux sont largement contrôlées par la microstructure de solidification, les structures de grains et les ségrégations laissées dans le solide avant toute mise en forme et traitement postérieurs. Pour élaborer des matériaux possédant des propriétés définies, sur mesure et de façon reproductible, il est donc nécessaire de maîtriser les mécanismes qui lient les procédés d'élaboration à la structure interne à diverses échelles des matériaux. Mes travaux de recherche vont dans le sens de l'approfondissement de la connaissance de ces mécanismes et, à plus long terme, de l'application de ces recherches aux procédés industriels.

La nécessité d'améliorer les procédés pour obtenir des pièces de plus en plus performantes et qui permettent des économies en énergie soulève de nombreuses questions métallurgiques pour la recherche et l'industrie [1, 2]. L'amélioration des procédés nécessite de comprendre les mécanismes physico-chimiques qui entrent en jeu pendant la phase de solidification. De plus, pour être prédictives et quantitatives, les simulations numériques largement utilisées en milieu industriel doivent être nourries par la connaissance de ces mécanismes, leur formulation mathématique et les paramètres entrant en jeu. Dans les alliages métalliques, j'étudie plus particulièrement les mécanismes de la formation de la structure de grains, de la transition colonnaire équiaxe (CET), des ségrégations induites par cette structure. Les grains colonnaires et équiaxes résultent de dendrites avec différentes morphologies. Les dendrites colonnaires sont allongées dans une direction tandis que les grains équiaxes n'ont pas de direction privilégiée. A cause de leur forme, les grains équiaxes permettent d'obtenir des propriétés mécaniques isotropes pour le matériau final et des champs de concentration plus homogènes que dans le cas de la croissance colonnaire. En fonction de l'application, l'un ou l'autre type de grain est préféré et doit donc être favorisé par le procédé de solidification (par exemple : les grains équiaxes dans les pièces de moteur, les grains colonnaires voire un monograin dans les aubes de turbines). En conséquence, la compréhension des mécanismes physico-chimiques qui contrôlent la CET est une question critique en métallurgie et qui reste d'actualité. Les grains équiaxes peuvent apparaître de deux manières au cours de la solidification. La première est la germination hétérogène sur des particules incluses volontairement dans l'alliage comme cela est fait couramment dans l'industrie de l'aluminium par exemple ou, sur des impuretés ou des précipités présents naturellement dans l'alliage [3-5]. La seconde est le détachement de branches dendritiques secondaires dans la zone pâteuse [6-12] ce qui est admis comme la cause de l'apparition d'une zone équiaxe au centre des lingots de fonderie.

Afin de comprendre et de caractériser les mécanismes de la dynamique de formation de la structure de grains dans les alliages métalliques, mon programme de recherche comporte trois volets :

- l'étude de la structure de grains et de la fragmentation (Chapitre 1)
- l'étude de la CET en présence d'affinants dans des alliages à base aluminium (Chapitre 2)
- l'influence de la convection au cours de la solidification de ces alliages (Chapitre 3).

Mon approche est expérimentale et comporte des expériences originales:

1- Caractérisation *in situ* et en temps réel de la dynamique de la solidification d'alliages métalliques proches des alliages industriels par imagerie X synchrotron.

2- Etude des effets de la convection naturelle, de la convection contrôlée par un champ ou un stimulus externe ou, utilisation de la microgravité (absence de convection naturelle et de phénomènes de sédimentation).

Par ailleurs, depuis 2008, je développe au sein de l'équipe MCA une nouvelle thématique de recherche pour laquelle j'ai mis en place un projet (Si-X : Caractérisation et compréhension de la cristallisation du Silicium photovoltaïque: imagerie X synchrotron) financé par l'ANR HABISOL. Les cellules photovoltaïques (PV) sont amenées à devenir une des composantes majeures de l'habitat écologique de demain. Les différentes étapes d'élaboration des cellules PV à base de silicium (purification, cristallisation, traitements intermédiaires, procédé cellules) concourent au rendement des cellules PV. Dans ce cadre, je m'intéresse à la phase de cristallisation/solidification.

Jusqu'à présent, du silicium en provenance de l'industrie microélectronique était employé pour fabriquer les cellules PV mais cette filière est très coûteuse et est tributaire de l'industrie microélectronique pour l'approvisionnement en silicium de qualité suffisante. D'autres voies d'approvisionnement et de fabrication du matériau silicium de qualité suffisante pour les applications PV sont explorées mais ces matériaux silicium sources doivent être considérés comme de nouveaux matériaux vis-à-vis des procédés d'élaboration de lingots et de cellules. En conséquence, un certain nombre de problèmes liés à la solidification de ces matériaux doivent être (ré)-examinés avec attention même pour des procédés établis pour les matériaux en provenance de l'industrie microélectronique.

D'une manière générale, dans le Si multi-cristallin utilisé massivement pour la fabrication des cellules photovoltaïques, le rendement PV de la cellule est complètement différent en fonction de la structure de grains du lingot [13-16]. Par conséquent, il est indispensable de contrôler et donc de comprendre la formation de la structure de grains issue de l'étape de solidification du Si multi-cristallin [17]. Ces travaux sur le Si multi-cristallin font l'objet du chapitre 4.

Pour les deux principaux types de matériaux que j'étudie (alliages métalliques, Si PV) la problématique de la solidification et en particulier de la formation de la structure de grains est essentielle. En revanche, la croissance du silicium multi-cristallin, en général facettée, est totalement différente de celle des alliages métalliques classiques ce qui ouvre des perspectives intéressantes pour la compréhension de mécanismes peu abordés jusqu'à présent dans nos travaux : effet de l'orientation cristallographique, macles, croissance facettée.

Sommaire

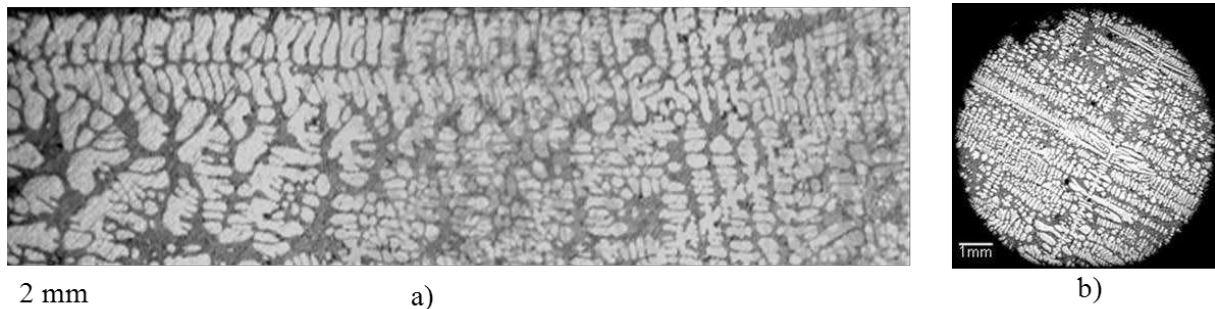
Chapitre 1: Structure de grains dans les alliages métalliques non affinés : Croissance colonnaire et phénomène de fragmentation	6
1.1 Croissance colonnaire dans les alliages non affinés.....	7
1.2 Formation d'une structure équiaxe dans les alliages non affinés.....	10
1.3 Etude du phénomène de fragmentation.....	15
1.3.1 Fragmentation dans l'alliage Al-Si 7,0% pds.....	15
1.3.2 Fragmentation dans l'alliage Al-Sn 14% pds.....	22
1.4 Perspectives du chapitre 1	31
Chapitre 2 : Structure de grains dans les alliages métalliques affinés : Phénomène de germination des grains équiaxes	33
2.1 Transition colonnaire équiaxe dans Al-Ni 3,5 %pds affiné.....	34
2.1.1 Analyse de la transition colonnaire équiaxe et propagation du front équiaxe	34
2.1.2 Croissance équiaxe et distribution des particules actives.....	38
2.2 Transition colonnaire équiaxe dans Al-Si 7,0 %pds affiné.....	44
2.2.1 Analyse de la transition colonnaire équiaxe.....	44
2.3 Perspectives du chapitre 2	48
Chapitre 3 : Influence de la convection naturelle ou forcée sur la structure de grains dans les alliages métalliques	51
3.1 Absence de convection (microgravité).....	52
3.2 Structure de grains et convection forcée	61
3.3 Perspectives du chapitre 3	66
Chapitre 4 : Solidification du silicium photovoltaïque multi-cristallin.....	69
4.1 Dispositif conçu dans le cadre du projet Si-X.....	71
4.2 Formation des macles dans le silicium multi-cristallin.....	75
4.3 Sillons et formation des nouveaux grains:	81
4.4 Perspectives du chapitre 4	83
Chapitre 5 : Projets en cours et études à venir	86
Références	90
Annexe 1. Curriculum vitae	98
Annexe 2. Production scientifique	108

Chapitre 1: Structure de grains dans les alliages métalliques non affinés : Croissance colonnaire et phénomène de fragmentation

Pour certains matériaux comme les aciers, une zone équiaxe apparaît à l'issue d'une élaboration par la méthode de fonderie [18]. La formation de cette zone équiaxe a des conséquences importantes sur la macroségrégation dans le lingot [19]. On admet généralement que la cause de l'apparition d'une zone équiaxe au centre des lingots de fonderie, est le détachement puis la croissance de branches dendritiques secondaires dans la zone pâteuse [11] mais ce phénomène est encore mal expliqué. Dans les lingots de fonderie, le détachement des branches secondaires ou tertiaires se produit quand le front de solidification atteint le centre du lingot où le gradient thermique est proche de 0.

Dans d'autres matériaux encore, comme les superalliages, on souhaite absolument éviter la formation de grains parasites ou de grains désorientés par rapport à l'orientation cristallographique désirée [20]. Ces défauts sont issus soit, de germinations sur des impuretés soit, de fragmentations de dendrites ou bien encore de la désorientation des branches dendritiques. Des travaux concernant la fragmentation ont été menés à bien [7, 11, 21, 22]. Cependant, les mécanismes qui entrent en jeu pour la fragmentation mais aussi le transport et la sédimentation ou la flottaison des fragments sont plus complexes et moins explicités que la germination sur des particules. Une partie de mes activités a donc consisté à étudier la croissance colonnaire et le phénomène de fragmentation dans différents alliages à base aluminium en utilisant des expériences de solidification classique ou avec suivi par imagerie X synchrotron. Ce travail fait partie du projet CETSOL et a fait partie des travaux de thèse d'Hyejin Jung [23] et de post-doctorat de Kleber Sabat Da Cruz.

1.1 CROISSANCE COLONNAIRE DANS LES ALLIAGES NON AFFINES



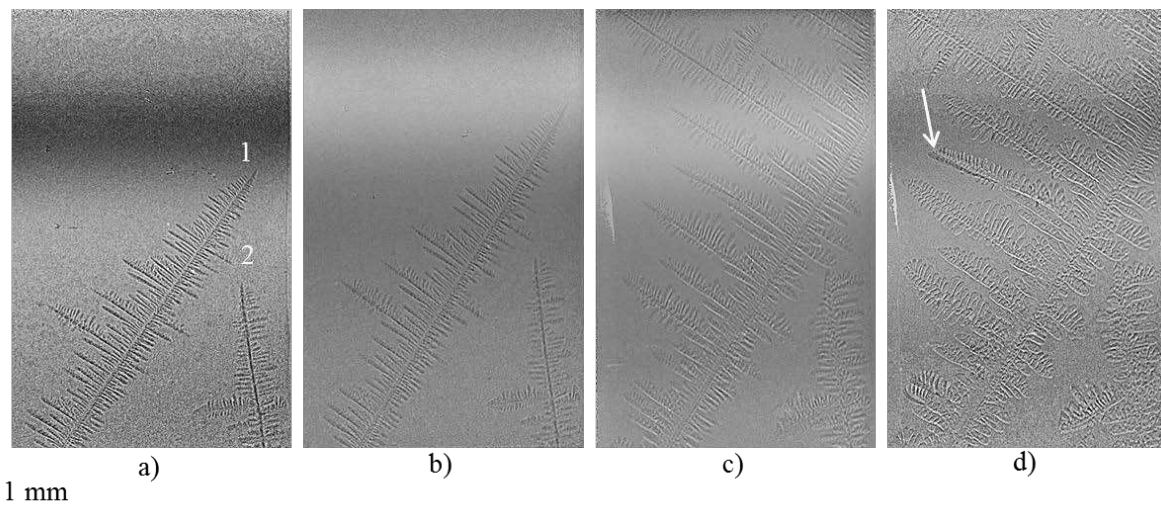
Chapitre 1 Fig. 1: Al-Si 7 pds% non affiné, $G = 14 \text{ K/cm}$, $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$, a) Coupe longitudinale, b) Coupe transverse.

La figure 1 présente la morphologie dendritique dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné pour un gradient de 14 K/cm et une vitesse de tirage de $2 \text{ } \mu\text{m/s}$. La microstructure dans cet alliage est colonnaire et branchée conduisant à une présence importante de poches eutectiques après solidification totale.

Pour ces expériences, les barreaux de 8 mm de diamètre et de 120mm environ de long sont solidifiés dans un four de Bridgman par tirage de l'échantillon de la zone chaude vers la zone froide dans la direction verticale puis, quelques coupes transverses sont préparées et enfin, le barreau est coupé en son centre pour obtenir les coupes longitudinales. Ces expériences sur des échantillons volumiques ne peuvent être analysées qu'après la solidification. Pour aller plus loin, dans la compréhension des phénomènes, il y a lieu d'utiliser des méthodes

d'analyse de la solidification permettant de caractériser les alliages métalliques proches de ceux utilisés dans l'industrie. Afin de mieux comprendre la dynamique des phénomènes de solidification, ces méthodes se doivent de permettre, comme dans le cas des alliages transparents, une caractérisation innovante *in situ* et en temps réel.

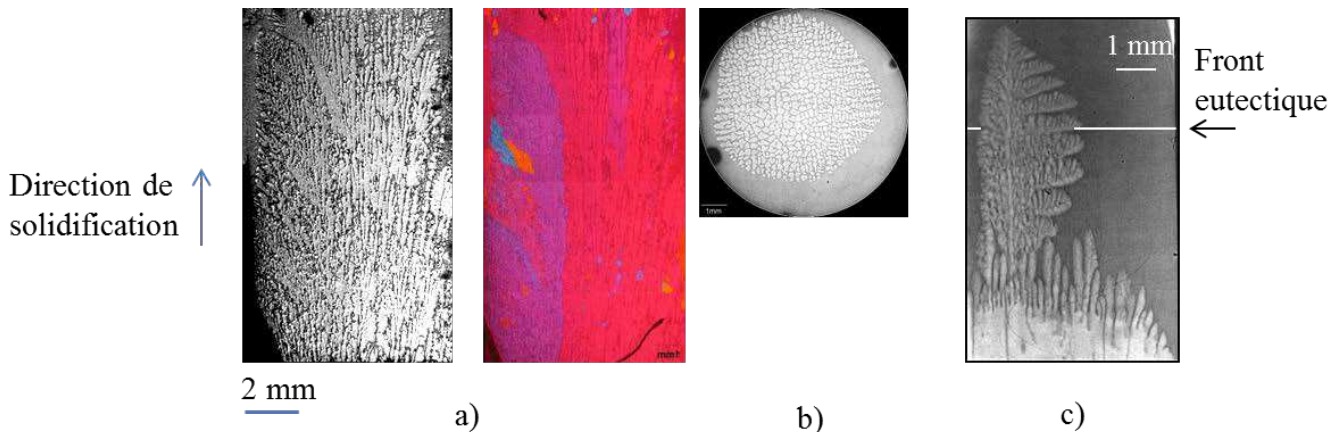
Pour atteindre cet objectif, nous utilisons le rayonnement X synchrotron. En effet, les alliages métalliques sont transparents au rayonnement X. Afin d'avoir accès à l'évolution des microstructures *in situ* et en temps réel nous avons utilisé le rayonnement synchrotron qui associe intensité et cohérence à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) sur les lignes ID19 et BM05. Des travaux utilisant l'imagerie X synchrotron appliquée à la caractérisation de la solidification des matériaux métalliques sont développés depuis les dernières années par quelques groupes internationaux [24-29] dont notre équipe. Nos travaux ont pour particularité d'associer l'observation de la dynamique de formation et d'arrangement de la microstructure de solidification (radiographie X) classiquement utilisée à celle des contraintes générées mais aussi de l'orientation cristallographique (topographie X) [30-34]. La technique d'imagerie X mise en œuvre pendant la solidification pour les expériences qui suivent est détaillée par exemple dans [35].



Chapitre 1 Fig. 2: Al-Si 7,0 pds% non affiné, Refroidissement de la zone chauffante supérieure uniquement avec une vitesse de refroidissement de $K = 1$ K/min et pour des températures de départ sur les zones chauffantes supérieure et inférieure respectivement de $573,7^{\circ}\text{C}$ et de 550°C . t_0 est l'instant de début de refroidissement. a) $t = t_0 + 26$ min 12 s, b) $t = t_0 + 26$ min 39 s, c) $t = t_0 + 33$ min 57 s, d) $t = t_0 + 40$ min 44 s.

La figure 2 présente la morphologie de la croissance colonnaire dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification. Les échantillons utilisés pour les expériences d'imagerie X ont une largeur de 6 mm, une hauteur de 40 mm et une épaisseur de $150\text{ }\mu\text{m}$ environ. Le gradient de température est imposé par deux zones résistives cylindriques. Les zones résistives haute et basse sont respectivement à une température supérieure et inférieure à la température liquidus de l'alliage. Pour l'expérience présentée figure 2, la solidification est obtenue par refroidissement à 1 K/min de la zone résistive supérieure. Comme pour la figure 1, on observe une morphologie très branchée dans le cas de cet alliage. Les dendrites ne croissent pas toutes suivant la direction verticale mais font, pour certaines, un angle avec la direction verticale de croissance imposée par le gradient thermique. Une compétition de croissance est observée entre les différentes dendrites colonnaires. La dendrite colonnaire identifiée 1 sur la figure 2.a prend le dessus sur la dendrite identifiée 2. Cependant, compte tenu de son inclinaison, elle atteint rapidement les limites

latérales de l'échantillon et ce sont les branches secondaires qui poursuivent la croissance. Figure 2.d, un phénomène de fléchissement d'un bras secondaire est observé (Flèche blanche).



Chapitre 1 Fig. 3: Al-Ni 3,5 pds%, non affiné, $G = 25 \text{ K/cm}$, $V = 1 \mu\text{m/s}$, a) Coupe longitudinale (métallographie à gauche, polissage électrolytique à droite), b) Coupe transverse dans la partie haute, c) Al-Ni 3,5 pds% affiné, $G = 26 \text{ K/cm}$, $V = 2 \mu\text{m/s}$.

La figure 3 présente la morphologie de la croissance colonnaire dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds non affiné pour un gradient de 25 K/cm et une vitesse de tirage de $1 \mu\text{m/s}$ suivant une coupe longitudinale (Figure 3.a) et, suivant une coupe transverse (Figure 3.b) pour un alliage Al-Ni 3,5 %pds affiné. La microstructure dans cet alliage est peu branchée laissant peu de place à la formation de poches de liquide interdendritiques pendant la solidification avant le passage du front eutectique.

La figure 3.c présente la morphologie de la croissance colonnaire dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification sous un gradient thermique de 25 K/cm et une vitesse de tirage de $V = 1 \mu\text{m/s}$. Comme pour la figure 1, on observe une morphologie peu branchée dans le cas de cet alliage. Une compétition de croissance est observée entre la dendrite colonnaire et le front eutectique. Dans cette expérience, des fléchissements de bras secondaires sont observés dans Al-Ni 3,5 %pds comme dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds. L'expérience présentée figure 3.c a été décrite et expliquée en détail dans la référence [30].

Discussion [30, 35-39] :

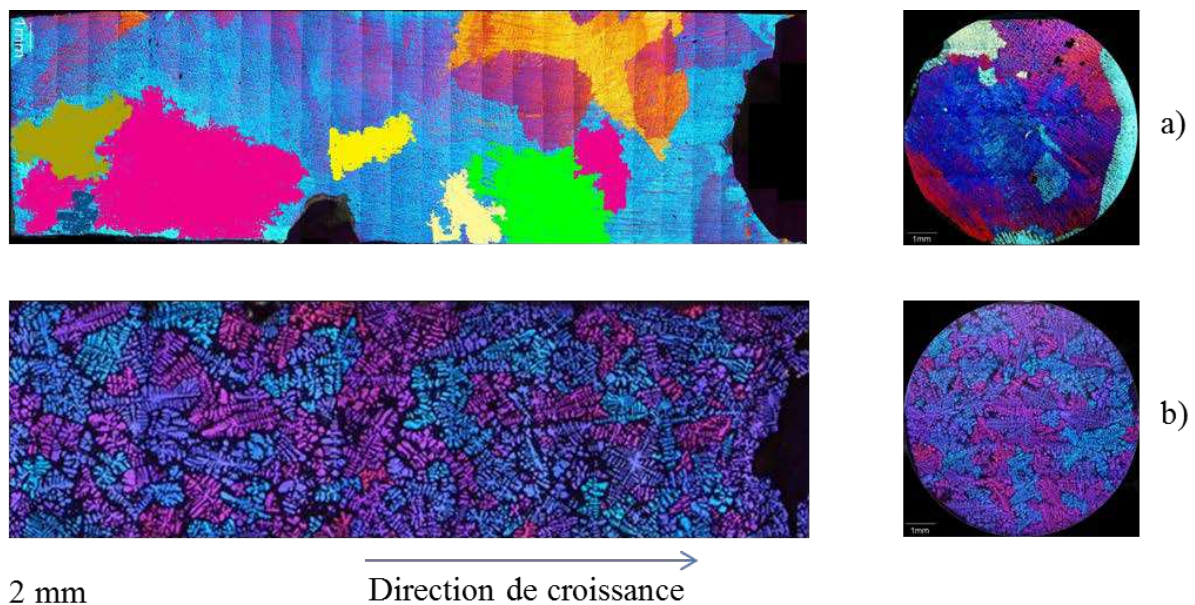
L'étude de la croissance colonnaire des alliages Al-Ni 3,5 %pds et Al-Si 7,0 %pds non affnés permet de mettre en évidence la morphologie différente des dendrites colonnaires (Figure 1, 2 & 3). Les dendrites dans l'Al-Si 7,0 %pds sont beaucoup plus branchées. De plus, du fait de l'intervalle de solidification des deux alliages, 8 K pour Al-Ni 3,5 %pds et 41 K pour Al-Si 7,0 %pds, les dendrites d'Al-Ni 3,5 %pds sont en compétition avec un front eutectique (Figure 3.c) alors que la zone pâteuse a une extension plus importante dans Al-Si 7,0 %pds pour le même gradient thermique appliqué.

L'orientation cristallographique explique l'inclinaison particulière de la dendrite n°1 observée figure 2 et le fait que les dendrites d'Al-Si 7,0 %pds ne croissent pas dans la direction du gradient thermique. Ce n'est pas l'orientation cristallographique la plus proche de la direction du gradient thermique qui prend le dessus dans cette expérience (Figure 2) contrairement à ce qui est généralement observé et attendu. Dans les premiers instants de

solidification, la dendrite n°1 est en avance de croissance par rapport à la dendrite n°2 sur la figure 2. Par conséquent, la dendrite n°1 passe au-dessus de la dendrite n°2 et bloque finalement sa croissance sans qu'elles se rencontrent par empoisonnement solutal [40]. Ce sont les branches secondaires de la dendrite inclinée par rapport à la direction du gradient thermique qui remplissent finalement l'échantillon car le tronc primaire atteint les bords du creuset. L'orientation cristallographique finale est donc dépendante des grains qui germent dans le fond du creuset, de leurs orientations respectives, de la compétition de croissance entre les grains et des éventuels obstacles rencontrés pendant leur croissance. Ce type de mécanisme est particulièrement important et est présent lors de la croissance des dendrites de superalliages dans des moules aux formes géométriques complexes [41]. Le phénomène de fléchissement [42] est observé dans les deux alliages (Figure 2.c et d). Il est dû à la différence de densité entre le solide et le liquide pour ces compositions d'alliage. En effet, dans ces deux alliages, le solide étant plus lourd que le liquide environnant. Par conséquent, lorsque les branches secondaires s'allongent, elles fléchissent sous leur poids. Ce fléchissement peut induire une différence d'orientation de quelques degrés [30] par rapport au tronc primaire. Cependant, ce fléchissement ne conduit pas toujours à des fragmentations (Figures 2 & 3).

Dans un second temps, des expériences de solidification dirigée ont été réalisées avec les alliages Al- Ni 3,5 %pds, Al- Si 7,0 %pds et Al-Sn 14 %pds non affinés dans le four de laboratoire en parallèle avec les expériences d'imagerie X synchrotron pour étudier les mécanismes de formation des grains équiaxes en l'absence de particules affinantes.

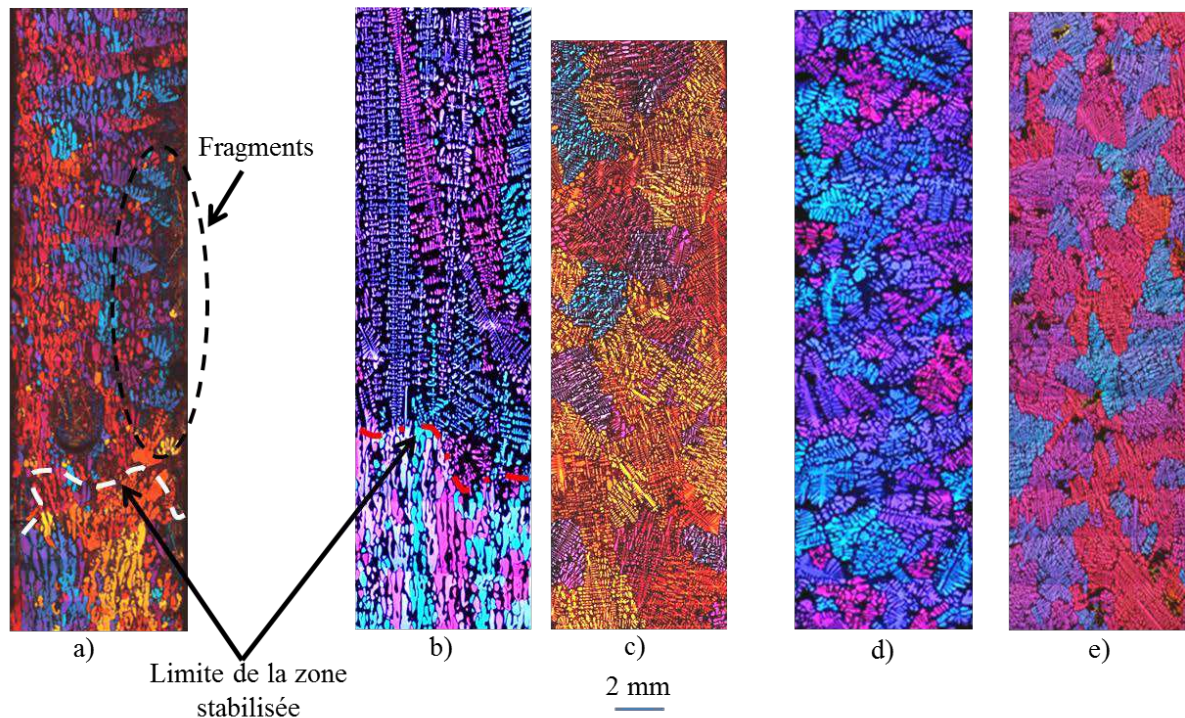
1.2 FORMATION D'UNE STRUCTURE EQUIAXE DANS LES ALLIAGES NON AFFINES



Chapitre 1 Fig. 4: Polissage électrolytique: Coupe longitudinale (gauche), Coupe transverse (droite) après solidification avec une vitesse de tirage $V = 2 \mu\text{m/s}$ et un gradient thermique $G = 5 \text{ K/cm}$, d'un lingot de (a) Al - 3,5 %pds Ni non affiné et (b) Al - 7,0 %pds Si non affiné.

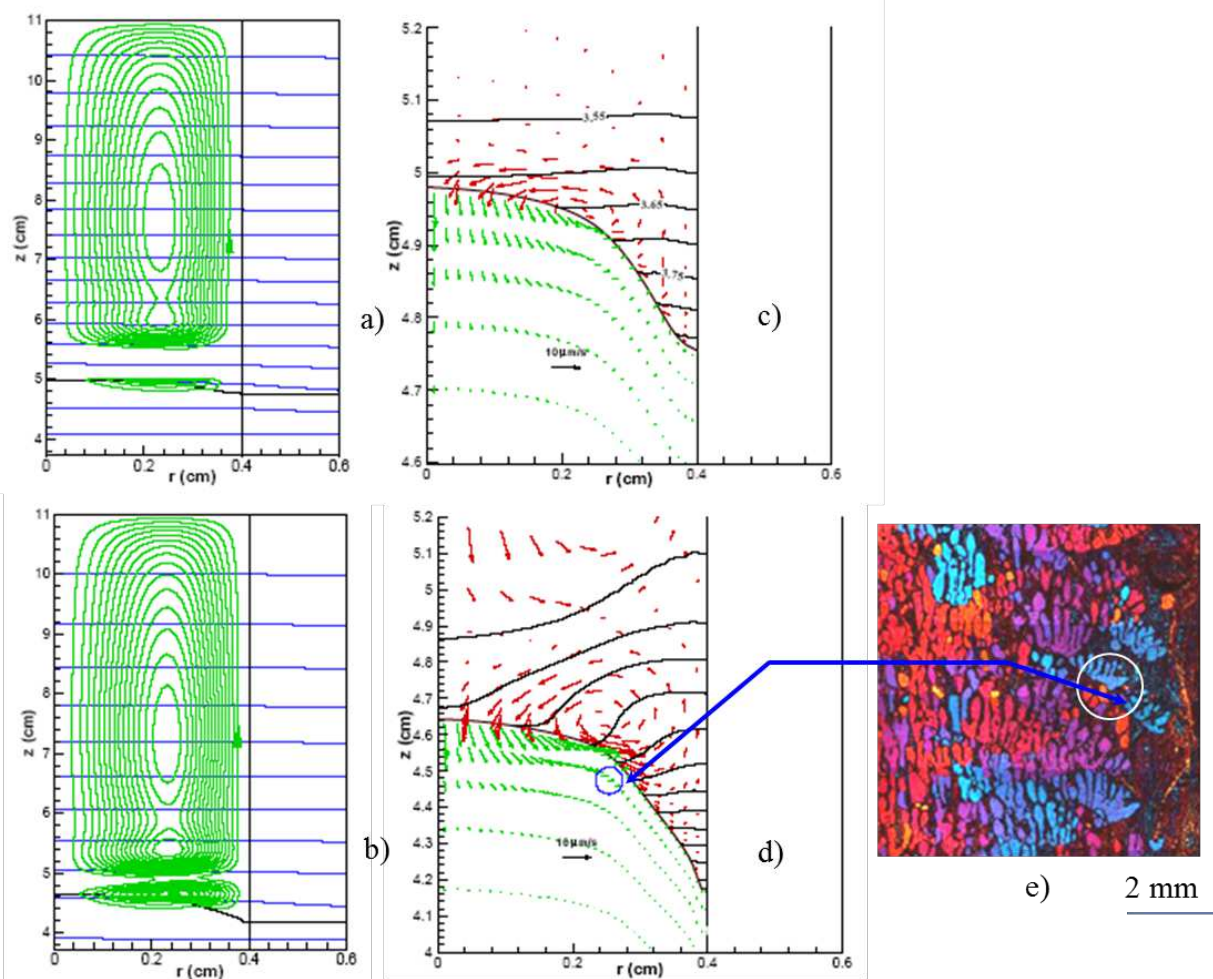
La figure 4 présente la structure de grains révélée par polissage électrolytique dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds non affiné et dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné pour les

mêmes conditions de croissance (gradient thermique de 5 K/cm et, vitesse de tirage de $V = 2 \mu\text{m/s}$). Dans les deux expériences, la croissance n'est pas colonnaire contrairement aux expériences dans ces mêmes alliages pour des gradients plus élevés aux mêmes vitesses de tirage (voir par exemple les figures 1 à 3). Dans le cas de l'alliage Al-Ni 3,5 %pds non affiné, la structure de grains est constituée de grains de grande taille qui semblent avoir crû sans orientation privilégiée. Dans le cas de l'alliage Al-Si 7,0 %pds, on peut parler de croissance équiaxe (grains millimétriques) bien que les grains soient allongés. Il n'y a pas de direction privilégiée de l'allongement des grains notamment par rapport à la direction verticale du gradient imposé.



Chapitre 1 Fig. 5: Structure de grains d'un alliage Al - 7,0 %pds Si non affiné à $G = 5 \text{ K/cm}$, Début de la solidification après une phase de stabilisation de 12 heures avec un talon solide : a) $V = 2 \mu\text{m/s}$, b) $V = 2750 \mu\text{m/s}$ partie basse de l'échantillon, c) $V = 2750 \mu\text{m/s}$ partie haute de l'échantillon et, Début de la solidification à partir de l'état tout fondu d) $V = 2 \mu\text{m/s}$, e) $V = 2750 \mu\text{m/s}$.

La figure 5 présente la structure de grains révélée par polissage électrolytique dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné pour un gradient thermique de 5 K/cm. La figure 5.a présente la structure de grains obtenue après solidification suivant une stabilisation de longue durée avec un talon solide pour deux vitesses de tirage. Pour la vitesse de tirage de $2 \mu\text{m/s}$ (Figure 5.a), on observe de nombreux fragments (ovale pointillé sur la figure 5.a) qui semblent issus de la dendrite colonnaire sur la gauche. Les fragments sont localisés dans la zone à la frontière entre la dendrite colonnaire et l'eutectique. Dans le cas d'une vitesse de tirage de $2750 \mu\text{m/s}$ après une homogénéisation de 12 h (Figures 5.b & c), la croissance est d'abord colonnaire (Figure 5.b) puis, une transition colonnaire équiaxe est observée (Figure 5.c) pour ce gradient thermique. Au cours d'expériences avec le même alliage, après une solidification à partir de l'état tout liquide, on observe uniquement une croissance équiaxe pour les deux vitesses de tirage (Figures 5.d & e). La taille des grains moyenne est comparable (environ $500 \mu\text{m}$) pour les deux vitesses de tirage (Figures 5.c, d & e). Par contre, l'espacement dendritique secondaire est plus petit pour la vitesse de $2750 \mu\text{m/s}$ que pour la vitesse de $2 \mu\text{m/s}$.



Chapitre 1 Fig. 6: Simulation numérique pour $G = 5 \text{ K/cm}$ et $V = 2 \mu\text{m/s}$. Champ de convection global pour a) Al - 3,5 %pds Ni et b) Al - 7,0 %pds Si. Distribution de soluté (lignes noires, %pds) et écoulement près de l'interface (flèches) pour c) Al - 3,5 %pds Ni et d) Al - 7,0 %pds Si, e) Agrandissement de la région de grains équiaxes sur la figure 5.a.

Les résultats de simulations numériques de la convection et du champ de soluté pour les alliages Al-Ni 3,5 %pds et Al-Si 7,0 %pds avec un gradient thermique de 5 K/cm et une vitesse de tirage de $2 \mu\text{m/s}$ sont présentés figure 6. La méthode de simulation est décrite plus en détails dans [43]. La comparaison des figures 6.a et 6.b montre que le rouleau convectif qui interagit avec l'interface et la zone pâteuse est plus important et intense dans le cas de l'Al-Si 7,0 %pds ce qui est confirmé par l'observation des iso-concentrations au niveau de l'interface pour les deux alliages (Figures 6.c et 6.d). En effet, la perturbation des iso-concentrations au niveau de l'interface est plus importante dans le cas d'Al-Si 7,0 %pds. La zone d'interaction maximale entre l'écoulement et la zone pâteuse correspond à la zone où des fragmentations sont observées dans l'expérience (Figure 6.e : agrandissement de la figure 5.a).

Discussion [23, 43-48]:

Dans les alliages non affinés étudiés ici, la croissance équiaxe ou la CET n'est jamais observée en augmentant la vitesse de tirage [23, 37]. Par contre, la croissance équiaxe est observée dans les deux alliages pour un gradient thermique axial imposé très faible (quelques

K/cm). Pour un gradient de température axial de quelques K/cm, les conditions sont en réalité proches de conditions isothermes car expérimentalement, on ne peut que difficilement éviter la présence d'un faible gradient radial. Les grains observés dans Al-Ni 3,5 %pds (Figure 4.a) sont de très grande taille (quelques millimètres), un ou deux grains occupent le diamètre, ce qui suggère plutôt une croissance libre dans ces conditions pratiquement isothermes possiblement suite à une germination sur les parois. Dans le cas d'Al-Si 7,0 %pds au contraire, un grand nombre de grains équiaxes sont observés, ils sont répartis de façon uniforme dans le lingot (Figure 4.b). Par conséquent, le phénomène de fragmentation se produit ou est favorisé dans Al-Si 7,0 %pds. La différence de comportement entre ces deux alliages est due à la différence de morphologie des grains (plus branchée dans Al-Si 7,0%pds) et également, à l'intervalle de solidification et donc à la taille de la zone pâteuse (plus étendue dans Al-Si 7,0 %pds).

Dans Al-Si 7,0 %pds, plusieurs expériences ont été réalisées avec le même gradient thermique de 5 K/cm (Figure 5) pour plusieurs vitesses de tirage avec ou sans talon solide. Après une stabilisation de longue durée (12h), la microstructure est colonnaire pendant le régime transitoire (Figure 5.b) et équiaxe pendant le régime stationnaire, comme le montre la figure 5.c pour la plus grande vitesse de tirage ($V = 2750 \mu\text{m/s}$) tandis que le régime est mixte au sens de la coexistence de grains équiaxes et de grains colonnaires à faible vitesse de tirage (Figure 5.a, $V = 2 \mu\text{m/s}$). Dans le cas des expériences sans stabilisation, la structure est entièrement constituée de grains équiaxes comme le montrent les figures 5.d et 5.e même pour la vitesse la plus faible. Lorsqu'une interface de stabilisation existe [49], les premiers grains croissent à partir de grains préexistants sur la zone stabilisée et se développent d'abord de façon colonnaire. Par la suite, des fragmentations des branches secondaires des dendrites colonnaires se produisent dans cet alliage. En effet, seul un mécanisme de fragmentation peut expliquer la présence de grains équiaxes en plus des grains colonnaires issus de la zone stabilisée en l'absence de sites de germination. Il est à noter que ce type de transition n'est observé que pour les faibles gradients de température (5 K/cm) dans nos expériences de solidification des alliages non affinés. Lorsque l'échantillon est tout fondu avant le démarrage du tirage (Figure 5.d), les germinations initiales se font indifféremment sur n'importe quelle paroi pour ce faible gradient thermique. Dans un second temps, des fragmentations des dendrites initiales accroissent le nombre de grains. Par ailleurs, si l'on compare les figures 5.d et 5.e dans les mêmes conditions sans phase de stabilisation, on voit que la taille de grains (taille moyenne $500 \mu\text{m}$) ne diminue pas sensiblement avec la vitesse comme c'est le cas dans les alliages affinés (voir chapitre 2), ce qui confirme que l'origine des grains n'est pas la germination mais la fragmentation. Par contre, l'espacement secondaire diminue avec la vitesse comme attendu dans les lois théoriques régissant l'espacement dendritique secondaire en fonction de la vitesse de croissance [50, 51].

Le modèle numérique que nous avons utilisé a permis de prendre en compte la pénétration de l'écoulement liquide dans la zone pâteuse et par conséquent son influence sur les macroségrégations et la structure de grains afin de mieux comprendre les phénomènes discutés ci-dessus. Le code de simulation numérique a été développé par B. Zhou au cours de son séjour post-doctoral à l'IM2NP en collaboration avec Q. Liu (laboratoire NML/CAS : National Microgravity Laboratory/Chinese Academy of Science en Chine) et C.W. Lan (Université de Taiwan). Il est présenté de manière plus détaillée dans la référence [43]. La simulation numérique prévoit deux tores de convection pour les deux alliages. Un tore est situé dans le liquide loin de l'interface avec la zone pâteuse et l'autre est localisé au niveau de l'interface et de la zone pâteuse. Bien que le schéma de convection global soit similaire pour les deux alliages, il existe des différences significatives au niveau des interactions entre la

convection et la distribution de soluté. Dans les simulations numériques, pour l'alliage Al - 3,5 %pds Ni sur la figure 6.a, les deux boucles de convection sont séparées par une région quasi-stagnante de 5 mm de hauteur. En outre, la boucle la plus basse reste confinée dans la couche limite de soluté et dans le haut de la zone pâteuse, tandis que la boucle la plus grande est limitée au liquide, avec une concentration uniforme C_0 . Au contraire, pour l'alliage Al - 7,0 %pds Si (Figure 6.b), une partie de la grande boucle de convection de la région liquide entre dans la couche limite de soluté. De plus, la boucle de convection basse interagit de façon plus importante avec la zone pâteuse. La distribution de soluté est très perturbée et l'écoulement plus rapide près de la zone pâteuse dans le cas d'Al-Si 7,0 %pds (Figure 6.d). Afin de relier l'écoulement liquide simulé au phénomène de fragmentation, nous avons utilisé les considérations développées par M.C. Flemings [52] qui sont également développées dans un article de revue sur la modélisation des macroségrégations de C. Beckermann [53].

Dans ces travaux, une équation de redistribution locale de soluté (LSRE) est utilisée pour expliquer l'influence de l'écoulement liquide interdendritique sur la ségrégation et la microstructure au cours de la solidification dirigée :

$$-\frac{\partial f_l}{\partial C_l} = \frac{1-\beta}{1-k} \left(1 - \frac{V_z}{V}\right) \frac{f_l}{C_l} \quad (1)$$

où f_l est la fraction de volume liquide, C_l la concentration du liquide, $\beta = (\rho_s - \rho_l)/\rho_s$ le retrait à la solidification, k le coefficient de partage, V_z la vitesse du liquide dans la direction perpendiculaire à l'interface et V la vitesse des isothermes. Dans nos expériences, V est la vitesse de tirage et V_z la composante verticale de la vitesse de l'écoulement. Dans ce modèle, l'influence de l'écoulement interdendritique peut être caractérisée par un paramètre convectif adimensionnel [52]: $\Gamma = V_z/V$.

Quand ce paramètre est supérieur à 1, le terme entre parenthèses dans l'équation (1) devient négatif et il en résulte une refusion locale qui peut conduire à la fragmentation des bras secondaires. Dans ce cas, la convection est dominante c'est-à-dire que la vitesse du soluté est plus rapide que les isothermes et donc qu'il y a suffisamment de convection pour augmenter la concentration en soluté à l'interface et dans la zone pâteuse. A cause de ce changement de concentration de soluté, le système n'est plus stable et des bras de dendrites vont pouvoir se détacher. Dans la suite, nous appellerons la fragmentation due à de l'apport de soluté dans la zone pâteuse par un écoulement: dissolution. Pour que la dissolution se produise, il faut donc que la composante verticale de la vitesse du liquide soit plus grande que la vitesse de tirage appliquée. Si l'on détermine Γ , on obtient respectivement 0,45 et 2 pour Al-Ni 3,5 %pds et Al-Si 7,0 %pds. De ces valeurs, on peut déduire que la dissolution du bras dendritique peut se produire dans l'alliage Al - 7,0 %pds Si et pas dans l'alliage Al - 3,5 %pds Ni. Suivant ce critère de dissolution, il existe donc une zone favorable à la fragmentation par apport de soluté prédite par les simulations (Figure 6.d) dans l'alliage Al - 7,0 %pds Si et pas dans l'alliage Al - 3,5 %pds Ni.

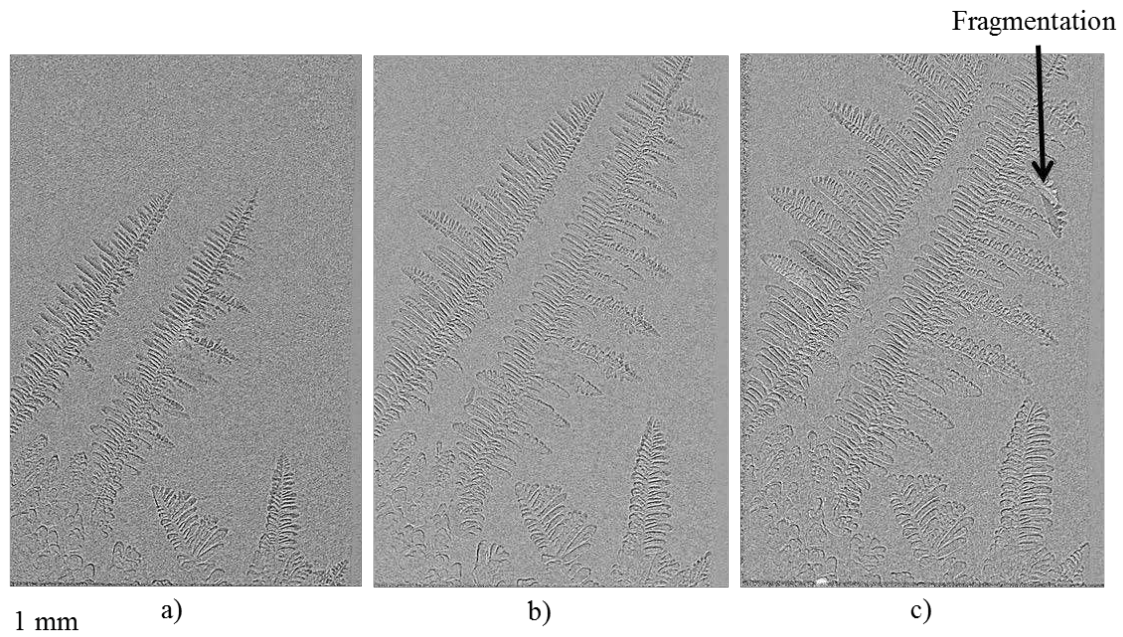
Quand les bras secondaires peuvent refondre par effet thermique (rejet de chaleur latente) ou par dissolution (apport de soluté dans la zone pâteuse par convection) comme dans l'alliage Al - 7,0 %pds Si, ces morceaux détachés peuvent être à l'origine de nouveaux grains. L'écoulement naturel ou forcé peut donc favoriser le phénomène de fragmentation. Il joue également un rôle dans le transport des fragments vers des zones de croissance. Le transport des bras de dendrites dans le liquide a été identifié comme l'un des mécanismes de formation de microstructures dendritiques équiaxes par Jackson *et al.* [11] et Paradies *et al.* [22].

1.3 ETUDE DU PHENOMENE DE FRAGMENTATION

Afin d'étudier la fragmentation, nous avons réalisé des expériences avec l'alliage Al-Si 7,0 %pds et l'alliage Al-Sn 14 %pds. Dans ces deux alliages, la morphologie des dendrites semble plus favorable à la fragmentation et, l'intervalle de solidification important induit une zone pâteuse étendue ce qui est également favorable à la fragmentation.

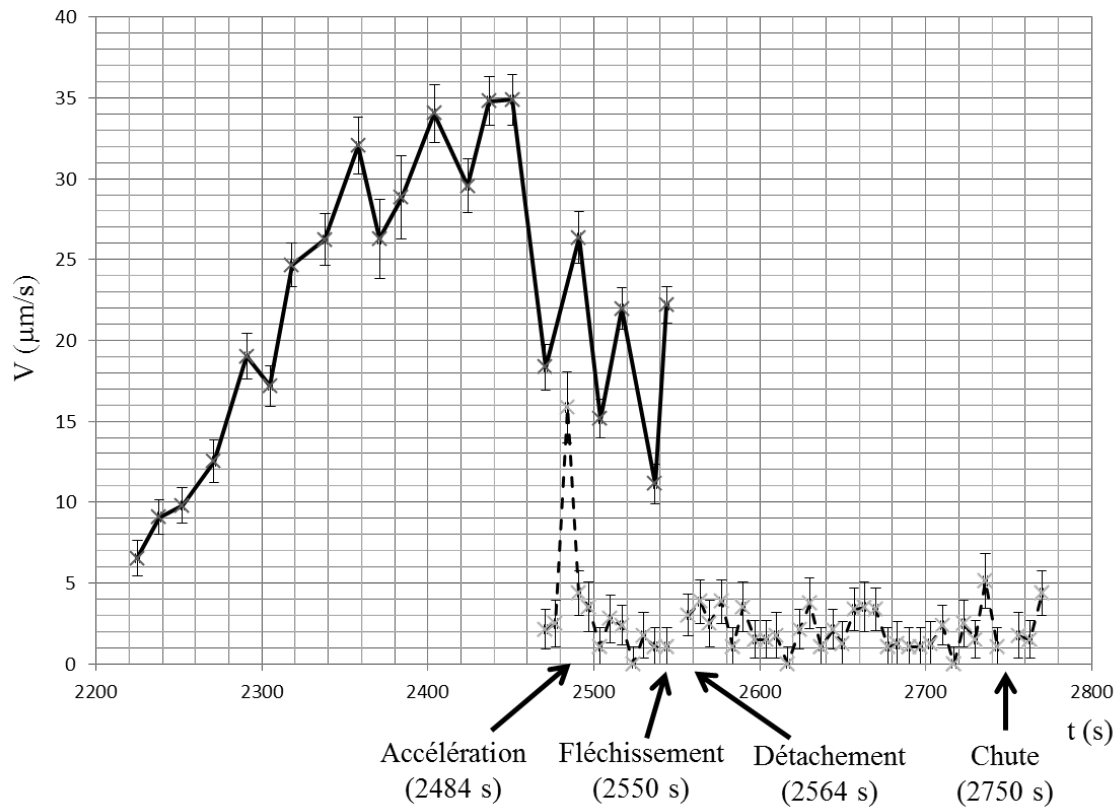
1.3.1 Fragmentation dans l'alliage Al-Si 7,0% pds

La figure 7 présente la morphologie de la croissance colonnaire dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification obtenue par refroidissement à 1 K/min de la zone chauffante supérieure. Il faut noter que les densités de l'aluminium et du silicium sont très proches et que par conséquent, l'absorption des zones riches en aluminium et des zones riches en silicium est pratiquement identique. Pour cet alliage, il est donc nécessaire d'utiliser des techniques de traitement des images pour révéler l'interface solide-liquide. La méthode consiste à diviser pixel à pixel l'image en cours par l'image précédente ou une image enregistrée quelques instants avant. Il est nécessaire de porter attention à l'interprétation des images obtenues. Sur la figure 7 par exemple, les zones gris foncé correspondent au solide supplémentaire qui a crû (Figure 7.a) ou à la nouvelle position d'une branche secondaire qui a fragmenté (Figure 7.c).



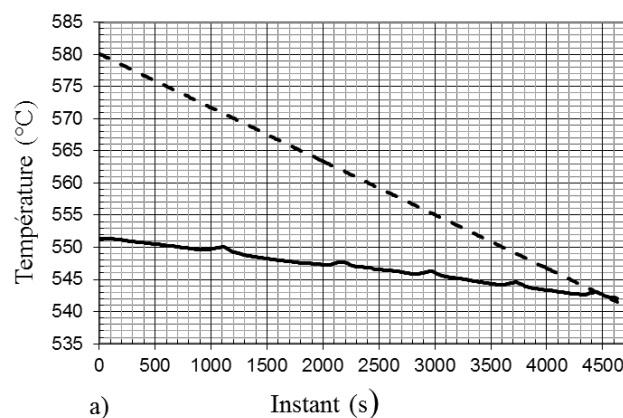
Chapitre 1 Fig. 7: Al-Si 7,0 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 1K/min a) $t = t_0 + 40 \text{ min } 37 \text{ s}$ (2437 s), b) $t = t_0 + 42 \text{ min } 50 \text{ s}$ (2570 s), c) $t = t_0 + 45 \text{ min } 50 \text{ s}$ (2750 s). t_0 correspond au début du refroidissement.

Après le début du refroidissement de la zone chaude qui induit une diminution du gradient thermique, la croissance est colonnaire (Figure 7.a). Lorsque les branches secondaires se développent, on observe le fléchissement de certains bras secondaires (Figure 7.b). Enfin, figure 7.c, on observe la chute d'un bras secondaire qui suit sa fragmentation.

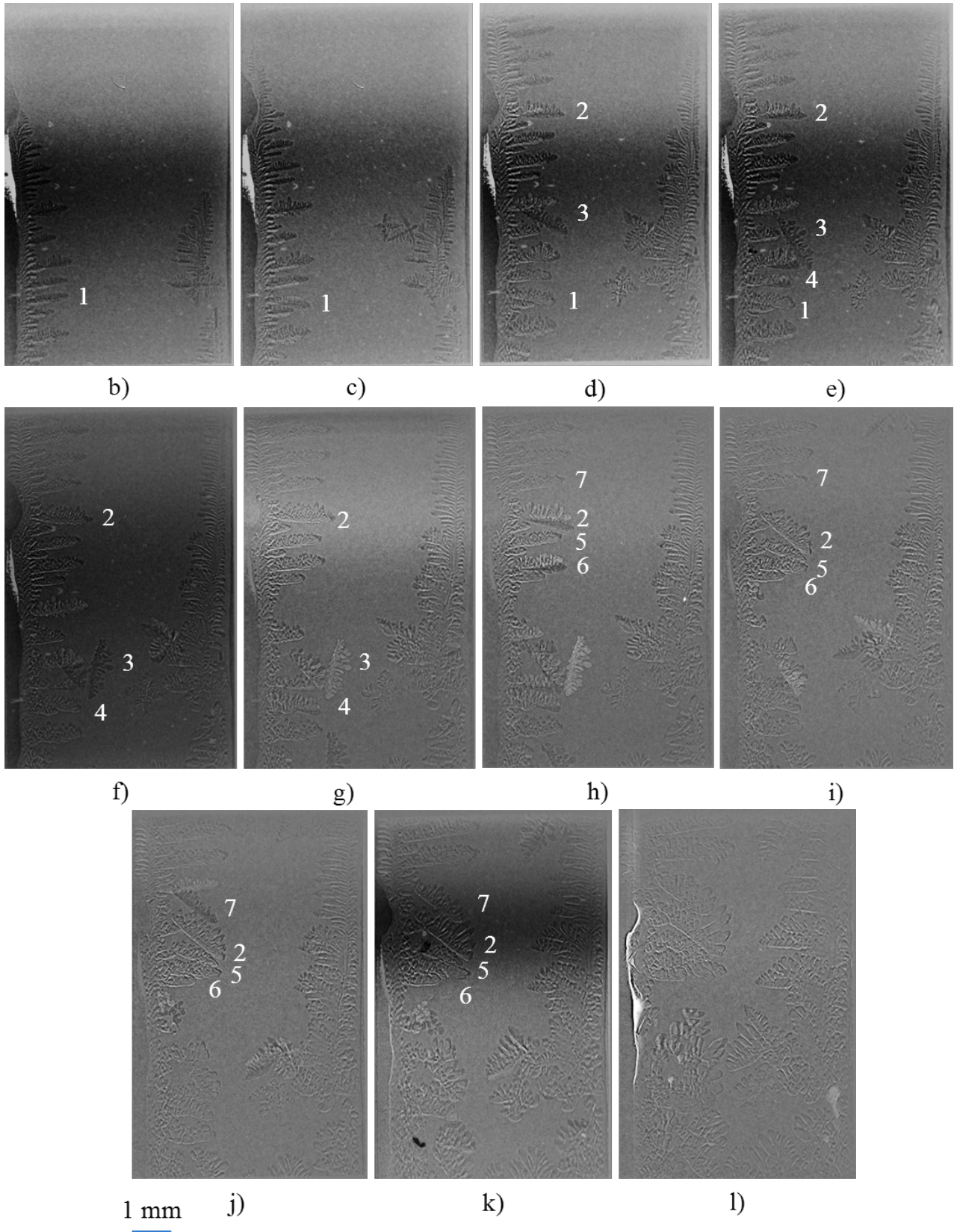


Chapitre 1 Fig. 8: Mesures des vitesses de croissance de la pointe de la dendrite colonnaire (Trait plein) et de la pointe du bras secondaire qui chute figure 7.c (Trait pointillé) au cours de la solidification d'Al-Si 7,0 %pds non affiné, Refroidissement sur la zone résistive chaude: 1 K/min.

Les vitesses de croissance des pointes ont été mesurées pour le tronc primaire et le bras secondaire qui se détache (Figure 8) pour l'expérience dont les radiographies sont présentées figure 7. Après l'application de la vitesse de refroidissement sur la zone chaude, la vitesse du tronc primaire subit une accélération suivie d'un ralentissement. Il en est de même pour le bras secondaire. Le détachement est observé peu de temps après (environ 1 min) une accélération jusqu'à une vitesse de 15 $\mu\text{m/s}$ suivie d'une décélération et, du fléchissement du bras. Environ trois minutes après le détachement, le bras secondaire chute puis continue à croître sans nouvelle accélération pendant sa chute dans la zone pâteuse.



Chapitre 1 Fig. 9: Al-Si 7,0 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone chaude: 0,5 K/min avec une charge thermique centrale, a) Tracé des températures enregistrées sur les éléments chauffants pendant le refroidissement de la zone chaude, trait pointillé: zone résistive supérieure, trait plein: zone résistive inférieure.

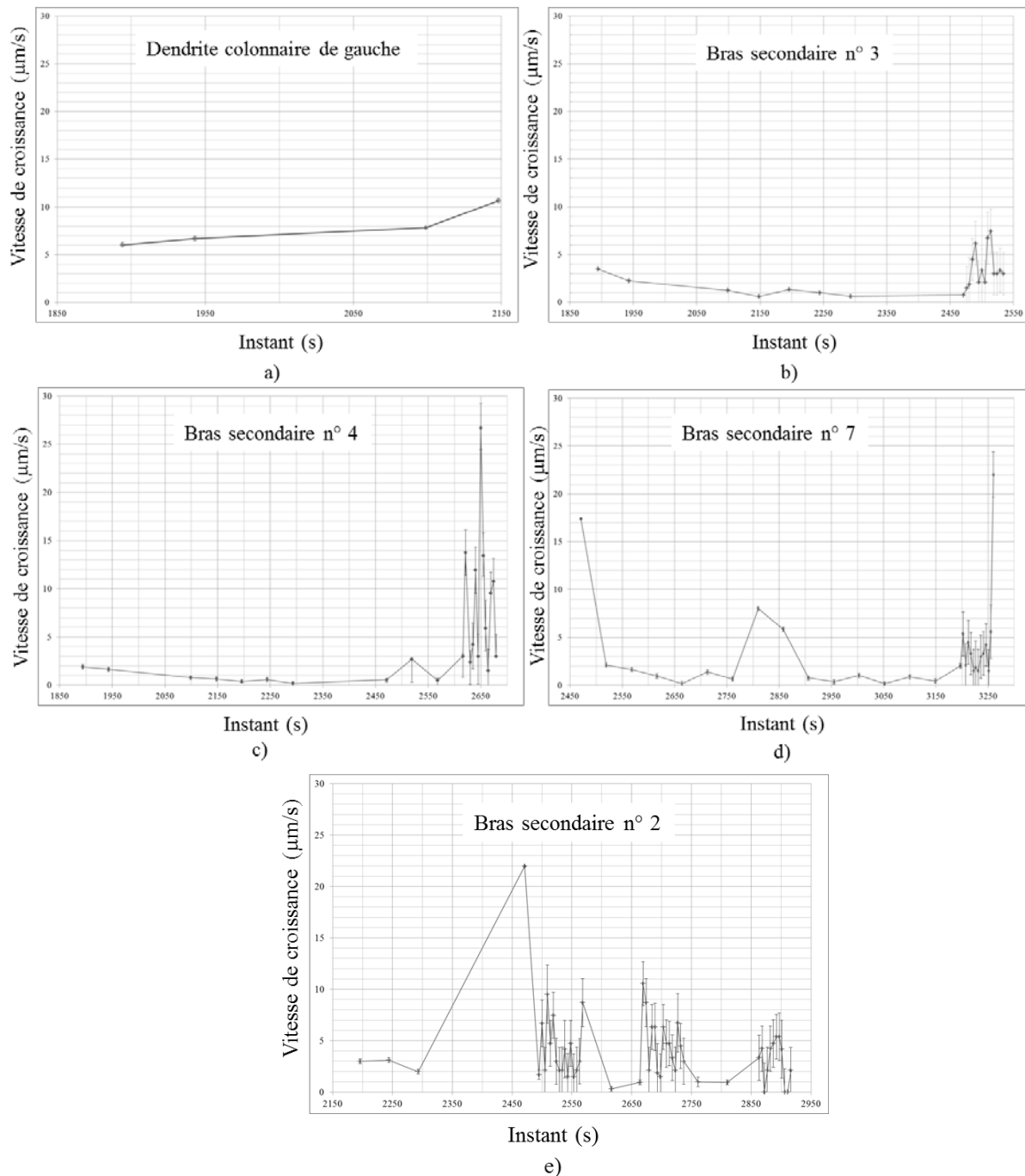


Chapitre 1 Fig. 9: Al-Si 7,0 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,5 K/min avec une charge thermique centrale, b) $t = t_0 + 32 \text{ min } 28 \text{ s}$ (1948 s), c) $t = t_0 + 34 \text{ min } 35 \text{ s}$ (2075 s), d) $t = t_0 + 42 \text{ min } 18 \text{ s}$ (2538 s), e) $t = t_0 + 43 \text{ min } 36 \text{ s}$ (2616 s), f) $t = t_0 + 44 \text{ min } 49 \text{ s}$ (2689 s), g) $t = t_0 + 48 \text{ min } 2 \text{ s}$ (2882 s), h) $t = t_0 + 48 \text{ min } 31 \text{ s}$ (2911 s), i) $t = t_0 + 52 \text{ min } 4 \text{ s}$ (3124 s), j) $t = t_0 + 54 \text{ min } 54 \text{ s}$ (3294 s), k) $t = t_0 + 62 \text{ min } 33 \text{ s}$ (3753 s), l) $t = t_0 + 76 \text{ min } 47 \text{ s}$ (4607 s). t_0 correspond au début du refroidissement.

La figure 9 présente la morphologie de la croissance colonnaire dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification obtenue par refroidissement à 0,5 K/min de la zone chauffante supérieure. Dans cette expérience, aucun filtre n'était utilisé pour le faisceau blanc de rayons X ce qui induisait une charge thermique centrale importante.

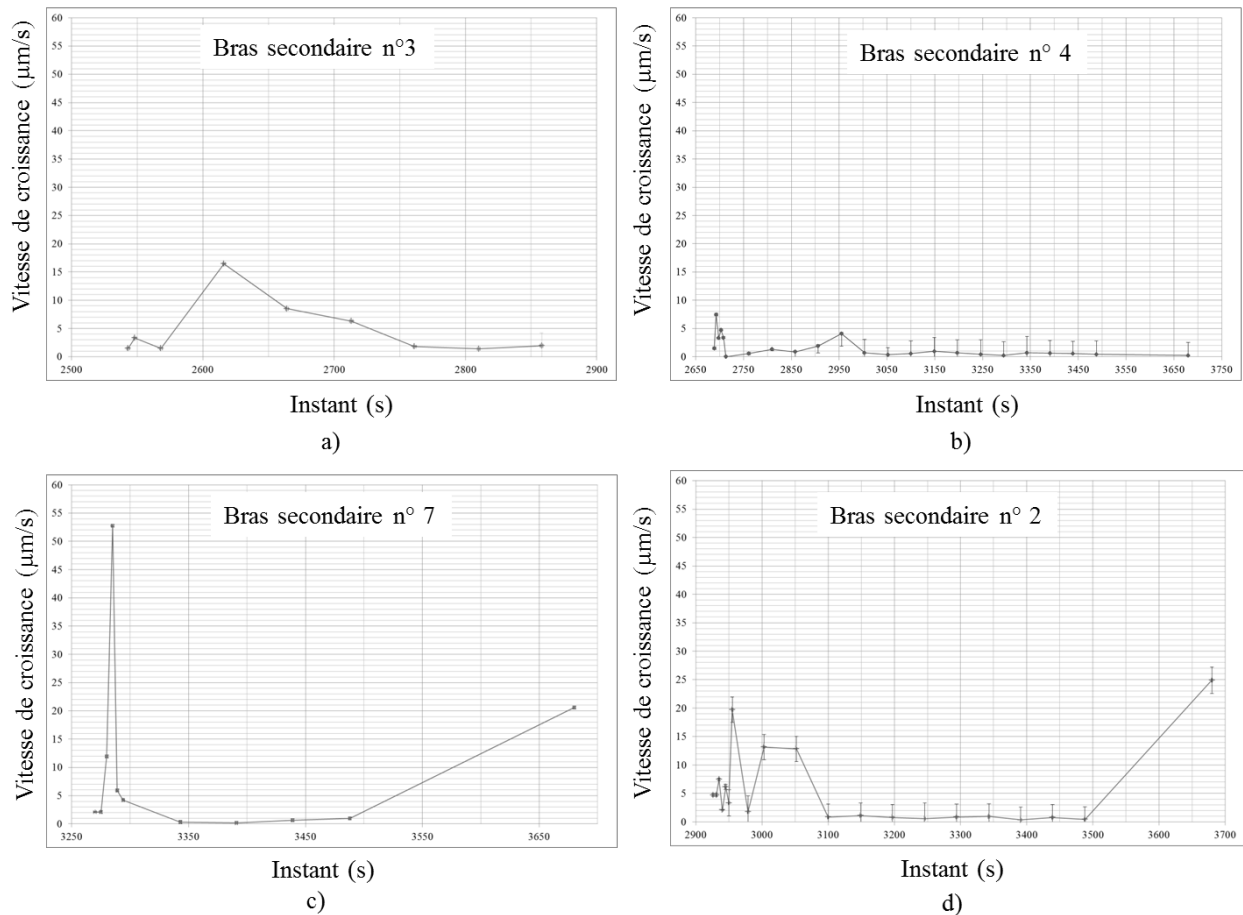
Le refroidissement de la zone résistive supérieur uniquement induit une diminution du gradient thermique jusqu'à 0 (Figure 9.a) pendant l'expérience. Au début du refroidissement, deux dendrites colonnaires se développent sur les bords de l'échantillon dans la direction verticale vers le haut (Figure 9.b). Les bras secondaires se développent à partir de ces dendrites colonnaires latérales vers le centre de l'échantillon. Des phénomènes de fléchissement de ces bras sont observés, par exemple, les bras identifiés: 1, 2 & 3 (Figure 9.c & e). Le bras 3 se détache et chute (Figure 9.d) sur le bras 4 est situé en dessous (Figure 9.e). Le bras 3 entraîne le bras 4 qui se détache à son tour (Figure 9.f) provoquant un phénomène de fragmentation en cascade. Le bras 3 continue sa chute et sort hors du champ de vue (Figure 9.g). D'autres fléchissements et fragmentations en cascade s'enchainent comme pour les bras 2, 5, 6 & 7 (Figure 9.h et i). Les bras secondaires détachés recroissent (Figure 9.j et k) recroissent après leur fragmentation. En fin d'expérience, on observe une structure de grains comparable à la structure de grains dans un lingot de fonderie avec une structure colonnaire sur les parois et une structure équiaxe en bas au centre (Figure 9.l).

Les vitesses de croissance des pointes ont été mesurées pour le tronc primaire et les bras secondaires (Figure 10) pour l'expérience dont les radiographies sont présentées sur la figure 9. Sur la figure 10, on représente également l'incertitude de la mesure de la vitesse. On observe une accélération de la vitesse de croissance du tronc primaire avant que sa pointe ne sorte du champ de vue (Figure 10.a). Les figures 10.b à 10.e présentent les vitesses de pointe des bras secondaires 2, 3, 4 & 7 (Figure 9) jusqu'à l'instant de leur fragmentation. Dans tous les cas, le détachement est observé peu de temps après une accélération suivie d'une décélération. Pour le bras secondaire n°2, l'accélération la plus importante n'est cependant pas suivie immédiatement d'une fragmentation.



Chapitre 1 Fig. 10: Al-Si 7,0 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,5 K/min avec une charge thermique centrale. Vitesse de croissance en $\mu\text{m/s}$ mesurée au cours de l'expérience pour : a) le sommet du tronc primaire de gauche, la pointe des bras secondaires identifiés sur la figure 9 jusqu'à leur détachement b) n°3, c) n°4, d) n°7, e) n°2.

Les vitesses de croissance des pointes des bras secondaires pour l'expérience dont les radiographies sont présentées figure 9 ont été également mesurées après leur fragmentation (Figure 11). Tous les bras secondaires qui ont subi une fragmentation recroissent après leur fragmentation et leur chute. La recroissance du bras secondaire n°3 (Figure 11.a) et du bras secondaire n°4 (Figure 11.b) est stoppée après une phase de recroissance. De même, la recroissance du bras secondaire n°7 (Figure 11.c) et du bras secondaire n°2 est stoppée. Cependant, après quelques minutes, la vitesse de ces deux bras recommence à augmenter (Figures 11.c & d).



Chapitre 1 Fig. 11: Al-Si 7,0 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,5 K/min, charge thermique centrale. Vitesse de croissance en $\mu\text{m/s}$ mesurée après leur détachement pour les bras secondaires identifiés sur la figure 9: a) n°3, b) n°4, c) n°7, d) n°2.

Discussion [23, 37, 43-48, 54] :

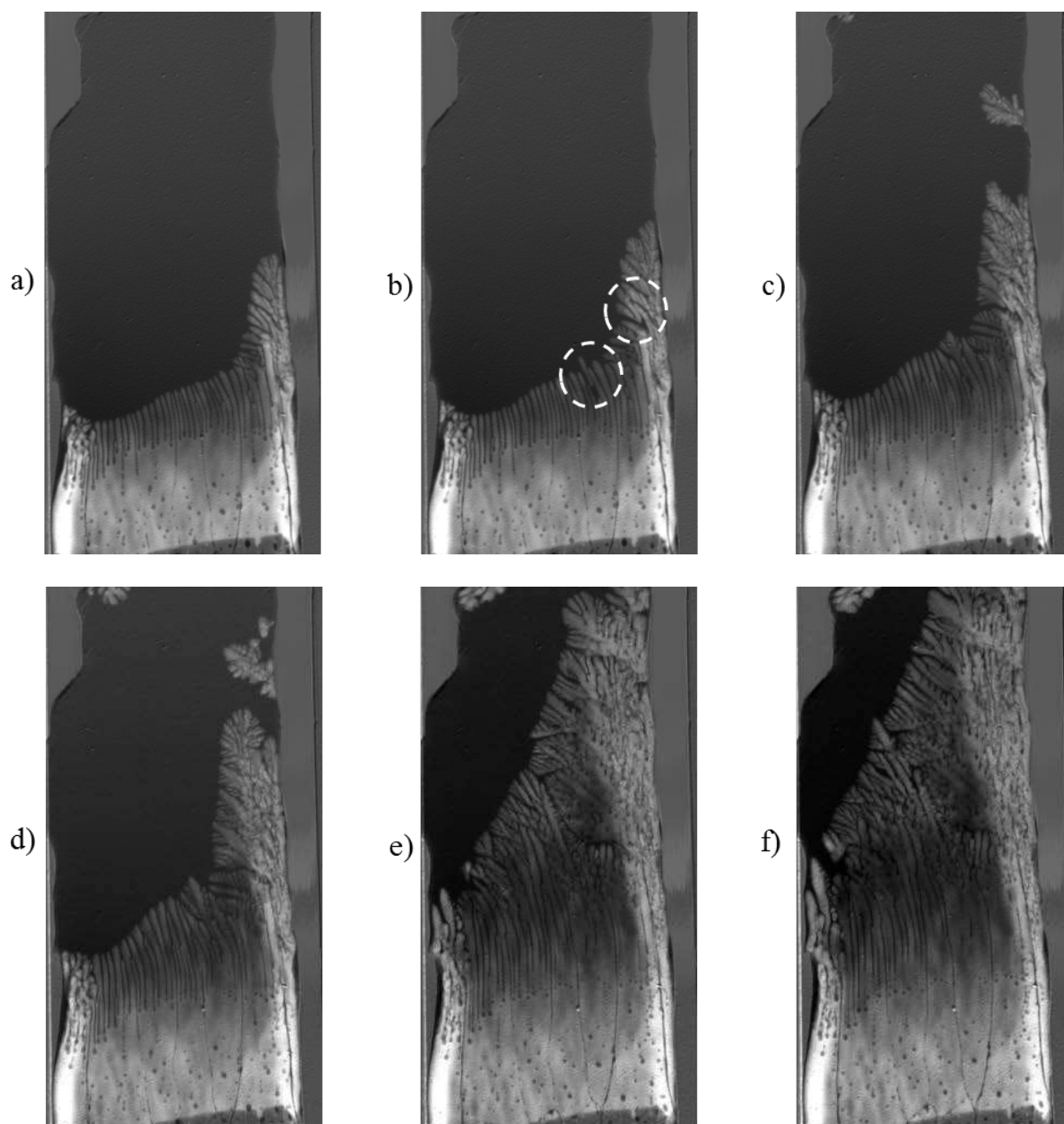
Dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds, la fragmentation des bras secondaires est souvent précédée par un fléchissement de ce bras comme on le voit sur la figure 7 mais le fléchissement n'est pas une condition suffisante pour la fragmentation. En effet, le fléchissement traduit uniquement un effet mécanique dû à l'allongement du bras [55] et est observé fréquemment dans Al-Ni 3,5 %pds sans que cela se traduise par une fragmentation des bras secondaires [42].

Pour l'expérience figure 7, nous avons mesuré la vitesse de croissance du sommet du tronc primaire et d'un bras secondaire qui fragmente. Nous appliquons une vitesse de refroidissement constante sur la zone haute ou chaude ce qui implique une diminution du gradient thermique et, par conséquent, comme la vitesse de refroidissement est constante, une augmentation de la vitesse de croissance. L'augmentation de la vitesse de croissance est en effet observée pour le tronc primaire (Figure 8) après le début du refroidissement. Cependant, après avoir atteint un maximum, la vitesse du tronc primaire diminue et semble se stabiliser bien que la mesure ne puisse pas être continuée après la sortie de la pointe du tronc primaire du champ de vue. Ce ralentissement de la croissance a pour cause le rejet de chaleur latente et de soluté massif au moment de l'accélération suivant l'application du refroidissement. De plus, la pointe de la dendrite approche du bord de l'échantillon et peut ralentir par auto-empoisonnement de son environnement car le soluté ne peut plus être évacué. Enfin, le rejet de chaleur latente est d'autant moins efficacement évacué par le solide que le gradient axial

diminue simultanément. En parallèle, le même phénomène est observé lors de la croissance du bras secondaire dont on a mesuré la vitesse de croissance (Figure 8) i.e. une augmentation de la vitesse de croissance suivie d'un ralentissement ou d'une refusion. La fragmentation suit ce ralentissement et est précédée dans cette expérience d'un fléchissement. De plus, ce bras secondaire se trouve dans une région riche en soluté du fait du rejet de soluté et du blocage du tronc primaire par les parois de l'échantillon. Il y a donc un apport supplémentaire en soluté qui peut également concourir à son détachement. Après son détachement et sa chute due à la différence de densité liquide/solide dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds, le bras secondaire recommence à croître car il se trouve dans un environnement favorable à la croissance lorsqu'il s'éloigne du tronc primaire. Ces types de fragments peuvent être à l'origine de grains équiaxes. Des travaux précédents [7, 8, 22] ont montré que des variations des paramètres de solidification (accélération, ralentissement) pouvaient être à l'origine des fragmentations ce que nous voyons dans nos expériences. De plus, le fléchissement observé peut avoir un effet de fragilisation mécanique qui favorise la fragmentation par refusion comme proposé dans les travaux de Ananiev *et al.*[56].

Cependant, dans le cas précédent, le phénomène de fragmentation est isolé et ne conduit pas à la CET. Dans ce même alliage, nous avons pu étudier des conditions proches de conditions de fonderie. En effet, dans l'expérience présentée figure 9, la charge thermique du faisceau de rayons X utilisé pour l'imagerie était importante et induisait une zone plus chaude au centre de l'échantillon et donc, une croissance de deux dendrites colonnaires sur les bords dans les premiers instants de solidification. Dans cette expérience, les bras secondaires des deux dendrites latérales croissent vers le centre dans un gradient thermique décroissant (Figure 9.a), les conditions sont donc comparables au procédé de fonderie. Les bras secondaires subissent de nombreux fléchissements et de nombreuses fragmentations dans cette expérience. Certains fragments entraînent d'autres bras dans leur chute provoquant un phénomène de fragmentations en cascade. Lorsqu'on mesure la vitesse de croissance du tronc primaire et des pointes des bras secondaires avant leur fragmentation (Figure 10), on observe de nouveau que la fragmentation suit dans tous les cas un maximum de vitesse donc un maximum de rejet de chaleur latente et de soluté. Les fragments donnent naissance à des grains équiaxes qui recroissent après la fragmentation (Figure 11). Il est à noter qu'après une phase de recroissance, les bras secondaires n°3 et 4 s'arrêtent (Figures 11.a & b). Ces bras n°3 et 4 tombent dans la partie basse de l'échantillon et se retrouvent entourés de dendrites proches qui vont bloquer leur croissance par blocage solutal (Figure 11) [57]. Les bras secondaires n°7 et 2 (Figure 11.c & d), quant à eux, subissent un arrêt de leur croissance lorsque le bras secondaire n°7 tombe sur le n°2 puis, leur vitesse recommence à augmenter. Dans cette expérience, l'état final (Figure 9.l) est similaire à celui observé en fonderie c'est-à-dire des dendrites colonnaires sur les parois et une zone équiaxe localisée au centre en bas de l'échantillon. Cette expérience confirme donc que la fragmentation peut-être à l'origine d'une zone équiaxe dans les alliages de fonderie. Dans ce cas de figure, la convection ne joue pas de rôle dans le blocage du front colonnaire par les grains équiaxes mais la gravité joue un rôle important dans la formation de la zone équiaxe en accumulant les grains équiaxes dans la partie basse centrale. De plus, comme on l'a mentionné, le fléchissement des bras secondaires dû à la gravité peut favoriser leur fragmentation.

1.3.2 Fragmentation dans l'alliage Al-Sn 14% pds

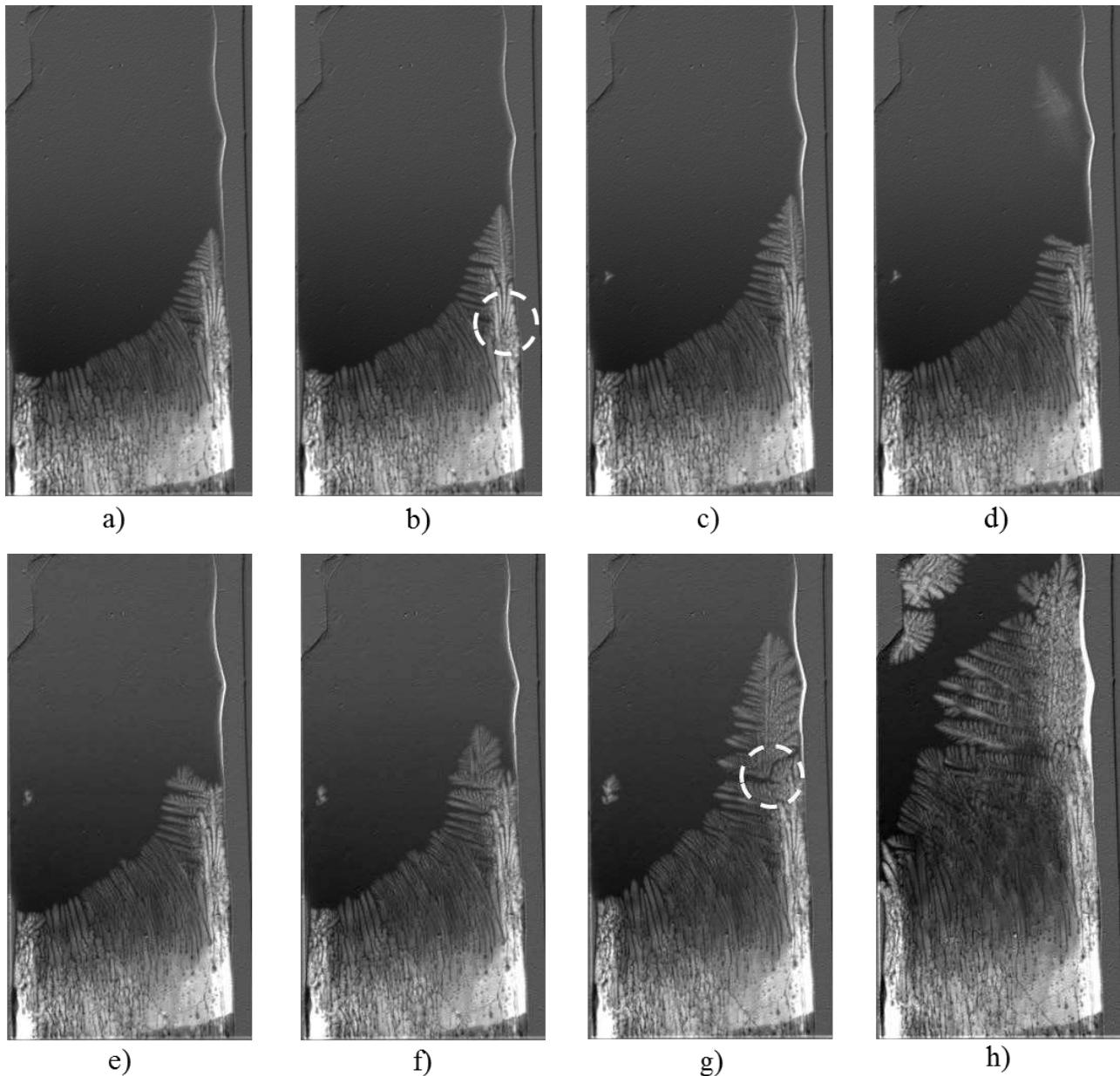


2 mm

Chapitre 1 Fig. 12: Al-Sn14 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,2 K/min, a) $t = t_0 + 4 \text{ h } 22 \text{ min } 48 \text{ s}$, b) $t = t_0 + 4 \text{ h } 27 \text{ min } 28 \text{ s}$, c) $t = t_0 + 4 \text{ h } 39 \text{ min}$, d) $t = t_0 + 4 \text{ h } 50 \text{ min } 38 \text{ s}$, e) $t = t_0 + 5 \text{ h } 37 \text{ min } 3 \text{ s}$, f) $t = t_0 + 6 \text{ h } 18 \text{ s}$. t_0 correspond au début du refroidissement.

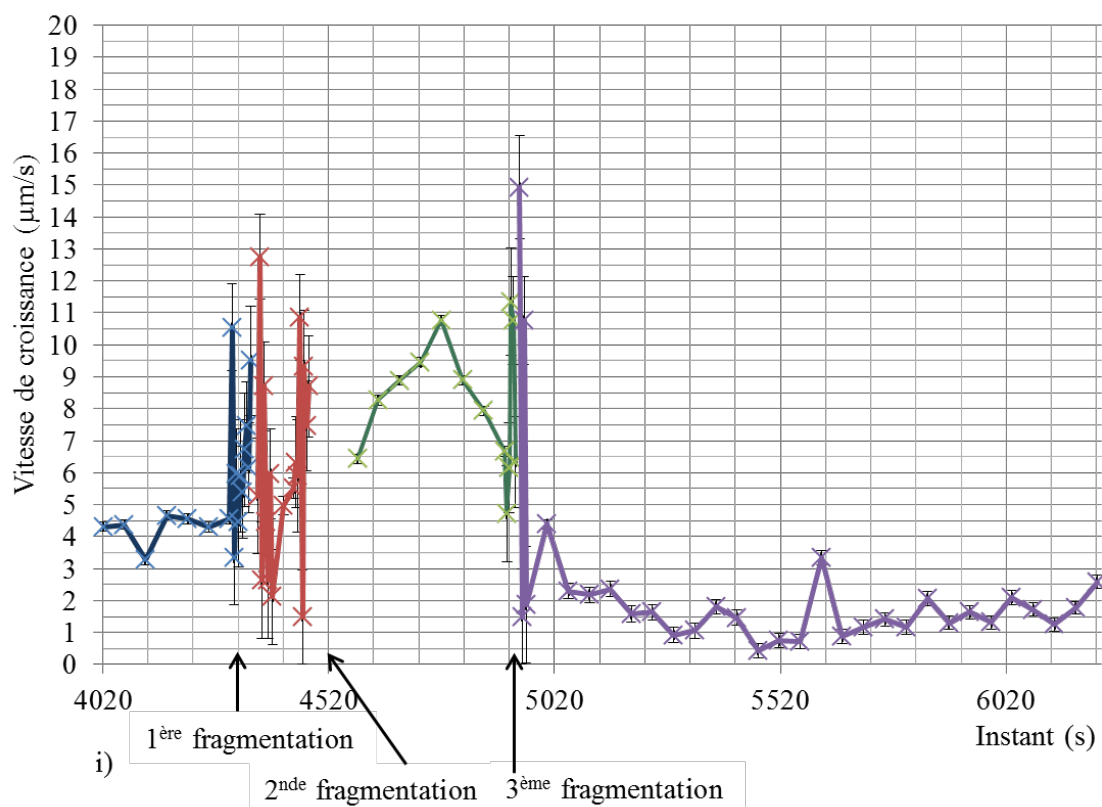
Dans l'alliage Al-Sn 14 %pds, l'expérience réalisée avec une vitesse de refroidissement de 0,2 K/min appliquée à la zone chaude est présentée figure 12. Après le début du refroidissement de la zone résistive supérieure qui induit une diminution du gradient thermique à partir d'un talon solide comme précédemment (courbe de température non représentée ici), la croissance est cellulaire sur la majeure partie de l'interface et dendritique colonnaire sur la droite (Figure 12.a). Les cellules n'ont pas toutes la même orientation en fonction de leur position sur l'interface. Figure 12.b, on observe plusieurs fragmentations :

une cellule et un bras secondaire de la dendrite de droite (cercles blancs). Dans cet alliage, du fait des différences de densité, les fragments détachés s'élèvent vers la partie chaude de l'échantillon où ceux qui ne sont pas bloqués par les parois ou par la microstructure refondent. De façon plus inattendue, la fragmentation du tronc primaire peut subvenir (Figure 12.c). Dans cette expérience, le fragment de tronc primaire se retrouve bloqué au-dessus de l'interface et recommence à croître (Figures 12.c & d). Les dendrites se développent alors latéralement vers la gauche de l'échantillon (Figure 12.e). A la fin de cette expérience, la structure de grains colonnaire après mûrissement ne garde pas de trace apparente des nombreuses fragmentations qui se sont produites (Figure 12.f).



2 mm

Chapitre 1 Fig. 13: Al-Sn14 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,5 K/min, a) $t = t_0 + 71 \text{ min } 11 \text{ s}$ (4271 s), b) $t = t_0 + 73 \text{ min } 16 \text{ s}$ (4396 s), c) $t = t_0 + 74 \text{ min } 3 \text{ s}$ (4443 s), d) $t = t_0 + 74 \text{ min } 40 \text{ s}$ (4480 s), e) $t = t_0 + 76 \text{ min}$ (4560 s), f) $t = t_0 + 77 \text{ min } 57 \text{ s}$ (4677 s), g) $t = t_0 + 82 \text{ min } 19 \text{ s}$ (4939 s), h) $t = t_0 + 101 \text{ min } 20 \text{ s}$ (6080 s).

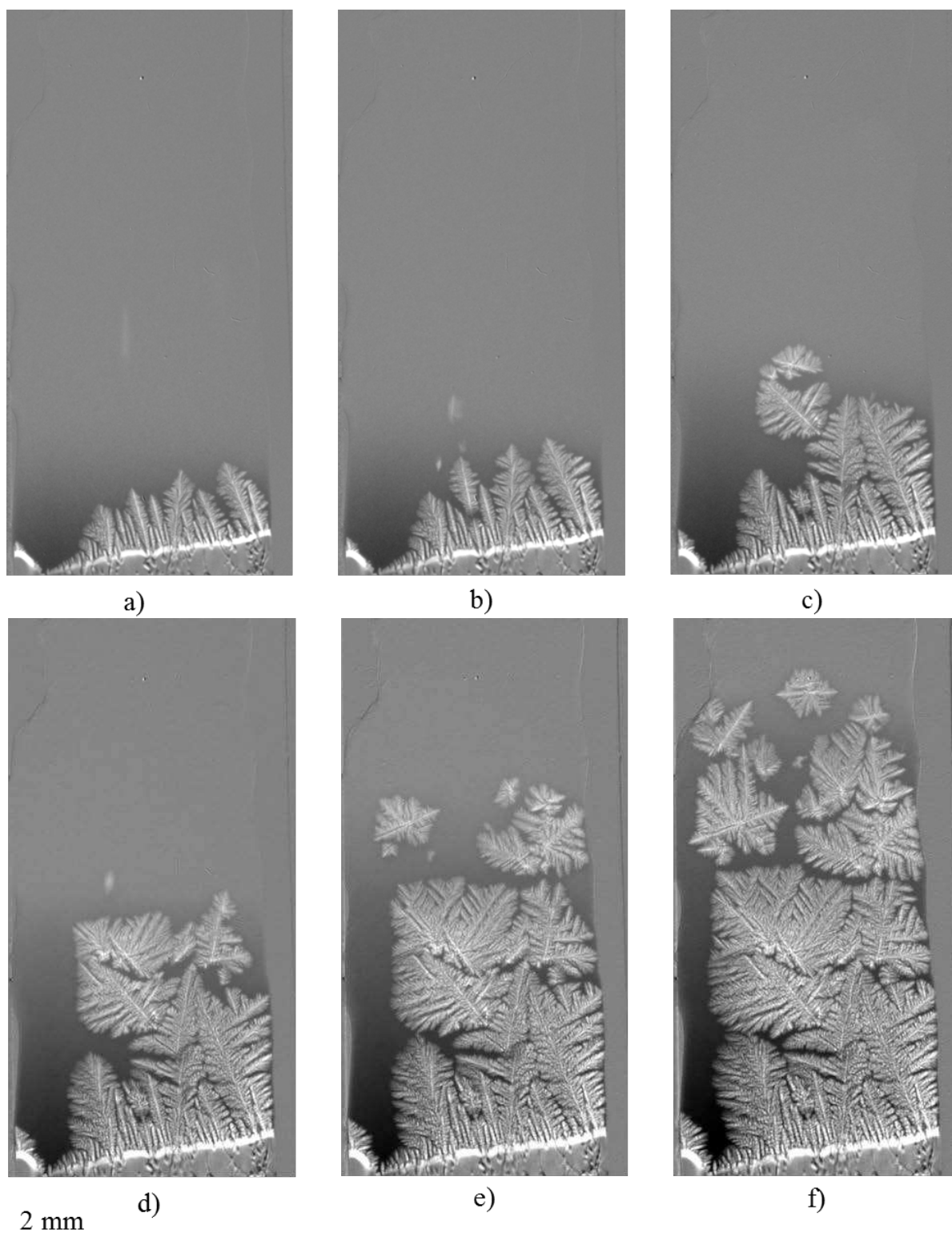


Chapitre 1 Fig. 13: Al-Sn14 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 0,5 K/min, i) Mesure des vitesses de croissance des points du tronc primaire de droite avant fragmentation puis du tronc primaire après la première, seconde, troisième fragmentation

La figure 13 présente la morphologie de croissance dans l'alliage Al-Sn 14 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification obtenue par refroidissement à 0,5 K/min de la zone chauffante supérieure.

Après le début du refroidissement de la zone chaude qui induit une diminution du gradient thermique, la croissance à partir du talon solide est rapidement dendritique à cette vitesse de refroidissement, une dendrite colonnaire sur la droite est en avance sur les autres (Figure 13.a). La vitesse de croissance de la pointe de la dendrite colonnaire de droite a été mesurée. Cette vitesse augmente continuellement à partir de 4 $\mu\text{m/s}$ jusqu'à atteindre environ 10 $\mu\text{m/s}$ puis diminue à nouveau jusqu'à un nouveau maximum à environ 10 $\mu\text{m/s}$ (Figure 13.i). Quelques secondes après ce second pic de vitesse de croissance, on observe la fragmentation du tronc primaire (cercle sur la figure 13.b). Le morceau de tronc primaire détaché reste proche de sa position initiale et la pointe de la dendrite recommence à croître en subissant des oscillations de vitesse de croissance comme précédemment (Figure 13.i), les branches secondaires se développent également et remontent (Figure 13.c). Quelques secondes après un nouveau maximum de vitesse de croissance, le tronc primaire se détache en un autre point mais dans ce cas remonte vers la partie haute de l'échantillon où il est refondu (Figure 13.d). On observe alors (Figure 13.e et f) et, on mesure (Figure 13.i) une recroissance vers le haut des bras tertiaires dans le sens du gradient à partir d'un bras secondaire de la dendrite initiale. Un nouveau détachement se produit après un nouveau pic de vitesse de croissance au niveau du point d'attache sur le bras secondaire initial (Cercle figure 13.g). Par la suite la dendrite poursuit sa croissance sans nouvelles refusions (Figure 13.h), la vitesse de croissance se stabilisant autour de quelques $\mu\text{m/s}$. Il est important de noter que l'historique de ces fragmentations ne peut être mis en évidence que par le suivi dynamique par radiographie X

pendant la solidification. La structure finale ne donne pas suffisamment d'indications pour cela.



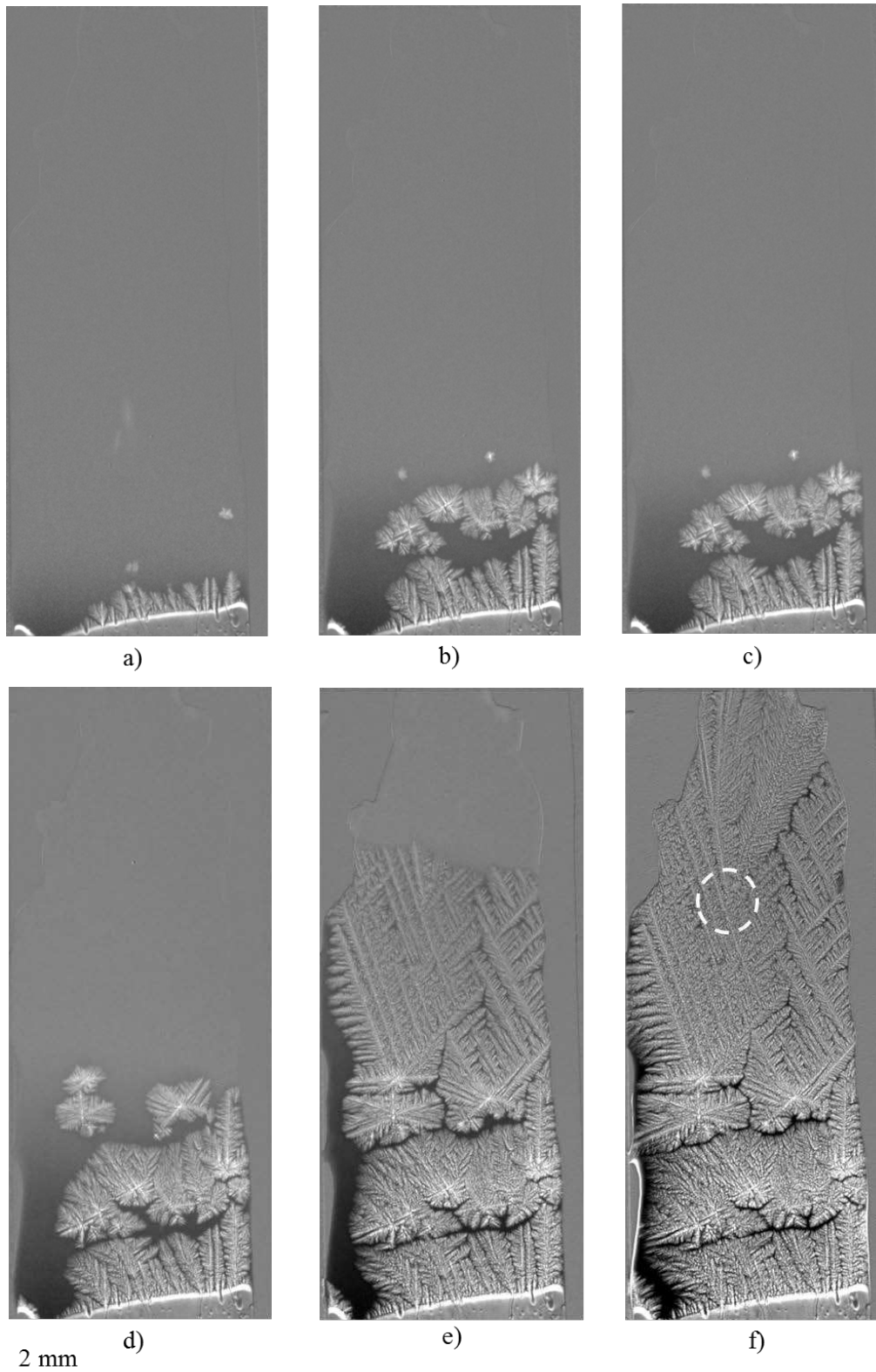
Chapitre 1 Fig. 14: Al-Sn 14 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 8 K/min), a) $t = t_0 + 3 \text{ min } 14 \text{ s}$, b) $t = t_0 + 3 \text{ min } 32 \text{ s}$, c) $t = t_0 + 4 \text{ min } 7 \text{ s}$, d) $t = t_0 + 4 \text{ min } 43 \text{ s}$, e) $t = t_0 + 5 \text{ min } 20 \text{ s}$, f) $t = t_0 + 5 \text{ min } 55 \text{ s}$.

La figure 14 présente la morphologie de croissance dans l'alliage Al-Sn 14 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification obtenue par refroidissement à 8 K/min de la zone chauffante supérieure.

Après le début du refroidissement de la zone chaude qui induit une diminution du gradient thermique, la croissance est dendritique dès les premières instabilités d'interface qui se développent à cette vitesse de refroidissement (Figure 14.a). Les dendrites colonnaires dans le sens du gradient sont en compétition et seules certaines continuent à croître. Assez rapidement, de nombreuses fragmentations de troncs primaires et de branches secondaires sont observées (Figure 14.b). Les fragments remontent comme pour les autres expériences avec cet alliage (Figure 14.c). Cependant, certains fragments sont bloqués dans leur ascension et recommencent à croître jusqu'à induire une transition colonnaire-équiaxe en bloquant les grains colonnaires (Figure 14.d). Ce processus se répète à plusieurs reprises provoquant des transitions colonnaire-équiaxe successives (Figure 14.e & f).

La figure 15 présente la morphologie de croissance dans l'alliage Al-Sn 14 %pds non affiné observée par radiographie X pendant la solidification obtenue par refroidissement à 16 K/min de la zone chauffante supérieure.

Après le début du refroidissement de la zone chaude qui induit une diminution du gradient thermique, la croissance est de nouveau dendritique dès les premières instabilités d'interface qui se développent à cette vitesse de refroidissement (Figure 15.a). De nombreuses fragmentations de branches secondaires sont observées dès les premiers instants (Figure 15.b) comme dans l'expérience à 8 K/min (Figure 14). Les fragments remontent comme pour les autres expériences avec cet alliage et certains fragments sont bloqués dans leur ascension (Figure 15.c). Ils recommencent à croître jusqu'à induire une transition colonnaire-équiaxe en bloquant les grains colonnaires tout en subissant de nouvelles fragmentations (Figure 15.d). La seconde couche de grains équiaxes issus de la fragmentation croît alors de façon colonnaire (Figure 15.e) sans nouvelles fragmentations jusqu'à la solidification complète de l'échantillon dans le champ de vue (Figure 15.f). L'orientation particulière des branches (inclinées par rapport à la direction du gradient thermique) des deux dendrites équiaxes qui prennent le dessus et croissent de façon colonnaire provoque une compétition entre ces deux grains (Figure 15.d & f). De plus, une orientation particulière et qui dévie de l'orientation d'origine est observée en fin de solidification de l'échantillon (Cercle figure 15.f).



Chapitre 1 Fig. 15: Al-Sn 14 %pds non affiné, Vitesse de refroidissement appliquée à la zone résistive supérieure: 16 K/min, a) $t = t_0 + 1 \text{ min } 23 \text{ s}$, b) $t = t_0 + 1 \text{ min } 39 \text{ s}$, c) $t = t_0 + 1 \text{ min } 51 \text{ s}$, d) $t = t_0 + 2 \text{ min } 16 \text{ s}$, e) $t = t_0 + 2 \text{ min } 66 \text{ s}$, f) $t = t_0 + 4 \text{ min } 8 \text{ s}$.

Discussion:

Un autre alliage d'intérêt pour la compréhension du mécanisme de fragmentation a donc pu être étudié : Al-Sn 14 %pds. La même procédure que précédemment est utilisée c'est-à-dire que l'on applique une vitesse de refroidissement uniquement sur la zone haute chaude ce qui implique une diminution du gradient thermique. Bien qu'une seule courbe d'évolution de la température soit proposée ici (Figure 9.a), elles ont été enregistrées pour toutes les expériences et, on mesure comme attendu une diminution du gradient thermique. De nouveau, un gradient thermique en baisse pour une vitesse de refroidissement constante implique une augmentation de la vitesse de croissance. Dans les expériences figures 12 et 15, la forme de l'interface indique qu'un gradient thermique radial est présent à l'interface. Ce gradient a pour conséquence un écoulement radial [58] qui induit un creusement de l'interface et une accumulation du soluté d'où une différence de niveau d'instabilité sur l'interface et du développement de la microstructure. Dans les expériences figures 12 à 15, on observe donc une accumulation du soluté à gauche de l'image et un appauvrissement à droite qui a pour conséquence une croissance plus déstabilisée du côté droit. Enfin, l'orientation différente des dendrites naissantes à l'interface est due à la présence de plusieurs grains dans le talon solide conservé pendant la phase de stabilisation thermique qui précède la phase de refroidissement contrôlé (Figure 12).

Dans cet alliage, de très nombreuses fragmentations sont observées à la fois de cellules, de bras secondaires mais également de parties du tronc primaire. La particularité de cet alliage est son très important intervalle de solidification (environ 420 K) qui comme l'Al-Si 7,0 %pds est plus favorable à la fragmentation. De plus, dans cet alliage et pour cette composition, le solide est moins dense que le liquide environnant. Les fragments ont donc tendance à s'élever et à être refondus s'ils ne sont pas bloqués. Cette différence de densité a également pour effet d'appliquer une force ascendante sur les bras (des flexions vers le haut des bras secondaires sont observés par exemple figure 13) et sur les troncs primaires. Cette force ascendante pourrait affiner mécaniquement le tronc primaire ce qui favoriserait sa fragmentation par refusion. Il est remarquable de noter que pour l'expérience figure 12 et notamment en partie à cause de la remontée des fragments dans la zone chaude où ils sont refondus, il est très difficile de déduire de la structure de grains finale (Figure 12.f) que de nombreuses fragmentations ont eus lieu pendant la croissance. La fragmentation n'est donc pas une condition suffisante à un changement notable de la structure de grains finale. Cependant, des désorientations locales existent et persistent dans la structure finale.

Dans l'expérience figure 13, des fragmentations répétitives du tronc primaire de la dendrite de droite sont observées. Pour cette expérience, nous avons effectué des mesures de la vitesse de la pointe de la dendrite qui subit ces fragmentations. Comme dans le cas de l'Al-Si 7 %pds (Figures 8 & 10), on mesure un maximum de vitesse suivi d'un ralentissement qui précède la fragmentation ce qui suggère une fragmentation par refusion après rejet de chaleur latente et de soluté. Après la troisième fragmentation, la dendrite stabilise sa vitesse de croissance et poursuit sa croissance sans nouvelle fragmentation. Certains fragments du tronc primaire sont refondus dans la partie chaude alors que d'autres restent coincés et recroissent dans la zone surfondue au-dessus de l'interface (Figure 13). Il est de nouveau important de noter que la structure finale garde peu de traces évidentes de ces nombreuses fragmentations si l'on ne connaît pas l'histoire de son développement bien que des désorientations locales persistent.

Dans ce matériau, nous avons pu mettre en évidence la transition colonnaire équiaxe issue de la fragmentation (Figure 14) pour une vitesse de refroidissement appliquée de 8 K/min. La

CET peut être obtenue car les fragments s'élèvent et sont bloqués au-dessus de l'interface colonnaire et recroissent. La raison du blocage des fragments n'a pas pu être élucidée. Cependant, il est possible qu'ils soient accrochés par des aspérités sur les parois du creuset souple ou bien que leur épaisseur remplisse l'épaisseur du creuset ce qui les empêcherait de continuer leur ascension. La croissance du front colonnaire est alors bloquée par la couche de grains équiaxes lorsqu'il s'en approche. De nouvelles fragmentations du front équiaxe induisent la formation d'un nouveau front équiaxe qui empêche la croissance du premier front de fragments équiaxes. Ce phénomène est donc répétitif et peut permettre la propagation de la zone équiaxe s'il se poursuit. Ce mécanisme de propagation du front équiaxe par fragmentation est à rapprocher du mécanisme de propagation du front équiaxe en présence d'affinants qui sera décrit dans le chapitre 2 bien que l'origine des grains équiaxes soit différente.

Lorsqu'on augmente la vitesse, le nombre de fragments n'augmente pas et au contraire, pour ces vitesses (Figure 15), les fragments ne peuvent plus se former et on retrouve une croissance colonnaire. Dans ce cas, le refroidissement est trop rapide pour laisser le temps au rejet de chaleur latente ou de soluté de provoquer de nouvelles fragmentations. Pour des conditions données et en présence d'un gradient thermique décroissant, il y a donc un domaine de vitesses de croissance pour lequel de nombreuses fragmentations sont possibles. Les vitesses plus basses sont trop lentes pour induire un rejet important de chaleur latente et de soluté suffisant pour détacher des fragments et, les vitesses plus élevées ne laissent pas le temps au détachement de se produire.

Nous avons donc vu que dans ces alliages non affinés le phénomène de fragmentation est le mécanisme à l'origine des grains équiaxes [6, 11]. Cependant, la formation de fragments n'est pas une condition suffisante à l'établissement d'une structure équiaxe car pour cela les fragments doivent recroître et bloquer le front colonnaire le cas échéant. Dans le cas de figure où les fragments sont intégrés dans la microstructure soit qu'ils ne se déplacent pas ou croissent de façon colonnaire après détachement, ils ne peuvent pas être distingués dans la microstructure à l'issue de l'étape de solidification si l'on n'a pas suivi la dynamique de formation de la microstructure. Par contre, leur orientation peut différer de celle de la dendrite dont ils sont issus comme on le verra au chapitre 3 dans les expériences en microgravité ce qui peut avoir un impact sur les propriétés d'usage du matériau.

Peu ou pas de fragmentations sont observées dans Al-Ni 3,5 %pds contrairement à Al-Si 7 %pds et Al-Sn 14 %pds. Cette différence est due à la différence de morphologie entre les dendrites dans ces alliages (Figures 1 à 3). Les dendrites plus pâteuses de l'Al-Ni 3,5 %pds sont moins favorables à la fragmentation. De plus, les deux alliages dans lesquels nous avons observé de nombreuses fragmentations: Al-Si 7,0 %pds et à Al-Sn 14 %pds possèdent un intervalle de solidification important ce qui induit une zone pâteuse étendue. Dans une zone pâteuse plus étendue, la probabilité de fragmentation est accrue à cause du plus grand nombre de bras secondaires libres, des inévitables redistributions locales de chaleur et de soluté issues des rejets à la solidification et enfin de la possibilité pour l'écoulement de pénétrer la zone pâteuse en apportant chaleur et soluté. Dans tous les alliages, dans nos expériences, la fragmentation n'est observée que pour un gradient faible en décroissance qui a pour conséquence d'augmenter l'extension de la zone pâteuse et de diminuer l'extraction de chaleur dans la direction axiale.

En conclusion, il apparaît donc que la fragmentation est favorisée par une zone pâteuse étendue, une morphologie branchée des dendrites, une diminution du gradient thermique associée à une augmentation de la vitesse de croissance. Dans les expériences que nous avons

réalisées et pour lesquelles des mesures de vitesse des pointes avant détachement ont pu être mesurées, les fragments se détachent par refusion suivant le rejet de chaleur latente et de soluté (Figures 7 à 16) ou par dissolution (Figure 6) en présence de convection. Nous n'avons pas observé de fragmentations dans des phases de décélération comme Liu & Hellawell [7]. Cependant, que ce soit dans le cas de ces expériences ou dans nos expériences, la modification des conditions de croissance provoque un réarrangement de la taille de la microstructure brusque et/ou, un rejet de chaleur latente ou de soluté important. De plus, La fragilisation mécanique par fléchissement ou poussée d'Archimède semble également favoriser la fragmentation par refusion comme proposé par Ananiev *et al.* [56].

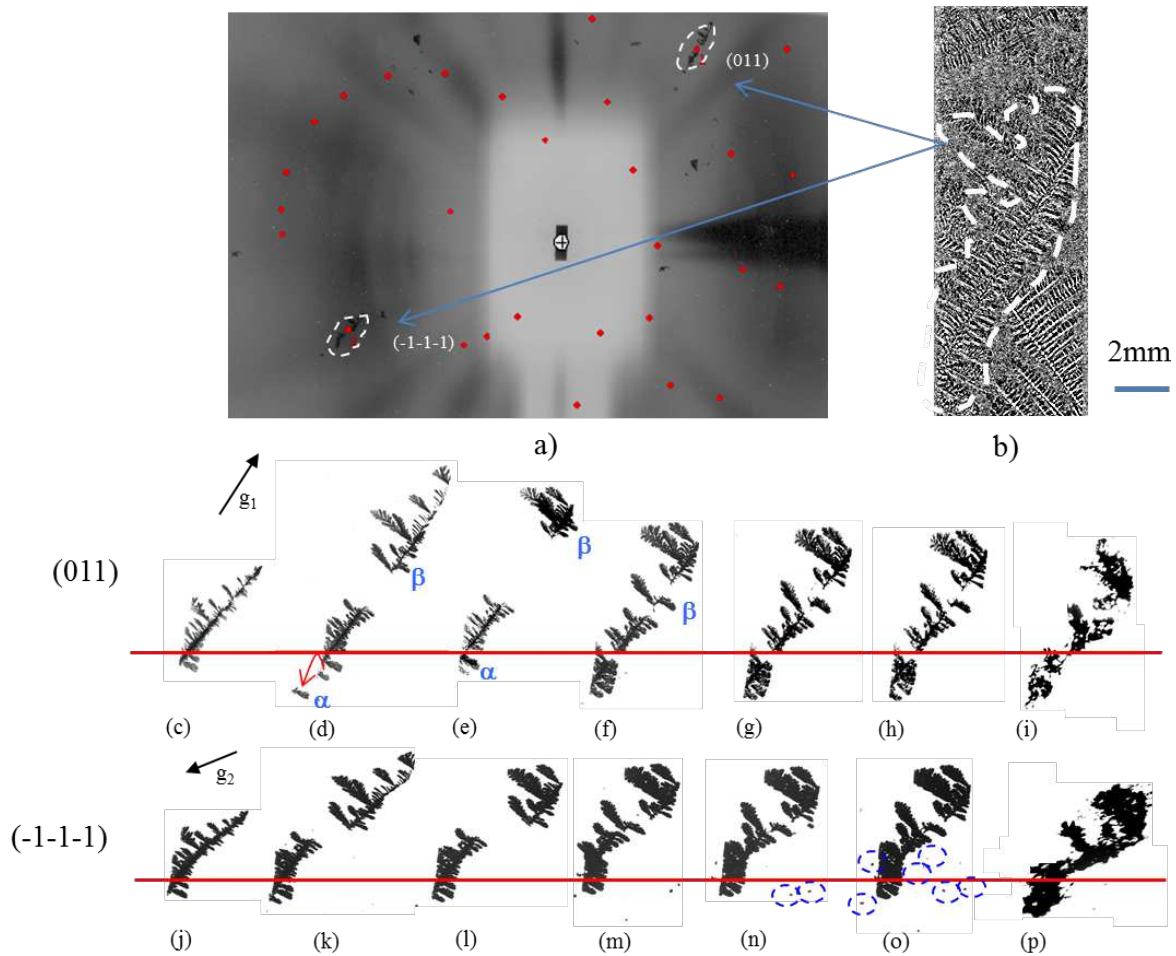
Enfin, comme nous l'avons vu, le paramètre essentiel du phénomène de fragmentation dans nos expériences est le gradient thermique et pas la vitesse qui peut même avoir un effet contreproductif sur la fragmentation (Figure 15) lorsque la microstructure dendritique colonnaire s'affine et remplit l'échantillon rapidement. Le mûrissement qui rend la microstructure plus pâteuse semble également diminuer la fréquence des fragmentations dans un premier temps (Figure 12). Ensuite, le mûrissement peut-être à l'origine de détachements subséquents dans la zone pâteuse avant le passage de l'eutectique. Ce phénomène n'a pas été étudié dans les expériences présentées ici.

Enfin, nous avons également montré dans nos expériences que la fragmentation peut créer une zone équiaxe comme celle que l'on observe dans les alliages de fonderie lorsque les fragments tombent (Figure 9) ou, provoquer une transition colonnaire-équiaxe lorsqu'ils sont transportés au-dessus du front colonnaire (Figure 14) dans des zones où ils peuvent croître puis finalement bloquer la croissance du front colonnaire.

La gravité (convection, sédimentation, flottaison) joue un rôle important dans le mécanisme de fragmentation et pour l'obtention d'une transition colonnaire équiaxe après des fragmentations.

1.4 PERSPECTIVES DU CHAPITRE 1

Afin de caractériser plus avant le phénomène de fragmentation, la topographie X [30, 32, 35, 38, 39] associée à la radiographie X permettrait de mettre en évidence les désorientations et déplacement de quelques dixièmes de degré avant la fragmentation. En effet, jusqu'à présent, nous n'avons pas pu réaliser des expériences présentant un grand nombre de fragmentations et associant radiographie et topographie X et donc, nous n'avons pas pu étudier le lien entre ces désorientations et la fragmentation. Ci-dessous, un exemple de suivi en radiographie et topographie X de la solidification d'une dendrite colonnaire d'Al-Si 7,0 %pds est donné et permet de mettre en évidence la flexibilité du tronc primaire des dendrites. De plus, des caractérisations complémentaires en post-mortem par EBSD permettraient de quantifier les désorientations des fragments par rapport au tronc primaire et pourraient permettre de faciliter par comparaison avec l'historique du suivi *in situ* l'analyse de lingots de plus grande taille qui ne peuvent être caractérisés que de façon post-mortem.



Chapitre 1 Fig. 16: Evolution temporelle de deux taches de topographie pour une dendrite de l'alliage Al - 7,0 %pds Si non affiné au cours de la solidification avec une vitesse de refroidissement de $K = 0,5 \text{ K/min}$ sur l'élément résistif supérieur, a) Film topographique 3min 18 s après l'application du refroidissement et indexation des deux taches de diffraction principales, b) Image radiographique de la dendrite correspondant aux taches de diffractions sur la topographie. Evolution des taches de diffraction pour les deux orientations indexées c & j) $t = t_0$, d & k) $t = t_0 + 3 \text{ min } 18 \text{ s}$, e & l) $t = t_0 + 5 \text{ min } 36 \text{ s}$, f & m) $t = t_0 + 11 \text{ min } 30 \text{ s}$, g & n) $t = t_0 + 17 \text{ min } 30 \text{ s}$, h & o) $t = t_0 + 23 \text{ min } 30 \text{ s}$ et i & p) $t = t_0 + 36 \text{ min } 36 \text{ s}$. g_1 et g_2 sont les vecteurs de diffraction correspondants aux deux taches de Laue (011) et (-1 -1 -1).

La figure 16.b présente une radiographie X à la fin de la solidification avec une vitesse de refroidissement de 0,5 K/min sur l'élément résistif du haut d'un échantillon d'Al-Si 7,0 %pds non affiné. La dendrite obtenue a subi une croissance colonnaire inclinée par rapport à la direction verticale du gradient thermique. En radiographie, aucune fragmentation n'a été mise en évidence dans cette expérience. Les taches de diffraction correspondant à cette dendrite colonnaire ont été repérées et indexées sur la topographie (Figure 16.a). Lorsqu'on suit l'évolution de ces taches sur les différents films de topographie enregistrés au cours de l'expérience, on peut remarquer que de nombreux morceaux de la dendrite se déplacent sur l'image topographique correspondant à un ensemble de plans. Par exemple pour l'orientation (011), entre les figures 16.d et e, le tronc primaire est coupé sur la topographie et entre les images figures 16.e et g les morceaux α et β changent de position. Pour l'orientation (-1 -1 -1) (Figure 16.a à g), le même type de comportement est observé avec une déformation plus importante. A partir des figures 16.g à i et figures 16.n à p, la dendrite qui a atteint les limites du champ de vue et du creuset dans deux de ses directions de croissance ne croît plus. Une déformation très importante de l'image topographique est observée sur les figures 16.i & p après le refroidissement complet de l'échantillon (passage de l'eutectique).

L'exemple donné figure 16 permet de révéler des désorientations du tronc primaire qui correspondent à des fléchissements répétés du tronc primaire. Cette fragilisation mécanique peut favoriser des fragmentations subséquentes et démontre clairement que les dendrites ne sont pas des objets rigides pendant la croissance. De plus, dans certains cas, cette déformation est élastique puisque les éléments de l'image topographique qui se déplacent sur l'image peuvent retrouver leur position initiale (voir β Figures 16. d à f). Le fléchissement des bras secondaires ont également été observés et mesurés en radiographie et en topographie X ainsi que des rotations et donc des désorientations du tronc primaire au cours de la croissance des dendrites [29] qui ne pouvaient être mises en évidence que sur les topographies.

Nous souhaitons donc poursuivre ce travail en réalisant des expériences caractérisées par radiographie et topographie X dans des conditions pour lesquelles des fragmentations se produisent.

Enfin, ces résultats montrent la nécessité de modéliser le phénomène de fragmentation et de le prendre en compte dans les modèles de simulation numérique des structures de grains. Il serait alors indispensable de modéliser des phénomènes complexes et notamment : la sédimentation ou la flottaison des fragments, leur interaction avec l'écoulement et leur interaction entre eux. En effet, au cours de son déplacement, une dendrite équiaxe va être soumise à un écoulement qui modifie sa croissance. Des modèles étudient ce phénomène qui a été également observé expérimentalement [59, 60]. Et comme on l'a vu, le réarrangement et le devenir des fragments peuvent provoquer une transition de structure de grains, induire des ségrégations mais aussi des désorientations qui sont par exemple totalement interdites dans la fabrication des aubes de turbines [20].

Chapitre 2 : Structure de grains dans les alliages métalliques affinés : Phénomène de germination des grains équiaxes

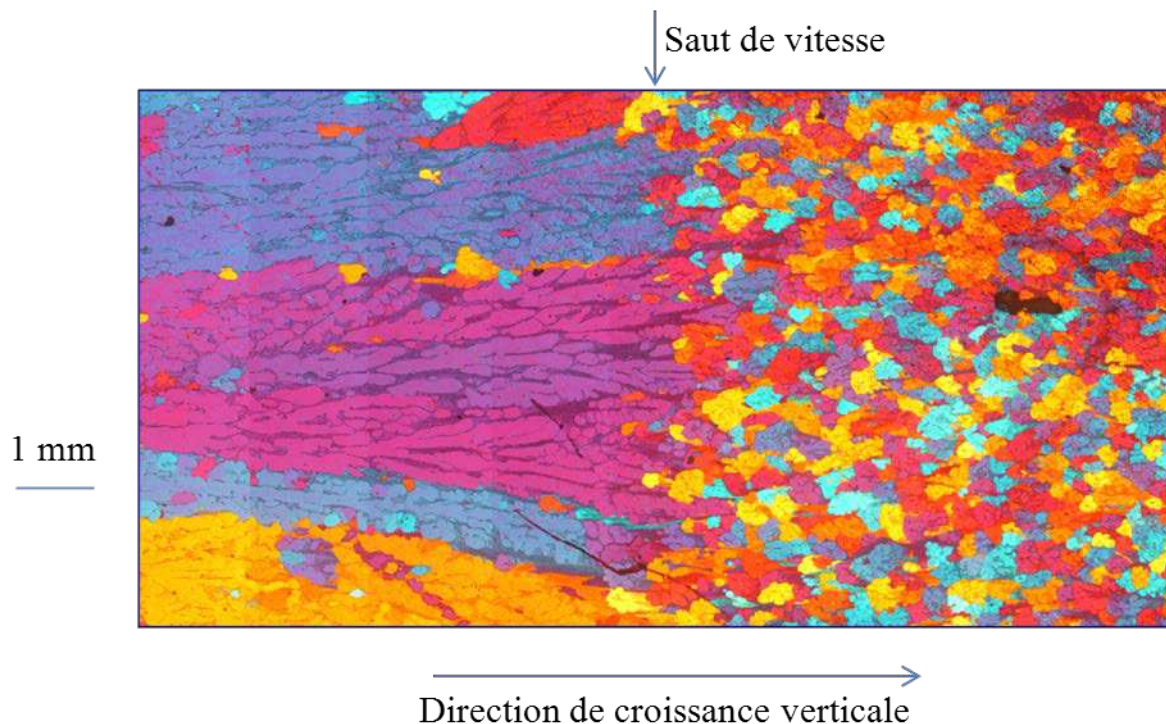
Dans certains matériaux, des particules sont introduites volontairement dans les alliages pour favoriser et contrôler la germination de grains équiaxes et le développement d'une structure de grains équiaxes possédant des propriétés mécaniques isotropes. C'est notamment le cas de l'industrie qui utilise les alliages à base aluminium. Les alliages Al-Ni 3,5 %pds et Al-Si 7,0 %pds avec affinant (affinant : Al – 5 %pds Ti– 1 %pds B, proportion : 0,5 %pds) ont été sélectionnés comme alliages modèles pour l'étude de la solidification des alliages affinés, de la formation des grains équiaxes et de la CET par germination sur des particules affinant.

Cette étude paramétrique de la CET dans les alliages à base aluminium affinés a été menée à bien dans le cadre des thèses de Guillaume Reinhart [61] et d'Hyejin Jung [23] et du post-doctorat de Kleber Sabat Da Cruz et de José Eduardo Spinelli. Ce travail fait également partie du projet CETSOL (Columnar to Equiaxed Transition in SOLidification processing) MAP (Microgravity Application Promotion) de l'ESA (Agence Spatiale Européenne) [62-66].

2.1 TRANSITION COLONNAIRE EQUIAXE DANS AL-NI 3,5 %PDS AFFINE

Dans toutes les expériences présentées dans le paragraphe 2.1, l'alliage Al-Ni 3,5 %pds est affiné avec un affinant commercial communément utilisé dans l'industrie de l'aluminium (Al-5 %pds Ti-1 %pds B) dans une proportion de 0,5 %pds. Cette série d'expériences a permis d'apporter des éléments nouveaux pour la compréhension de certains phénomènes observés lors de la CET et de la croissance équiaxe dans des alliages affinés.

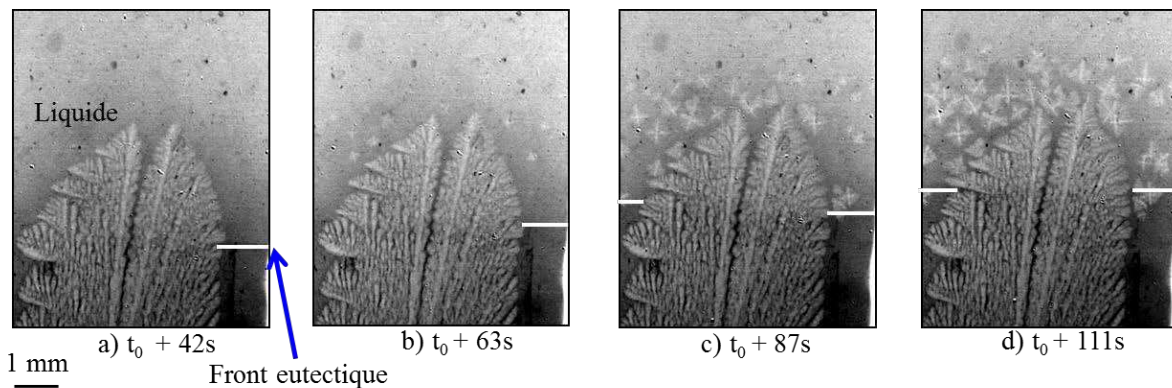
2.1.1 Analyse de la transition colonnaire équiaxe et propagation du front équiaxe



Chapitre 2 Fig. 1: Polissage électrolytique d'une coupe longitudinale d'un alliage d'Al-Ni 3,5 %pds affiné, $G = 20 \text{ K/cm}$, $V_t = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$ à $20 \text{ } \mu\text{m/s}$. La vitesse de tirage sera toujours notée V_t .

La figure 1 présente la structure de grains révélée par polissage électrolytique d'une coupe longitudinale d'un barreau d'Al-Ni 3,5 %pds affiné. Comme dans toutes ces expériences, les barreaux de 8 mm de diamètre et de 120 mm environ de long sont solidifiés dans un four de

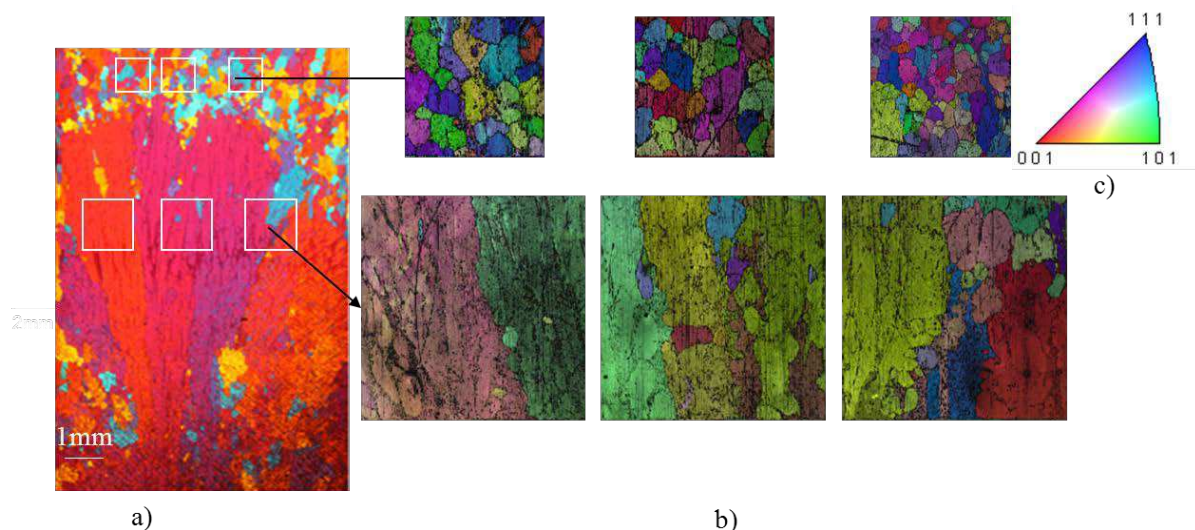
Bridgman par tirage de l'échantillon de la zone chaude vers la zone froide dans la direction verticale puis, coupés en leur centre. La coupe observée figure 1 montre la région au niveau de laquelle a été appliqué un saut de vitesse de $2 \mu\text{m/s}$ à $20 \mu\text{m/s}$ pour un gradient constant de 20 K/cm pendant l'expérience. Le polissage électrolytique révèle une transition colonnaire équiaxe très claire entre une structure colonnaire pour la faible vitesse de tirage et une structure équiaxe pour la vitesse de tirage de $20 \mu\text{m/s}$. Quelques grains équiaxes sont observés dans les sillons entre les grains colonnaires. La morphologie des grains équiaxes est isotrope et la différence de taille caractéristique entre les grains colonnaires et équiaxes est importante.



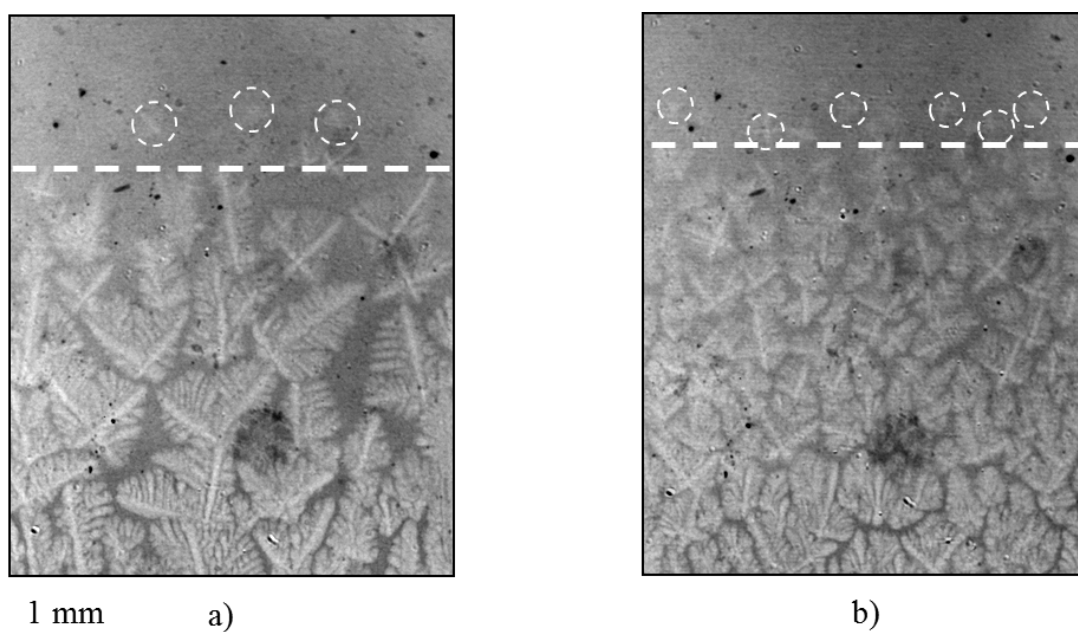
Chapitre 2 Fig. 2: Images de radiographie X synchrotron, Al-Ni 3,5 pds% affiné, $G = 20 \text{ K/cm}$, $V_g = 1,5 \mu\text{m/s}$ à $15 \mu\text{m/s}$. L'instant t_0 correspond à l'application du saut de vitesse. a) $t = t_0 + 42 \text{ s}$, b) $t = t_0 + 63 \text{ s}$, c) $t = t_0 + 87 \text{ s}$, d) $t = t_0 + 111 \text{ s}$. La vitesse de croissance mesurée sera toujours notée V_g .

La figure 2 présente des images obtenues par radiographie X de l'évolution de la microstructure et de la structure de grains d'un échantillon d'Al-Ni 3,5 %pds affiné. Les échantillons ont une largeur de 6 mm, une hauteur de 40 mm et une épaisseur de $150 \mu\text{m}$ environ et sont solidifiés dans un four à deux zones. La procédure utilisée est identique à celle de la figure 1. Pendant l'expérience, le gradient a été maintenu constant à 20 K/cm environ et un saut de vitesse de tirage de l'échantillon de la zone chaude (partie haute du four) vers la zone froide (partie basse du four) est appliqué à partir de l'instant t_0 et induit un saut de la vitesse de croissance de $1,5 \mu\text{m/s}$ à $15 \mu\text{m/s}$. Sur la figure 2.a, la vitesse de tirage imposée vient d'être augmentée et on se trouve donc dans le transitoire d'établissement de cette vitesse, la croissance est dendritique colonnaire. Un fort effet de localisation de la microstructure au centre est observé ainsi que la formation d'un liseré eutectique. En effet, le front eutectique peut être identifié sur ces images (Figure 2.a à d). Environ 1 min après l'instant du saut de vitesse, les premiers grains équiaxes sont observés (Figure 2.b). Le nombre de grains équiaxes augmente (Figure 2.c) jusqu'à bloquer la croissance colonnaire (Figure 2.d) et donc provoquer la CET. Après leur formation, certains grains équiaxes sédimentent et subissent des rotations pendant leur croissance.

La figure 3 présente le résultat de mesures EBSD sur un barreau d'Al-Ni 3,5 %pds affiné dans le même type d'expériences que pour la figure 1. Pendant cette expérience, le gradient a été maintenu constant à 20 K/cm environ et la vitesse de tirage de l'échantillon de la zone chaude (partie haute du four) vers la zone froide (partie basse du four) initialement de $2 \mu\text{m/s}$ a été augmentée à $20 \mu\text{m/s}$. Sur ces mesures, on remarque que l'orientation cristallographique des grains équiaxes est totalement aléatoire et n'est en rien liée à l'orientation des grains colonnaires. Quelques grains équiaxes isolés et d'orientation très différente de celle des grains colonnaires sont observés entre les grains colonnaires.



Chapitre 2 Fig. 3: Al-Ni 3,5 pds% affiné, $G = 20 \text{ K/cm}$, $V_t = 2 \mu\text{m/s}$ à $20 \mu\text{m/s}$, a) Polissage électrolytique d'une coupe longitudinale au niveau du saut de vitesse, b) EBSD dans les zones colonnaire et équiaxe, c) Code couleur des différentes orientations.



Chapitre 2 Fig. 4: Al-Ni 3,5 pds% affiné, $G = 20 \text{ K/cm}$, a) $V_t = 6 \mu\text{m/s}$, b) $V_t = 15 \mu\text{m/s}$. Le front effectif est matérialisé en pointillés blancs et les grains équiaxes qui germent au-dessus du front effectif sont mis en évidence par des cercles blancs.

La figure 4 présente des images obtenues par radiographie X de l'évolution de la structure de grains équiaxe d'un échantillon d'Al-Ni 3,5 %pds affiné dans le même type d'expériences que pour la figure 2. Pendant les expériences présentées figure 4, le gradient a été maintenu constant à 20 K/cm environ et la vitesse de tirage de l'échantillon de la zone chaude (partie haute du four) vers la zone froide (partie basse du four) est de 6 et de $15 \mu\text{m/s}$ respectivement pour la figure 4.a et la figure 4.b. Le même échantillon a été utilisé pour ces deux expériences. Pour les deux vitesses de tirage, la croissance est équiaxe. Il n'y a pas d'effet de localisation et pas de formation d'un liseré eutectique. Pour les deux vitesses, un front effectif peut être matérialisé. Au-dessus de ce front, de nouveaux grains équiaxes germent.

Discussion [29, 36-38, 46, 47, 67-72]:

Dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds affiné, la transition colonnaire équiaxe est contrôlée par la vitesse de tirage (Figures 1 & 2) et elle se produit même pour un gradient thermique relativement élevé. D'après les modèles de CET [5, 40], la CET en présence de particules est favorisée par les grandes vitesses de croissance et pour les faibles gradients. En réalité, bien qu'un faible gradient puisse permettre d'avoir une zone de surfusion étendue favorable à la germination, la vitesse est le paramètre déterminant qui permet d'atteindre la surfusion de constitution nécessaire à la germination des grains équiaxes sur les particules affinant en complet accord avec ce qui est observé expérimentalement. En effet, pour un gradient thermique constant, lorsque la vitesse de tirage est faible, la croissance est colonnaire (Figures 1 & 2). Lorsque la vitesse de tirage augmente et par conséquent la vitesse de croissance, la surfusion de constitution au-dessus du front colonnaire dendritique augmente. La valeur de la surfusion de constitution peut alors atteindre la surfusion de germination de certaines des particules affinant sur lesquelles des grains équiaxes germent [3, 4, 73].

La CET est un phénomène en essence dynamique et inclut en particulier : la sédimentation des particules et des grains équiaxes, l'effet de la densité de grains et de particules, la sélection de la taille et de la forme des grains équiaxes, l'interaction entre les grains équiaxes et colonnaires. En effet, quand les grains équiaxes ont été formés au-dessus du front colonnaire, leur nombre, leur taille et leur fréquence de germination sont des paramètres qui peuvent provoquer ou non la transition colonnaire-équiaxe.

Dans le cas des expériences (Figures 1&2), les conditions de croissance (saut de vitesse d'environ un ordre de grandeur) et l'efficacité des particules conduisent à une CET abrupte. Après la germination des grains équiaxes, leur interaction avec le front colonnaire entraîne une décroissance progressive de la vitesse de celui-ci jusqu'à la CET [31]. Le fait que le front colonnaire et les dendrites équiaxes proches des colonnes s'arrêtent de croître avant d'entrer en contact suggère que le mécanisme de blocage est principalement d'origine solutale (enrichissement en soluté de l'espace interdendritique qui empêche les dendrites de croître). Ce mécanisme a été proposé dans des modèles théoriques récents [40]. Nos travaux permettent d'en confirmer l'existence. Lorsque la vitesse de tirage augmente, le nombre de particules affinant concernées par la germination d'un grain augmente également. L'orientation aléatoire des grains équiaxes sans lien avec l'orientation du front colonnaire observée figure 3 confirme indirectement que les grains sont issus de germination indépendantes. La cause de la CET dans cet alliage est donc essentiellement la germination sur les particules affinant. Cette conclusion est également confortée par la comparaison avec les expériences dans les alliages non affinés. En effet, dans les alliages non affinés, la CET n'est jamais observée dans les conditions des expériences ci-dessus et pour les forts gradients thermiques même à très grande vitesse (Chapitre 1).

Le suivi de la dynamique de l'interface par radiographie X (Figure 2) permet de mettre en évidence la formation d'un liseré eutectique et la localisation de la microstructure dendritique aux faibles vitesses de tirage. Cette localisation est due à la présence de convection induite par le gradient thermique radial (appelée convection radiale par commodité) associée à la différence de conduction entre le solide et le liquide. La convection radiale a pour conséquence d'accumuler le soluté sur les bords et donc de former une zone eutectique. Le front eutectique entre alors en compétition avec le front dendritique colonnaire et également avec les grains équiaxes [74] (Figure 2). La localisation observée à faible vitesse disparaît dès l'application d'une vitesse de tirage de 6 $\mu\text{m/s}$ (Figure 4.a) ce qui suggère que la vitesse de croissance devient alors comparable à la vitesse de convection radiale si l'on se réfère aux

modèles développés par Camel *et al.* [74-76]. Il est à noter que des simulations récentes de l'écoulement convectif au-dessus de l'interface confirment cette hypothèse puisque pour les grandes vitesses de tirage, la vitesse de croissance mesurée est supérieure à la vitesse de l'écoulement simulé.

Le suivi en temps réel permet également d'expliquer la présence des grains équiaxes observés entre les dendrites colonnaires figure 1 et également figure 2.d. Ces grains sont issus de germinations sur les particules au dessus du front colonnaire mais sédimentent comme le montre la radiographie X et ne germent donc pas entre les grains colonnaires contrairement à ce qui a pu être suggéré comme explication [77]. On observe également la rotation de certains de ces grains. Ces rotations, dues à des disymétries ou à des déséquilibres de croissance d'un grain à cause de son environnement, modifient de façon non négligeable l'arrangement local des grains.

La propagation du front équiaxe une fois qu'il y a eu la CET n'est pas a priori une évidence puisqu'on peut se poser la question de la possibilité pour de nouveaux grains équiaxes de germer au-dessus de la première couche de grains équiaxes qui a germé au-dessus du front colonnaire. Le mécanisme de propagation du front équiaxe est illustré figure 4. Après germination des grains équiaxes, ceux-ci sédimentent et forment un front effectif (Pointillés figure 4). Ce front effectif a pour conséquence la formation d'une nouvelle couche de liquide en surfusion de constitution. Cette surfusion de constitution peut alors devenir suffisante pour induire la germination de nouveaux grains équiaxes au dessus de ce front (Cercles figure 4). Ce phénomène est répétitif et peut expliquer la propagation du front équiaxe après le blocage du front colonnaire.

Il est important de noter qu'à la fois, la sédimentation et la rotation des grains équiaxes jouent un rôle important dans ces phénomènes.

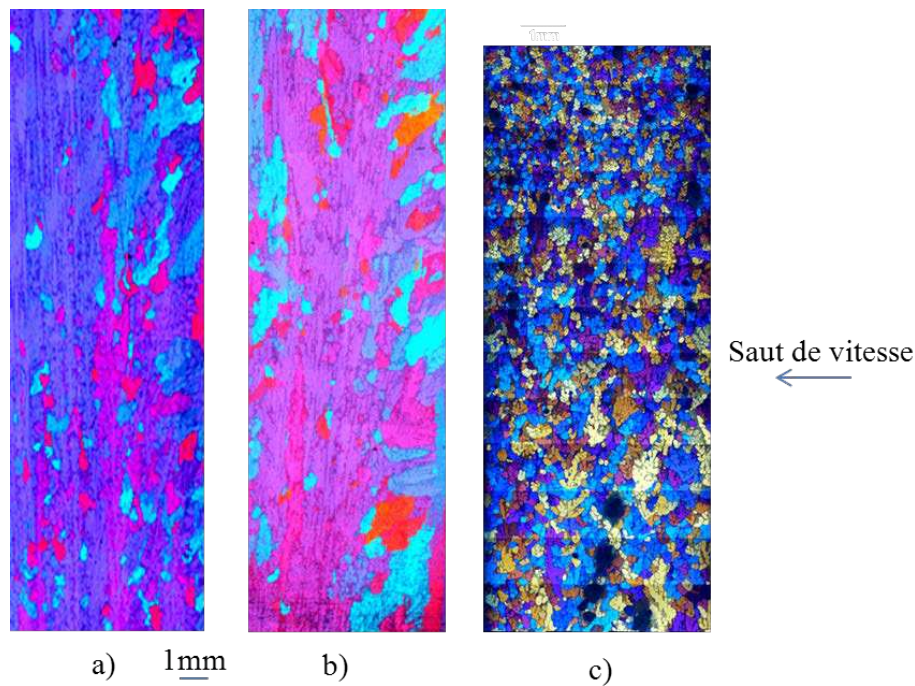
2.1.2 Croissance équiaxe et distribution des particules actives

Nous avons également étudié le régime équiaxe de façon approfondie et dérivé une méthode pour la détermination de la distribution de particules actives. Dans le cas de l'Al- Ni 3,5 %pds affiné, différents domaines de structures qui vont du régime colonnaire au régime équiaxe en passant par le régime mixte colonnaire et équiaxe sont mis en évidence. Notamment, le régime mixte peu étudié a pu être observé pour des vitesses intermédiaires de tirage pour un gradient constant.

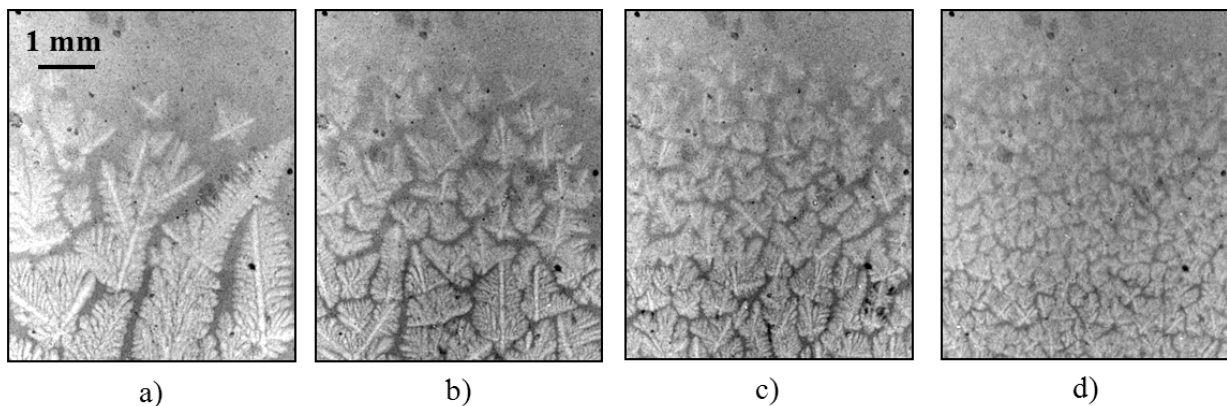
La figure 5 présente la structure de grains sur des coupes longitudinales de barreaux d'Al- Ni 3,5 %pds affinés révélée par polissage électrolytique. Les barreaux de 8 mm de diamètre et de 120 mm environ de long sont solidifiés dans un four de Bridgman par tirage vertical de l'échantillon de la zone chaude vers la zone froide puis, coupés en leur centre. Pour les barreaux figures 5.a et b solidifiés sous un gradient thermique de 35 K/cm et pour lesquelles la vitesse de tirage a été respectivement augmentée de 2 à 4 $\mu\text{m/s}$ et de 4 à 6 $\mu\text{m/s}$, on n'observe pas de transition colonnaire équiaxe. Cependant, de nombreux grains équiaxes dans les sillons intercolonnaires sont observés. De tels grains ne sont pas présents aux très faibles vitesses de tirage (Figure 1). Il n'y a donc pas de CET mais un régime mixte de croissance conjointe des grains colonnaires et des grains équiaxes que nous appellerons régime intermédiaire de type I (grains colonnaires continus + grains équiaxes).

Lorsqu'on continue à augmenter la vitesse de tirage (Zone à 7 $\mu\text{m/s}$, figure 5.c), le blocage de la croissance colonnaire est obtenu. Les grains qui ont germés sur des particules puis ont bloqués le front colonnaire à ces faibles vitesses de tirage sont très allongés et ne répondent

donc pas parfaitement à la définition de grains équiaxes. Nous appellerons le régime intermédiaire entre ce type de grains et les grains isotropes obtenus à grande vitesse: régime intermédiaire de type II (grains équiaxes allongés).



Chapitre 2 Fig. 5: Al-Ni 3,5 pds% affiné, Polissage électrolytique de coupes longitudinales solidifiées avec a) $G = 35 \text{ K/cm}$, V_t de 2 à 4 $\mu\text{m/s}$, b) $G = 35 \text{ K/cm}$, V_t de 4 à 6 $\mu\text{m/s}$ c) $G = 14 \text{ K/cm}$, V_t de 7 $\mu\text{m/s}$ à 100 $\mu\text{m/s}$.

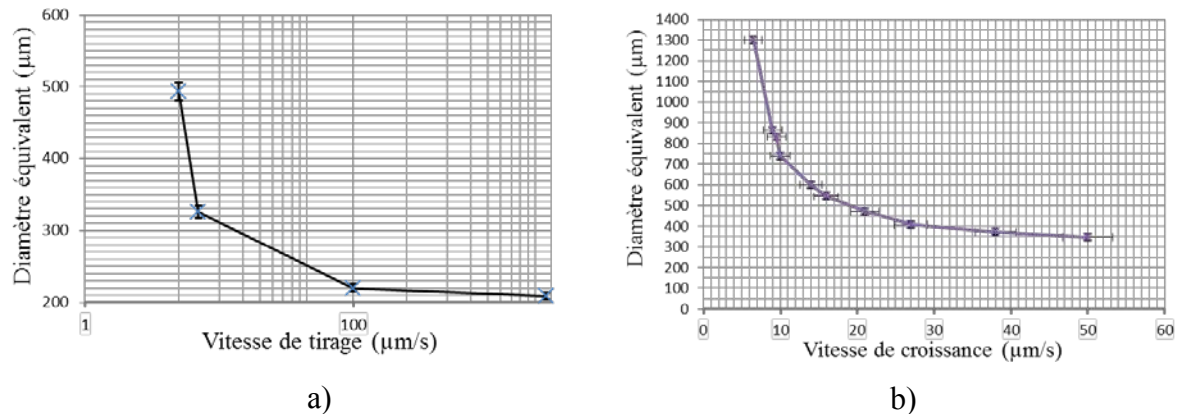


Chapitre 2 Fig. 6: Radiographie X de la solidification d'Al-Ni 3,5 pds% affiné, $G = 20 \text{ K/cm}$, a) $V_g = 6,5 \mu\text{m/s}$, b) $V_g = 10 \mu\text{m/s}$, c) $V_g = 16 \mu\text{m/s}$, d) $V_g = 38 \mu\text{m/s}$.

La figure 6 présente des images obtenues par radiographie X de l'évolution de la microstructure et de la structure de grains d'un échantillon d'Al-Ni 3,5 %pds affiné en fonction de la vitesse de croissance pour un gradient constant. Les échantillons ont une largeur de 6mm, une hauteur de 40 mm et une épaisseur de 150 μm environ et sont solidifiés dans un four à deux zones. Pendant les expériences, le gradient a été maintenu constant à 20K/cm environ et la vitesse de tirage de l'échantillon de la zone chaude (partie haute du four) vers la zone froide (partie basse du four) a été différente d'une expérience à l'autre.

Sur la figure 6.a, on peut voir la structure obtenue pour une vitesse de croissance de 6,5 $\mu\text{m/s}$. Les grains observés ne sont pas issus des premières germinations dans le fond du creuset mais

ont germés sur des particules. Ils sont très allongés dans le sens du gradient ou légèrement désorientés par rapport au gradient. Le régime est intermédiaire de type II tel que défini plus haut. Lorsque la vitesse est augmentée (Figures 6.b & c), les grains équiaxes sont de moins en moins allongés et de plus en plus nombreux jusqu'à atteindre le régime équiaxe figure 6.d où les grains sont isotropes et de petite taille.

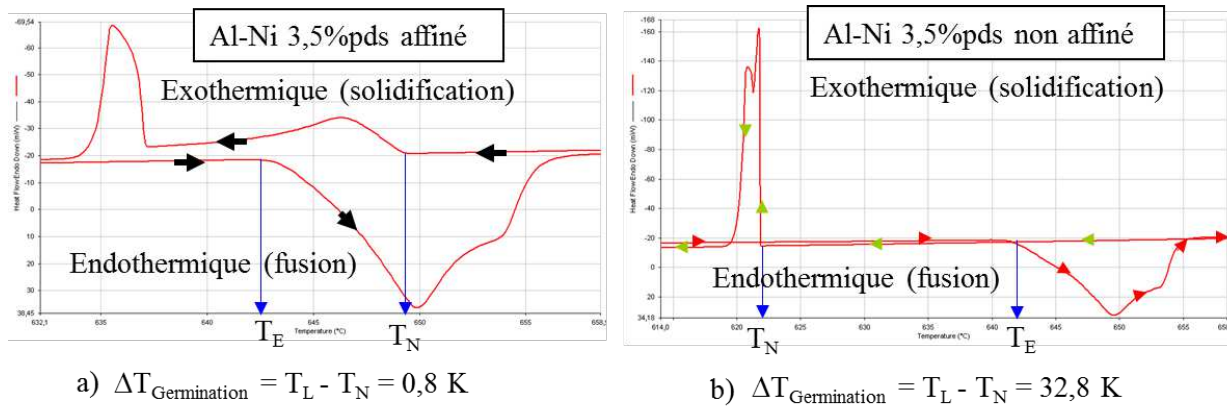


Chapitre 2 Fig. 7: Al-Ni 3,5 pds% affiné, a) Diamètre équivalent des grains en fonction de la vitesse de tirage pour les expériences dans les échantillons cylindriques du type de la figure 1, $G = 14 \text{ K/cm}$ b) Diamètre équivalent des grains en fonction de la vitesse de croissance mesurée pour les expériences d'imagerie X (Figures 2 & 6), $G = 28 \text{ K/cm}$.

Vitesse de tirage ($\mu\text{m/s}$)	Diamètre équivalent (μm)	Incertitude (μm)	Allongement	Globularité
5	493	24,65	1,69	0,54
7	326	16,3	1,57	0,55
100	220	11	1,48	0,81
2750	209	10,45	1,22	0,8

Chapitre 2 Tableau 1: Tableau du diamètre équivalent, de l'allongement et du branchement mesurés en fonction de la vitesse de tirage pour des expériences avec un gradient de 14 K/cm dans des échantillons cylindriques.

L'évolution du diamètre équivalent en fonction de la vitesse de tirage dans Al-Ni 3,5 %pds affiné est présentée figure 7.a pour les expériences de laboratoire dans des creusets cylindriques à $G = 14 \text{ K/cm}$. De plus, sur la figure 7.b, on a représenté l'évolution du diamètre équivalent en fonction de la vitesse de croissance dans les expériences par imagerie X. En effet, dans ces expériences, la vitesse de croissance du front peut-être directement mesurée. Pour les deux types d'expériences, on observe une diminution du diamètre équivalent lorsque la vitesse de tirage et donc la vitesse de croissance augmentent à gradient constant. Pour les vitesses élevées, les courbes atteignent une limite asymptotique (Figures 7.a & b) autour d'une valeur de diamètre équivalent de $200 \mu\text{m}$ pour les deux types d'expériences et également pour d'autres gradients thermiques dont les résultats ne sont pas représentés ici. Ces mesures quantitatives confirment les observations qualitatives obtenues à partir des figures 1, 2 & 6. De plus, le tableau 1 donne une mesure de l'allongement et du facteur de branchement [23] des grains pour les expériences à $G = 14 \text{ K/cm}$ dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds affiné pour différentes vitesses. Le facteur d'allongement se rapproche de 1 quand on augmente la vitesse ce qui signifie que les grains se rapprochent du cas isotrope idéal. De plus, le facteur de branchement montre que les grains sont de plus en plus globulaires lorsqu'on augmente la vitesse. De nouveau, ces analyses quantitatives corroborent les observations qualitatives.



Chapitre 2 Fig. 8: Mesures par DSC pour l'alliage Al-Ni 3,5 %pds. Protocole: Chauffé à 10 K/min jusqu'à 700°C, Maintien à 700°C pendant 1h, Refroidissement à 5 K/min. a) Affiné, b) Non affiné. T_L est la température liquidus, T_N est la température de germination de la phase primaire.

	Al-Ni 3,5%pds
Affiné	$\Delta T_N = 0,9 \text{ K}$ $\sigma_m = 0,2 \text{ K}$ (sur les mesures)
Non affiné	$\Delta T_N = 33 \text{ K}$ $\sigma_m = 0,5 \text{ K}$ (sur les mesures)

Chapitre 2 Tableau 2: Tableau récapitulatif de l'ensemble des mesures de surfusion de germination par DSC pour Al-Ni 3,5 %pds. ΔT_N est la moyenne de la surfusion de germination. σ_m est l'écart type sur les mesures.

Des mesures par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) ont été effectuées sur l'alliage Al-Ni 3,5%pds dans le cas affiné et non affiné. La forme générale des courbes donnant le flux thermique en fonction de la température est caractéristique d'une fusion endothermique et d'une solidification exothermique [78] (Figures 8.a & b). Par contre, on observe une différence importante au moment de la solidification entre l'alliage affiné et non affiné. Le pic qui correspond à la formation de la phase primaire est observé pour des températures beaucoup plus élevées dans le cas de l'alliage affiné (Figures 8.a & b). On mesure une surfusion de nucléation de 0,8 K pour l'alliage affiné (Figure 8.a) à comparer à une surfusion de 32,8 K pour l'alliage non affiné (Figure 8.b). Ces mesures ont été reproduites pour les deux alliages à plusieurs reprises afin d'obtenir une erreur statistique. Les résultats moyens et les écarts types sont reportés dans le tableau 2. Les moyennes obtenues montrent à nouveau que la surfusion de nucléation est sensiblement diminuée par la présence d'affinants (0,9 K pour un écart type de 0,2 K) par rapport au cas non affiné (33 K pour un écart type de 0,5 K).

Discussion [29, 31, 38, 46, 47, 57, 58, 67, 69-72, 78-80]:

Comme nous l'avons vu plus haut, lorsque la vitesse de tirage augmente, la structure de grains est issue de la germination de grains équiaxes sur les particules puis, le front colonnaire est bloqué par ces grains. Cependant, la définition de la transition colonnaire équiaxe ou du

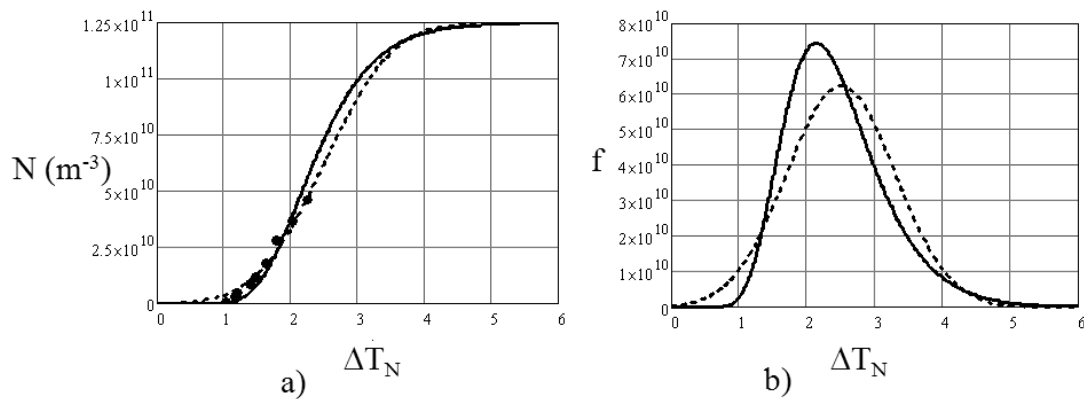
régime équiaxe n'est pas toujours aussi claire que dans la figure 1. Sur la figure 6, on peut voir la structure de grains obtenue après blocage du front colonnaire pour différentes vitesses supérieures à $6 \mu\text{m/s}$ pour un gradient thermique de 20 K/cm . Pour une vitesse de tirage de $6,5 \mu\text{m/s}$ (Figure 6.a), les grains sont très allongés et de taille millimétrique. Les grains sont allongés car la vitesse n'est pas suffisante pour induire assez rapidement une surfusion de constitution qui aurait pour conséquence la germination sur les particules d'une nouvelle couche de grains pour bloquer ceux qui ont germés précédemment. Par conséquent, les grains s'allongent dans la direction du gradient thermique. Ils ne sont pas parfaitement alignés suivant la direction du gradient thermique à cause de leur orientation aléatoire, de rotations et de réarrangements mécaniques avec leurs voisins. Il en est de même pour leur croissance qui est plus ou moins gênée par les voisins. Il est difficile de les qualifier de grains équiaxes car du point de vue des propriétés mécaniques, ils s'apparenteraient plus à des grains colonnaires puisqu'ils possèdent une orientation suivant laquelle ils sont allongés. Ce régime de grains qui ont germés sur des particules mais qui sont très allongés pourrait être qualifié de régime intermédiaire de type II [5] par opposition au régime intermédiaire de type I (Figure 5) où les grains colonnaires initiaux persistent jusqu'à la fin de la croissance même si cette croissance se fait conjointement avec celle de quelques grains équiaxes intégrés dans le front colonnaire par sédimentation comme le montrent les images de radiographie X.

Quand la vitesse augmente, la taille des grains diminue et les grains deviennent plus isotropes (Figure 6). Des mesures quantitatives (Figure 7 et Tableau 1) confirment les observations qualitatives (Figure 6). En effet, ces mesures confirment que la taille des grains diminue lorsque la vitesse augmente pour un gradient constant dans cet alliage affiné que ce soit dans les expériences de laboratoires ou dans les expériences de radiographie X dans des plus petits échantillons (Figure 7.a & b). De plus, en comparant les tailles de grains pour un gradient de 14 K/cm et pour un gradient de 20 K/cm , il apparaît que la taille de grains est plus faible pour le gradient le plus faible (Figure 7.a). Un gradient plus faible augmente l'extension de la zone surfondue au-dessus de l'interface ce qui favorise la germination et la croissance des grains équiaxes. Pour les deux types d'expériences, on observe que la taille des grains atteint une valeur asymptotique au-dessus d'une valeur limite de la vitesse appliquée. Le fait que la taille de grains atteigne une valeur asymptotique (Figure 7) permet de conclure qu'un effet de saturation se produit quand toutes les particules actives sont consommées. Le tableau 1 apporte l'information complémentaire des facteurs d'allongement et de branchement mesurés pour certaines des expériences de laboratoire à $G = 14 \text{ K/cm}$. Le facteur d'allongement diminue quand la vitesse augmente sans toutefois atteindre la valeur 1 qui correspond à des grains parfaitement isotropes même pour une vitesse de tirage de $2750 \mu\text{m/s}$. Inversement, le facteur de branchement augmente avec la vitesse pour approcher la valeur 1 qui correspond à des grains globulaires peu branchés. Cette évolution est attendue à grande vitesse. En effet, à grande vitesse, le nombre de grains équiaxes qui germent sur les particules augmente. Par conséquent, les grains n'ont pas l'espace géométrique pour se développer suivant la direction du gradient thermique avant que d'autres grains ne germent d'où une forme isotrope et moins branchée. Les résultats concernant les différents régimes intermédiaires (Figures 5 & 6) et la propagation du front équiaxe mettent en évidence le fait que pour que la CET se produise, le blocage du front colonnaire n'est pas suffisant mais qu'il faut également que le front se propage et que le facteur de forme des grains équiaxes se rapproche d'une forme isotrope (élongation ≈ 1) [5]. Cette discussion sera également poursuivie dans le chapitre 3 dans le paragraphe qui concerne les expériences en microgravité.

Les mesures de calorimétrie différentielle à balayage (Figure 8) effectuées sur l'alliage Al-Ni 3,5 %pds montrent une nette différence de la valeur de surfusion de germination pour les

deux alliages : $0,9 \pm 0,2$ K pour Al-Ni 3,5 %pds affiné et $33 \pm 0,5$ K pour Al-Ni 3,5 %pds non affiné. Les particules sont donc particulièrement opérantes dans cet alliage et leur rôle prédominant dans l'établissement de la structure de grains est donc confirmé. Notons qu'une valeur inférieure à 1 K, donc du même ordre de grandeur que celle que nous avons mesurée, est classiquement utilisée pour ajuster les modèles aux résultats expérimentaux dans cet alliage [81, 82].

A partir des résultats des expériences de radiographie X pour lesquelles on a accès à la vitesse de croissance des dendrites (Figure 7.b), nous avons pu déterminer la distribution de particules actives (Figure 9) dans Al-Ni 3,5 %pds affiné. Une particule active est définie comme une particule qui permet la germination d'un grain équiaxe. La méthode décrite en détails dans [80] consiste à reconstruire la fonction cumulative de la distribution des particules. Pour cela, nous déterminons la densité des particules à partir de la taille des grains mesurée pour chaque vitesse de croissance (Figure 7). Pour chacune des vitesses de croissance, seules les particules qui ont une surfusion de germination inférieure à la surfusion de constitution au-dessus de l'interface peuvent donner naissance à un grain par germination. La surfusion de germination des particules actives pour une vitesse est donc comprise entre 0 K et la surfusion de constitution correspondant à la vitesse de croissance. On peut donc tracer la courbe de la densité de particules en fonction de la surfusion de germination (Points expérimentaux en noir figure 9.a). Nous devons ensuite faire une hypothèse sur la distribution de la surfusion de germination des particules. Les courbes correspondant à une gaussienne (pointillés) et à une loi de distribution log-normale (trait plein) sont tracées figures 9.a & b.



Chapitre 2 Fig. 9: Al-Ni 3,5 pds% affiné, a) Distribution cumulative des surfusions de germination des particules affinantantes pour une loi gaussienne (courbe en pointillés) et pour une loi log-normale (courbe en trait plein). Les points noirs correspondent aux points expérimentaux, b) Distribution des surfusions de germination des particules affinantantes pour la loi gaussienne avec $\mu = 2,5$ K et $\sigma = 0,8$ K et, pour la loi log-normale (courbe en traits pleins) avec $\mu = 2,45$ K et $\sigma = 0.75$ K. $N_0 = 1,3 \cdot 10^{11} \text{ m}^{-3}$.

Pour la distribution gaussienne et la distribution log-normale, les valeurs caractéristiques moyenne et écart type sont respectivement $\mu = 2,5$ K et $\sigma = 0,8$ K et, $\mu = 2,45$ K et $\sigma = 0,75$ K. Il n'est pas aisé de faire un choix de la meilleure loi pour représenter la distribution de particules actives. En effet, les points expérimentaux ne permettent pas d'atteindre le point d'inflexion de la courbe de densité de particules. La méthode peut donc être appliquée pour déterminer la distribution des particules actives mais des mesures à plus grandes vitesses de croissance seraient nécessaires pour pouvoir conclure sur la loi de croissance la plus représentative de la distribution de particules actives pour cet alliage et cet affinant. Un argument en faveur de la loi log-normale est que les courbes de taille de particules mesurées dans les alliages à base aluminium avec les mêmes affinantants par Greer *et al.* [4] sont des

courbes log-normales. Ces auteurs ont en effet démontré que la taille des particules est équivalente à leur surfusion de germination. Cependant, il est important de noter que dans le travail de ces auteurs, la distribution inclut toutes les particules et pas uniquement les particules actives comme dans notre cas.

En conclusion, nous avons donc pu déterminer les paramètres de surfusion de germination moyenne, d'écart type et de densité de particules actives indispensables à la modélisation de la CET dans cet alliage. La valeur mesurée par DSC (0,9 K) se situe au début de la distribution tant gaussienne que log-normale et correspond bien à la surfusion de germination des premiers grains de phase primaire que l'on mesure par DSC.

2.2 TRANSITION COLONNAIRE EQUIAXE DANS AL-SI 7,0 %PDS AFFINE

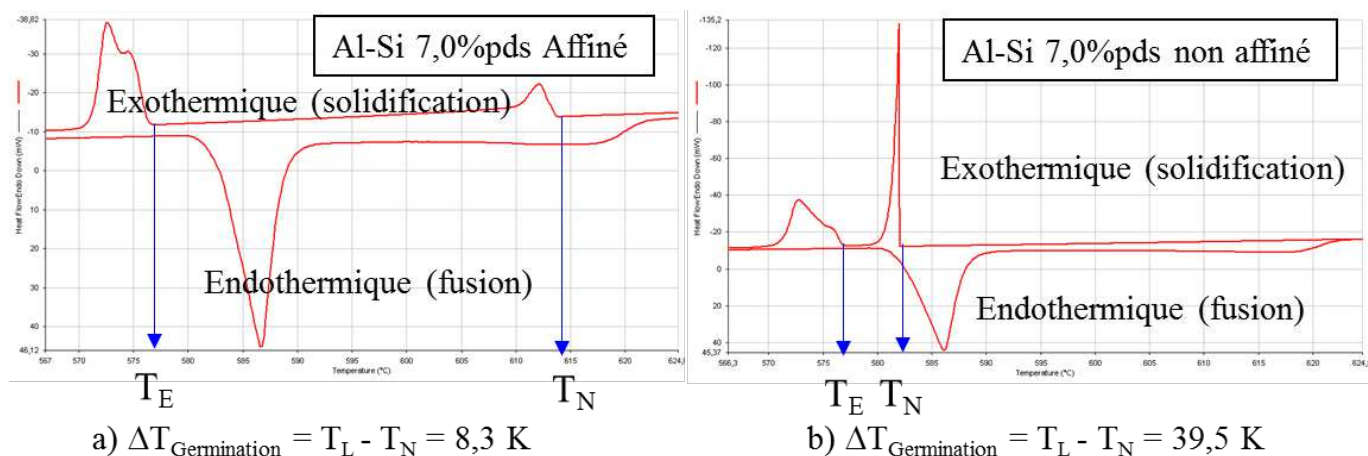
Dans les expériences présentées dans la suite, l'alliage Al-Si 7,0 %pds affiné avec le même affinant que l'alliage Al-Ni 3,5 %pds : Al- 5 %pds Ti- 1 %pds B dans une proportion de 0,5 %pds.

2.2.1 Analyse de la transition colonnaire équiaxe



Chapitre 2 Fig. 10: Polissage électrolytique d'une coupe longitudinale d'Al-Si 7,0 pds% affiné, V_t de 25 à 300 $\mu\text{m/s}$, $G= 17 \text{ K/cm}$.

La figure 10 présente la structure de grains d'une coupe longitudinale d'un barreau d'Al-Si 7,0 %pds affiné révélée par polissage électrolytique. Les barreaux de 8 mm de diamètre et de 120 mm environ de long sont solidifiés dans un four de Bridgman par tirage vertical de l'échantillon de la zone chaude vers la zone froide puis, coupés en leur centre. La coupe observée figure 10 montre la région au niveau de laquelle a été appliqué un saut de vitesse de 25 $\mu\text{m/s}$ à 300 $\mu\text{m/s}$ pour un gradient constant de 17 K/cm pendant l'expérience. Le polissage électrolytique révèle une transition colonnaire équiaxe entre une structure colonnaire pour la faible vitesse de tirage et une structure équiaxe pour la vitesse de tirage de 300 $\mu\text{m/s}$. La morphologie des grains équiaxes est allongée notamment par comparaison à la morphologie des grains équiaxes dans l'Al-Ni 3,5 %pds pour des vitesses de tirage moins élevées (Figure 1 par exemple) mais la différence de taille caractéristique entre les grains colonnaires et équiaxes reste importante.

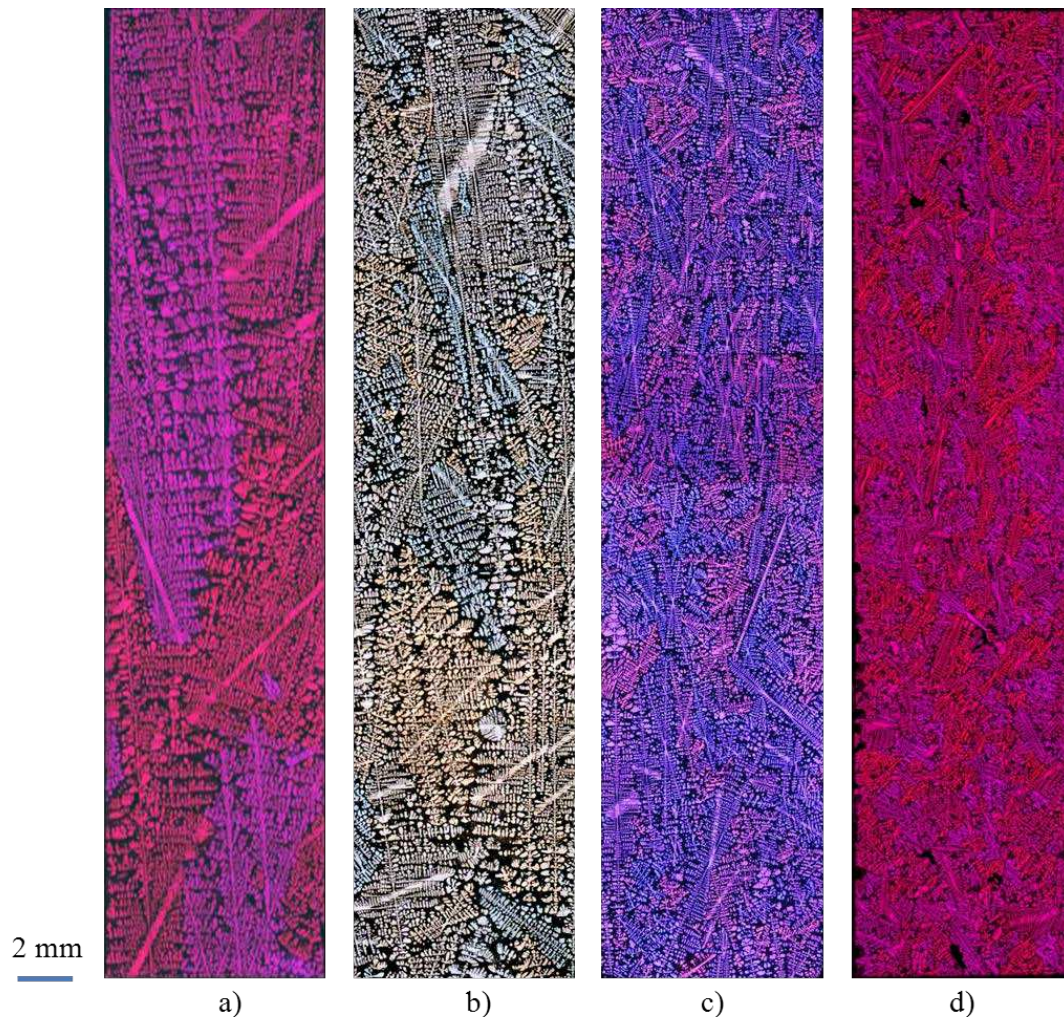


Chapitre 2 Fig. 11: Mesures par DSC pour l'alliage Al-Si 7,0 %pds. Protocole : Chauffage à 10 K/min jusqu'à 700 °C, Maintien à 700 °C pendant 1 h, Refroidissement à 5 K/min. a) Affiné, b) Non affiné. T_L est la température liquidus, T_N est la température de germination de la phase primaire.

	Al-Si 7,0 %pds
Affiné	$\Delta T_N = 8,5 \text{ K}$ $\sigma_m = 0,4 \text{ K}$ (sur les mesures)
Non affiné	$\Delta T_N = 39,2 \text{ K}$ $\sigma_m = 0,5 \text{ K}$ (sur les mesures)

Chapitre 2 Tableau 3: Tableau récapitulatif de l'ensemble des mesures de surfusion de germination par DSC pour Al-Si 7,0 %pds. ΔT_N est la moyenne de la surfusion de germination. σ_m est l'écart type sur les mesures.

Des mesures par DSC ont été effectuées sur l'alliage Al-Si 7,0 %pds dans le cas affiné et non affiné. Les courbes donnant le flux thermique en fonction de la température ont la même forme générale avec une fusion endothermique et une solidification exothermique (Figures 11.a & b) que dans le cas de l'Al-Ni 3,5 %pds. On observe de nouveau une différence importante au moment de la solidification entre l'alliage affiné et non affiné. Le pic qui correspond à la formation de la phase primaire est observé pour des températures beaucoup plus élevées dans le cas de l'alliage affiné (Figures 11.a & b). On mesure une surfusion de nucléation de 8,3 K pour l'alliage affiné (Figure 11.a) à comparer à la surfusion de 39,5 K pour l'alliage non affiné (Figure 11.b). Ces mesures ont été reproduites pour les deux alliages à plusieurs reprises afin d'obtenir une erreur statistique. Les résultats moyens et les écarts types sont reportés dans le tableau 3. Les moyennes obtenues montrent à nouveau que la surfusion de nucléation est sensiblement diminuée par la présence d'affinants (8,5 K pour un écart type de 0,4 K) par rapport au cas non affiné (39,2 K pour un écart type de 0,5 K). Cependant, la valeur de la surfusion de germination dans Al-Ni 3,5 %pds affiné (0,9 K, Tableau 2) diffère de près d'un ordre de grandeur de celle mesurée dans Al-Si 7,0 %pds (8,5 K, Tableau 3).

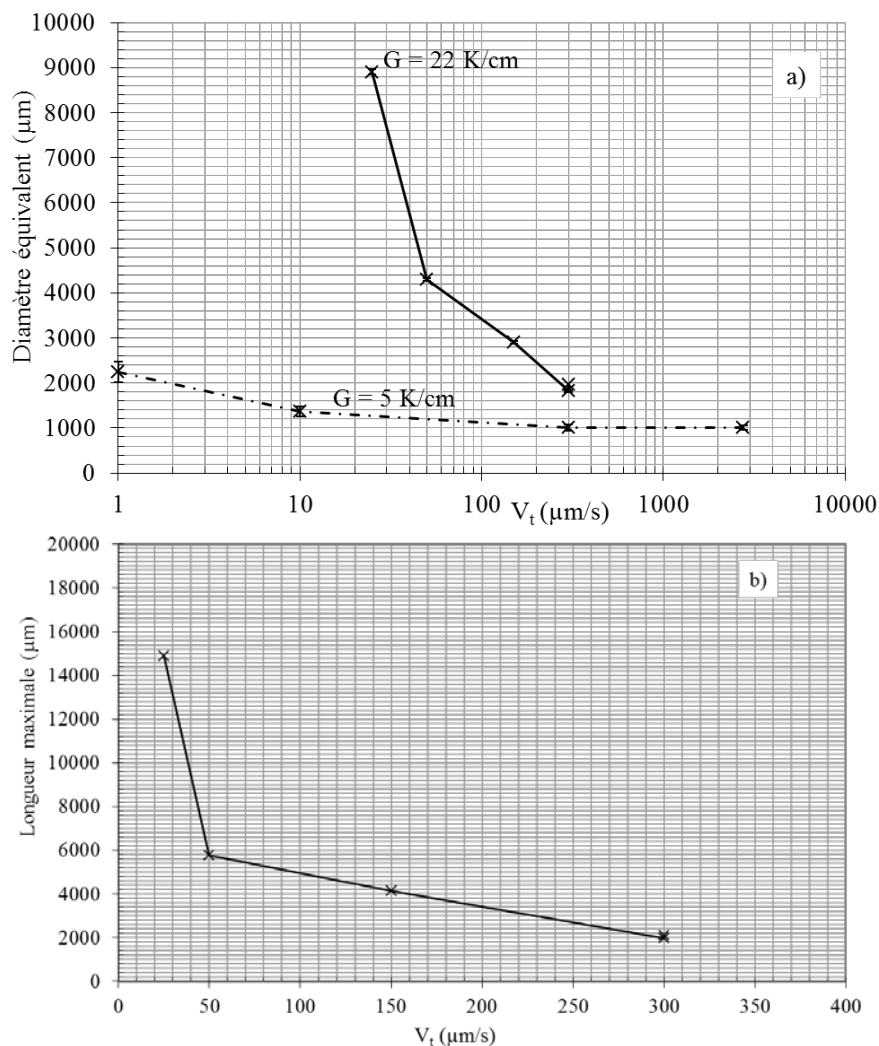


Chapitre 2 Fig. 12: Al-Si 7,0 %pds affiné, $G = 17 \text{ K/cm}$, a) $V_t = 25 \text{ } \mu\text{m/s}$, b) $V_t = 50 \text{ } \mu\text{m/s}$, c) $V_t = 150 \text{ } \mu\text{m/s}$, d) $V_t = 300 \text{ } \mu\text{m/s}$.

La figure 12 présente la structure de grains d'une coupe longitudinale de barreaux d'Al-Si 7,0 %pds affinés révélée par polissage électrolytique. Les barreaux de 8 mm de diamètre et de 120 mm environ de long sont solidifiés dans un four de Bridgman par tirage de l'échantillon du haut (zone chaude) vers le bas (zone froide) puis, coupés en leur centre. Les coupes observées figure 12 montrent la région centrale du barreau pour quatre expériences avec des vitesses de tirage différentes et avec un gradient constant de 17 K/cm . Le polissage électrolytique révèle une transition progressive d'une structure de grains colonnaires (Figure 12.a) à une structure de grains équiaxes allongés (Figure 12.d) lorsque la vitesse de tirage est augmentée. Cette tendance est la même que celle observée dans le cas de l'alliage Al-Ni 3,5 %pds mais elle ne se produit pas aux mêmes vitesses à gradient thermiques comparables.

Le diamètre équivalent mesuré dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds diminue en fonction de la vitesse de tirage pour deux gradients thermiques de 5 et 22 K/cm comme observé dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds (Figure 13.a). Le diamètre équivalent atteint une valeur asymptotique pour les grandes vitesses de tirage pour le gradient thermique $G=5 \text{ K/cm}$. Les expériences réalisées ne permettent pas de conclure pour le gradient thermique de 22 K/cm .

La longueur maximale des grains a été mesurée pour l'expérience réalisée avec un gradient de 22 K/cm. De la même manière que la taille, la longueur maximale qui est une mesure de l'allongement des grains diminue en fonction de la vitesse de tirage (Figure 13.b).



Chapitre 2 Fig. 13: a) Diamètre équivalent en fonction de la vitesse pour l'alliage Al-Si 7,0 pds% affiné solidifié avec un gradient thermique $G = 5 \text{ K/cm}$ et $G = 22 \text{ K/cm}$. b) Courbe de la longueur maximale des grains en fonction de la vitesse pour l'alliage Al-Si 7,0 pds% affiné solidifié avec un gradient thermique $G = 22 \text{ K/cm}$.

Discussion [46, 67, 78, 83]:

Dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds affiné avec les même particules que l'alliage Al-Ni 3,5 %pds affiné, la CET est provoquée par saut de vitesse (Figure 10). Cependant, il faut d'ores et déjà noter que pour une vitesse de $25 \mu\text{m/s}$ la croissance est équiaxe dans Al-Ni 3,5 %pds affiné alors qu'elle est colonnaire dans Al-Si 7,0 %pds affiné pour un gradient plus faible et donc plus favorable à la CET. Par conséquent, les particules sont moins efficaces dans Al-Si 7,0 %pds affiné. Cette perte d'efficacité est due à l'empoisonnement partiel de certaines des particules par formation d'une couche de siliciure qui empêche la germination de la phase primaire comme cela a été démontré par Schumacher *et al.* [84, 85]. L'empoisonnement partiel des particules est confirmé par les mesures DSC de surfusion de germination moyenne pour Al-Si 7,0 %pds affiné et non affiné. En effet, la surfusion de germination est de l'ordre

de 8 K dans Al-Si 7,0 %pds affiné ce qui est un ordre de grandeur plus élevé que dans l'Al-Ni 3,5 %pds affiné (Figure 8) avec les mêmes particules. Cependant, l'empoisonnement n'est pas total puisque la valeur de la surfusion de germination mesurée pour l'alliage Al-Si 7,0 %pds affiné ($8,5 \pm 0,4$ K) reste significativement moins élevée que celle mesurée dans l'alliage non affiné ($39,2 \pm 0,5$ K). Malgré l'empoisonnement d'une partie des particules, la vitesse reste le paramètre clef pour l'établissement d'un régime équiaxe dans Al-Si 7,0 %pds comme dans Al-Ni 3,5 %pds comme on peut le voir sur la figure 12. On observe la même tendance de diminution de la taille des grains et de transition progressive vers un régime équiaxe en augmentant la vitesse de tirage. A cause de l'empoisonnement d'une partie des particules, les grains restent allongés même à une vitesse de 300 $\mu\text{m/s}$ et la taille de grains pour des vitesses et gradients comparables est plus élevée dans Al-Si 7,0 %pds que dans Al-Ni 3,5 %pds. De plus, la morphologie dendritique est très branchée dans cet alliage (Figure 12). Les courbes de mesures quantitatives de taille de grain (Figure 12.a) et de l'allongement (Figure 12.b) confirment ces observations qualitatives. Enfin, on observe une diminution importante de la taille de grains lorsque le gradient thermique axial est très faible (5 K/cm) aux faibles vitesses de tirage alors qu'aux vitesses de tirage élevées les valeurs sont comparables. Aux vitesses élevées de tirage, l'origine principale des grains équiaxes est la germination sur les particules affinantes tandis qu'à faible vitesse avec un faible gradient thermique, la fragmentation peut créer des grains supplémentaires comme nous l'avons montré dans le chapitre 1.

2.3 PERSPECTIVES DU CHAPITRE 2

L'étape suivante pour l'analyse des expériences réalisées dans ces alliages affinés a été la simulation en utilisant un modèle d'éléments finis et d'automate cellulaire (XR2Sol+CAFE) [86] en collaboration avec le CEMEF. Ce modèle est l'un des rares à permettre la prédiction de la structure de grains, des ségrégations et des fractions de phases à l'échelle d'un lingot ce qui est particulièrement important puisque la ségrégation intergranulaire peut être à l'origine de défauts majeurs dans les lingots.

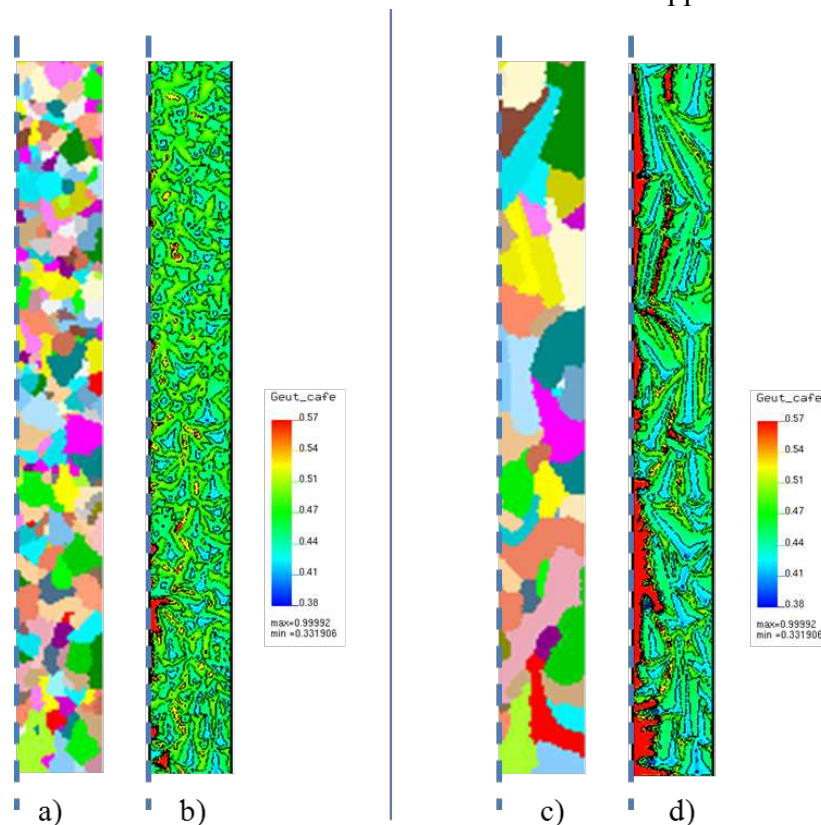
Des simulations préliminaires ont été effectuées sur les expériences présentées figure 12 [83]. Les simulations ont été réalisées en utilisant la liste de paramètres que l'on peut trouver dans la référence [6]. La géométrie cylindrique de l'échantillon et du creuset a été modélisée en 2D axisymétrique. L'axe de symétrie correspond à l'axe longitudinal central des deux domaines. Les conditions thermiques ont été modélisées en imposant l'évolution de température enregistrée par quatre thermocouples répartis dans la partie centrale sur la face externe du creuset (Condition de Dirichlet). Les températures ont également été imposées en fonction du temps à deux autres positions extrêmes sur le creuset afin d'assurer la conservation sur tout le domaine correspondant à l'alliage de l'évolution temporelle du gradient thermique mesuré entre les quatre thermocouples centraux. De cette façon, l'histoire thermique du four Bridgman est bien reproduite temporellement et spatialement. Le coefficient de transfert entre l'alliage et le creuset a été choisi pour simuler une faible résistance thermique entre les deux domaines.

La taille de grains et son évolution en fonction de la vitesse déterminés par la simulation (Figures 14.a et c) i.e. diminution de la taille lorsque la vitesse de tirage augmente sont en accord qualitatif avec les expériences (Figure 12). De plus, la distribution eutectique est d'autant plus homogène que la vitesse de tirage est augmentée dans les simulations comme dans les expériences. Dans les simulations, la phase eutectique est modélisée comme une transformation isotherme à la température eutectique du diagramme de phase. Par conséquent, il y a une corrélation directe entre la carte de composition moyenne simulée et la distribution de la fraction eutectique expérimentale. L'accord entre la structure de grains et la distribution

eutectique prouve que la distribution de phase eutectique mesurée dans les expériences est liée à la ségrégation pendant la solidification.

La comparaison entre les expériences et les simulations montre également qu'il y a un lien direct entre la ségrégation et la taille de grains. L'accumulation de soluté entre les grains est clairement mise en évidence pour une faible vitesse de tirage où des grains colonnaires allongés sont observés (Figure 14.c & d). L'évolution temporelle de la formation de la structure de grains obtenue par la simulation révèle qu'à faible vitesse de tirage, les branches des grains possédant différentes orientations à cause de leur germination aléatoire peuvent se rencontrer et former des poches de liquide qui sont à l'origine de poches eutectiques par la suite. La radiographie X a également permis de mettre en évidence la formation de poches eutectiques due à l'arrangement des grains équiaxes après leur collision. La convection intergranulaire existe dès que la structure de grains se développe et contribue à maintenir une composition élevée en soluté entre les grains et conduit à la formation de poches de fraction eutectique importantes à l'état solide. La distribution d'eutectique devient plus homogène quand la vitesse augmente.

Par contre, l'accumulation de soluté au centre prédite par les simulations (Figure 14.d) n'est pas observée expérimentalement (Figure 12). La raison en est probablement l'utilisation d'un modèle 2D axisymétrique qui ne permet pas de reproduire la forme 3D des grains entre autres choses ce qui justifierait le recours à des simulations 3D. De telles simulations en 3D sont envisagées avec une version 3D du modèle récemment développée.



Chapitre 2 Fig. 14: Solidification dirigée d'échantillons d'Al-Si 7,0 %pds non affiné. Structure de grains simulée pour les expériences à : a) $V_t = 150 \mu\text{m/s}$ et c) $V_t = 50 \mu\text{m/s}$ et, pourcentage de phase eutectique simulé pour les expériences à : b) $V_t = 150 \mu\text{m/s}$ et d) $V_t = 50 \mu\text{m/s}$. L'axe de symétrie est représenté par la ligne pointillée. La barre de couleurs correspond à la fraction eutectique.

Chapitre 3 : Influence de la convection naturelle ou forcée sur la structure de grains dans les alliages métalliques

Un autre point essentiel pour comprendre la solidification des alliages est la prise en compte de la convection qui interagit de façon significative avec la forme de l'interface solide-liquide et la localisation des microstructures [34, 74], la croissance des grains [59, 89], la croissance des grains équiaxes [60, 90], et la ségrégation. Plusieurs méthodes ont été proposées à la fois pour identifier les effets de la convection et également pour tenter de contrôler les écoulements dans le liquide au-dessus de l'interface solide-liquide.

La première consiste à comparer des expériences réalisées en présence de convection naturelle à des expériences de référence en microgravité. L'IM2NP participe aux projets CETSOL (Columnar to Equiaxed transition in SOLidification processing) de l'ESA (Agence spatiale européenne) et XRMON (*In situ* X-ray monitoring of advanced metallurgical processes under microgravity and terrestrial conditions) dans lesquels des expériences en microgravité et donc, en l'absence de convection mais aussi en l'absence des phénomènes de sédimentation des particules affinant et des grains sont menées. Dans les chapitres précédents, nous avons pu voir que les effets de la gravité: l'écoulement au-dessus de l'interface, sa pénétration dans la zone pâteuse et la sédimentation des grains modifient de façon significative la structure de grains. Les expériences en microgravité sont des expériences de référence en régime de transport diffusif qui permettent donc d'étudier l'effet de la convection. De plus, ces expériences de référence sont essentielles pour la validation et l'amélioration des codes de simulation numérique car elles permettent de découpler les phénomènes qui entrent en jeu.

La seconde consiste à utiliser un champ ou un stimulus externe (champ électromagnétique, vibrations ou rotations) pour contrôler les écoulements dans le liquide. Par ces moyens, on modifie l'écoulement au-dessus de l'interface solide-liquide, on modifie la forme des isothermes et donc des grains et on peut s'opposer au phénomène de sédimentation des dendrites équiaxes ou des particules germinantes et/ou favoriser le détachement et le transport par brassage de fragments de dendrite pour promouvoir la croissance équiaxe.

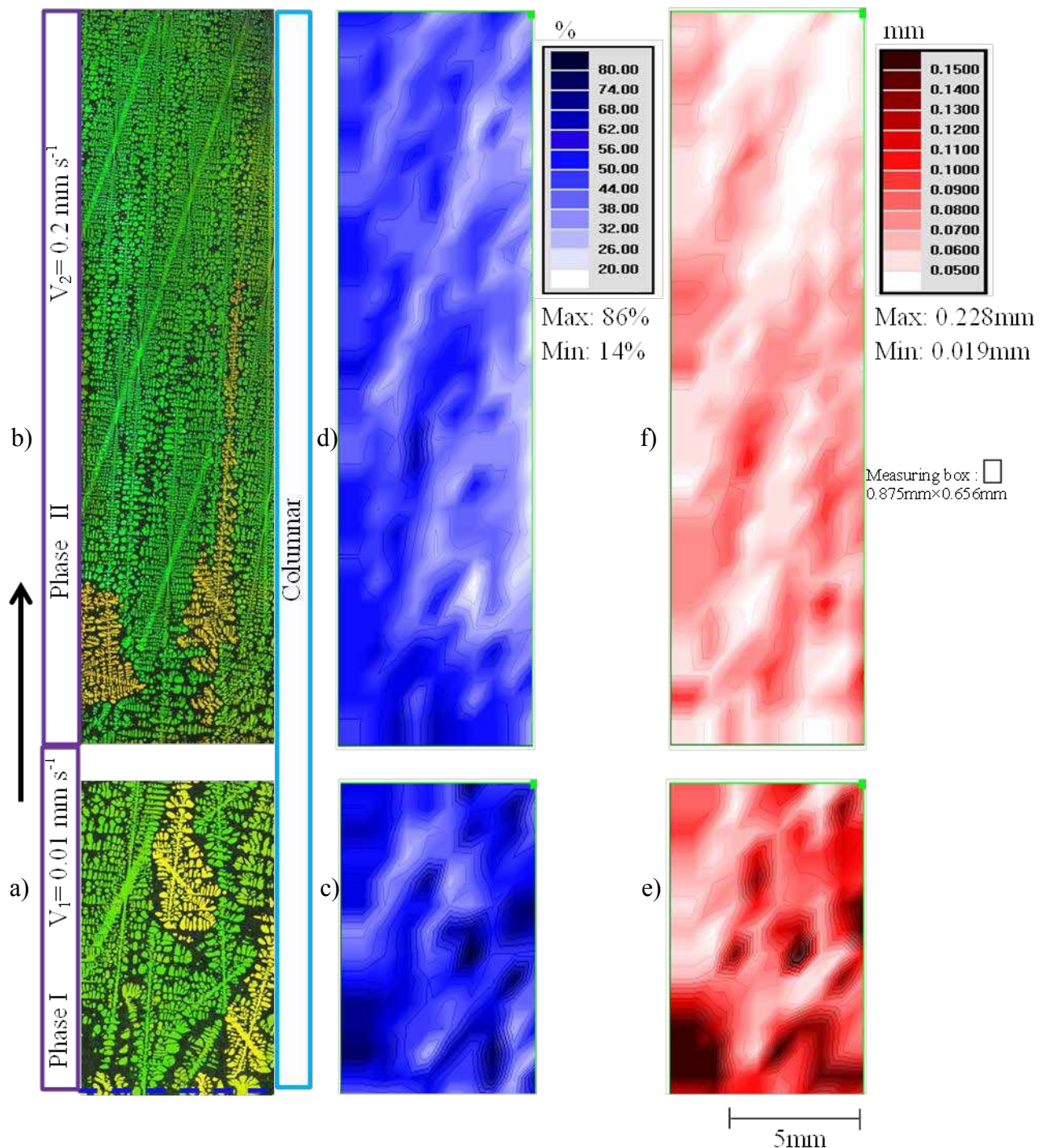
Au cours de la thèse de Kader Zaïdat, des expériences de solidification en présence de convection forcée induite par un champ magnétique glissant ont été réalisées. Les résultats que nous avons obtenus [91-95] ne sont pas présentés ici. Le travail présenté dans ce chapitre fait partie du projet CETSOL et a fait l'objet d'une partie des travaux de thèse d'Hyejin Jung [23], du post-doctorat de Kleber Sabat Da Cruz et de celui de Dong Rong Liu co-encadrée avec Charles-André Gandin (CEMEF MinesParistech à Sophia Antipolis).

3.1 ABSENCE DE CONVECTION (MICROGRAVITE)

En 2010 et 2011, les premières expériences en microgravité ont été réalisées le laboratoire de matériaux (MSL) dans la station spatiale internationale (ISS) dans le cadre du projet CETSOL. Nous sommes dans la phase de caractérisation de ces résultats et je m'implique plus particulièrement dans les aspects de caractérisation quantitative et de simulation numérique en collaboration avec le CEMEF. Les expériences réalisées dans cette première phase ont été réalisées dans le four à bas gradient (LGF) du MSL et sont décrites en détails dans [63]. D'autres expériences en microgravité ont été préparées dans le cadre du projet CETSOL pour le four à trempe (SQF) du MSL et sont en cours de réalisation.

La figure 1 présente la structure de grains révélée par polissage électrolytique pour deux coupes longitudinales obtenues après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 240 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds non affiné en microgravité avec un gradient thermique initial de 10 K/cm, une vitesse de tirage du four de 10 $\mu\text{m/s}$ (Phase I) puis de 200

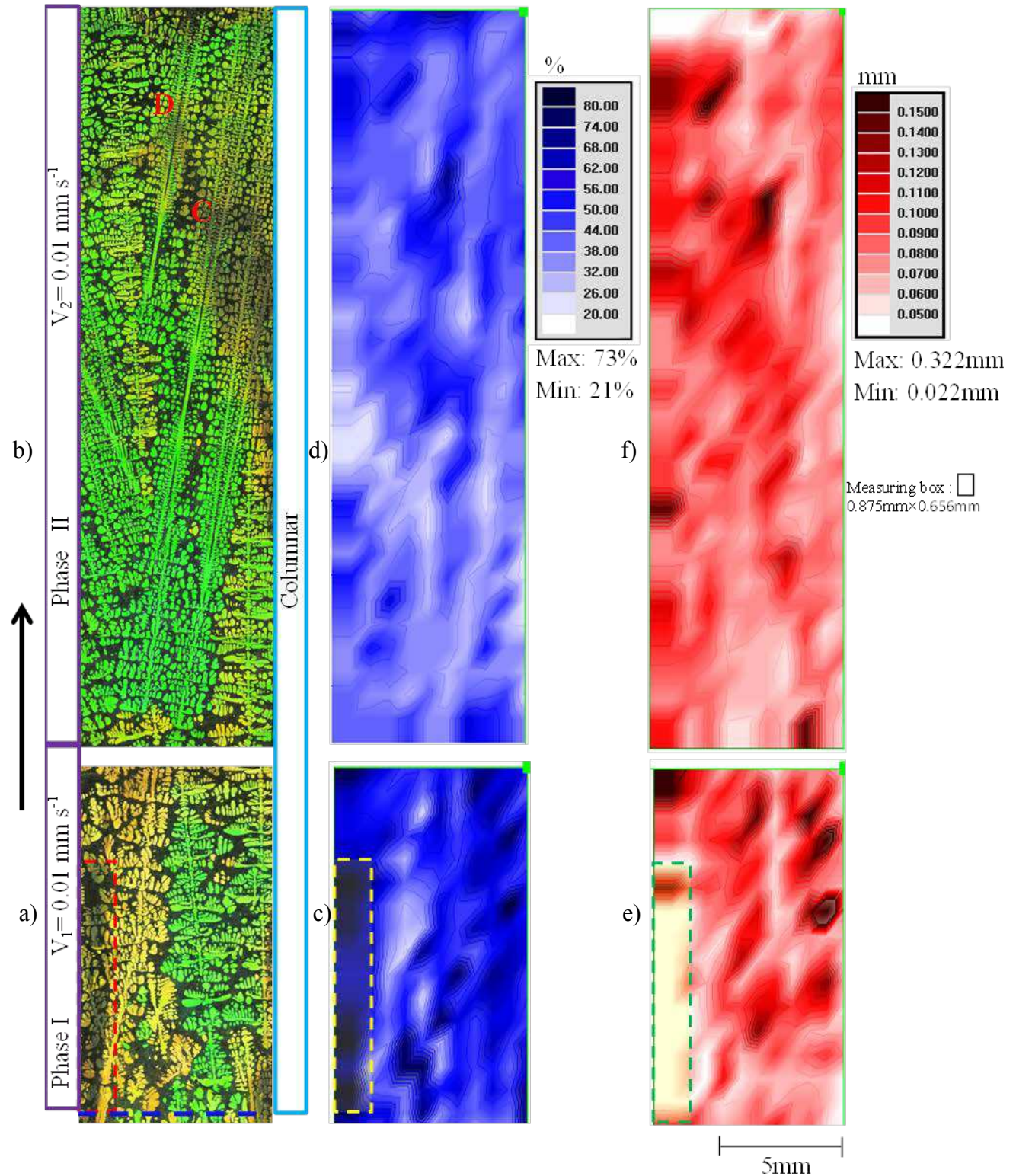
$\mu\text{m/s}$ au cours de la phase II. De plus, un refroidissement contrôlé à une vitesse de 4 K/min est appliqué simultanément au tirage à $200\text{ }\mu\text{m/s}$ à la zone chaude pendant la phase II.



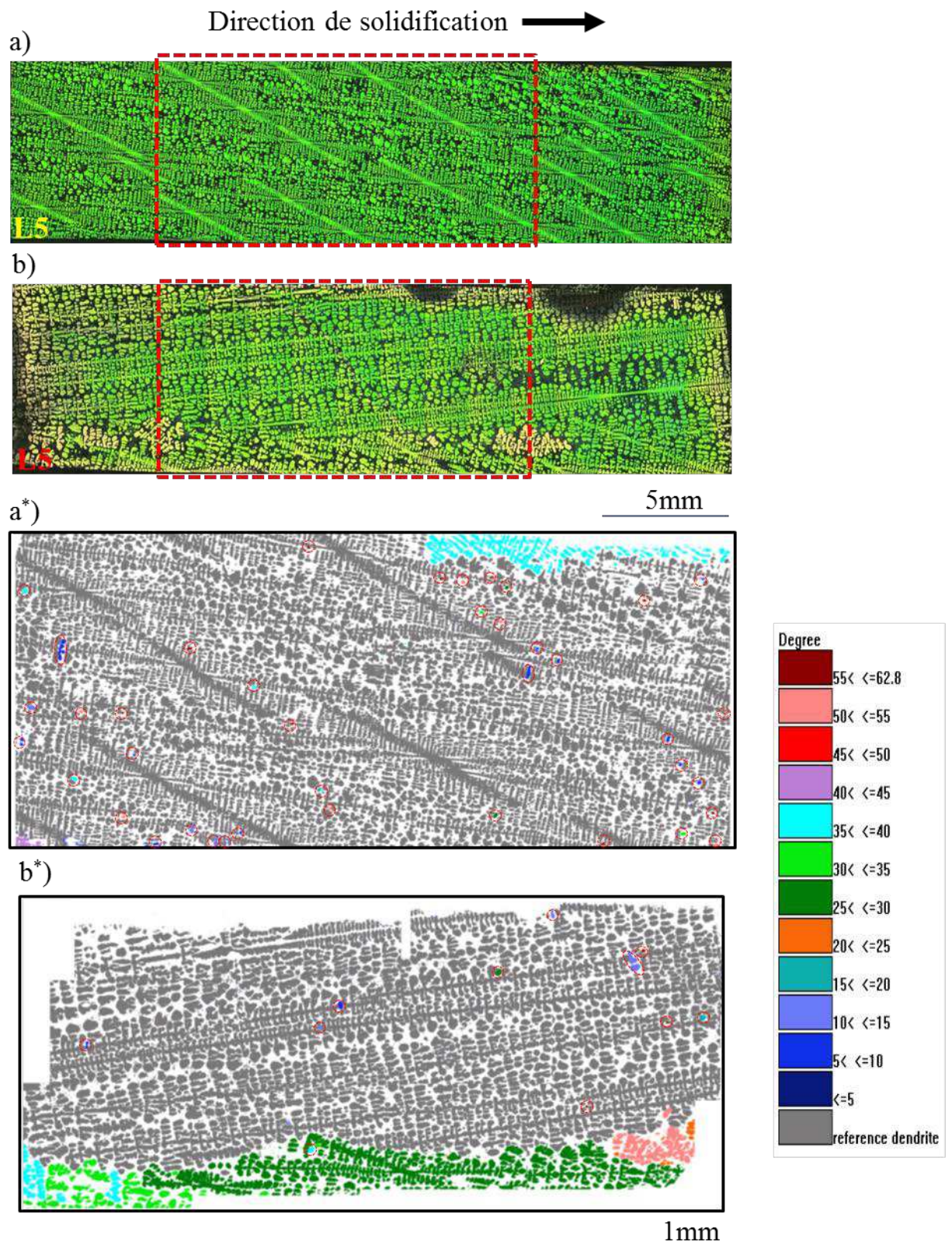
Chapitre 3 Fig. 1: Al-Si 7,0 %pds non affiné solidifié en microgravité, G_{initial} de 10 K/cm , $V = 10\text{ }\mu\text{m/s}$ à $200\text{ }\mu\text{m/s}$, Phase II : vitesse de refroidissement sur la zone chaude du four: 4 K/min simultanément à l'application de la vitesse de $200\text{ }\mu\text{m/s}$. a) et b) Coupes longitudinales après polissage électrolytique, c) et d) Distribution du pourcentage d'eutectique (maximum 86 % et minimum 14 %), e) et f) Distribution de l'espacement dendritique, DAS (maximum $228\text{ }\mu\text{m}$ et minimum $19\text{ }\mu\text{m}$). La flèche noire indique le sens de solidification. Taille de la boîte pour la mesure du pourcentage d'eutectique et de l'espacement dendritique: $0.875\text{ mm} \times 0.656\text{ mm}$.

Dans le bas de la figure 1.a, on observe le début de la solidification à partir de la zone mi-solide / mi-liquide durant la période de stabilisation suivant la fusion partielle de l'échantillon pendant la phase I. Les premiers grains croissent à partir des grains préexistants dans la zone stabilisée suivant la direction du gradient en fonction de leur orientation et entrent en compétition (Figure 1.a). Par la suite, un saut de vitesse de 10 à 200 $\mu\text{m/s}$ ainsi qu'un refroidissement de la zone chaude est appliqué. La structure reste colonnaire mais devient plus fine (Figure 1.b). Dans la zone stationnaire, un unique grain est révélé par l'anodisation. La cartographie de pourcentage de phase eutectique confirme quantitativement la présence de poches eutectiques dans les premiers instants de la solidification (Figures 1.a & c). De plus, la valeur maximale du pourcentage de phase eutectique diminue avec l'augmentation de la vitesse de tirage du four. De plus, la mesure de l'espacement dendritique (Dendrite Arm Spacing: DAS) par la méthode des interceptes montre que le DAS diminue sensiblement avec la vitesse de tirage (Figure 1.f). La valeur maximale du DAS varie de 230 μm à 110 μm environ. La distribution du DAS n'est pas homogène comme le montre la figure 1.f ce qui correspond également à la microstructure observée.

La figure 2 présente la structure de grains révélée par anodisation pour deux coupes longitudinales obtenues après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 240 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds non affiné en microgravité avec un gradient thermique initial de 10 K/cm, un vitesse de tirage du four de 10 $\mu\text{m/s}$ dans les phases I et II. Un refroidissement contrôlé à une vitesse de 4 K/min est appliqué à la zone chaude pendant la phase II. Comme dans l'expérience présentée figure 1, dans le bas de la figure 2.a, on observe le début de la solidification pendant la phase I à partir de la zone mi-solide / mi-liquide durant la période de stabilisation suivant la fusion partielle de l'échantillon. Les premiers grains croissent à partir des grains préexistants dans la zone stabilisée puis, les grains colonnaires entrent en compétition de la même manière que pour l'expérience présentée figure 1. Dans cette expérience, seul le refroidissement de la zone chaude est appliqué. La structure est colonnaire pendant toute l'expérience (Figure 2.b). Des poches eutectiques de taille plus importantes que pour l'expérience à grande vitesse se forment entre les dendrites colonnaires. La cartographie de pourcentage de phase eutectique confirme quantitativement la présence de ces poches eutectiques et l'inhomogénéité de la distribution eutectique (Figures 2.b & d). La mesure de l'espacement dendritique (DAS) par la méthode des interceptes montre que la distribution d'espacement dendritique est très large et que la valeur maximale est plus élevée que pour l'expérience présentée figure 1.

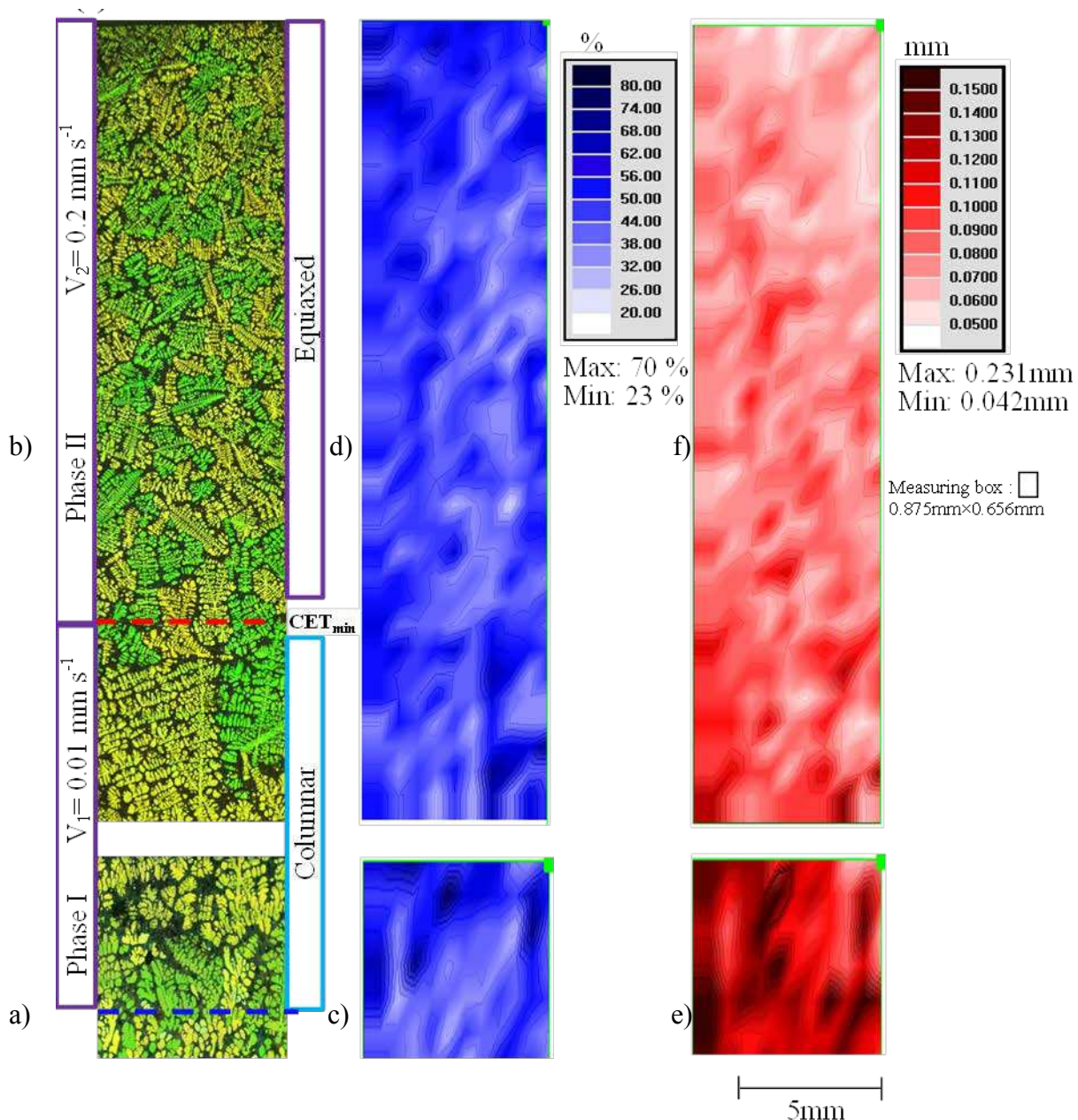


Chapitre 3 Fig. 2: Al-Si 7,0 %pds non affiné solidifié en microgravité avec : G_{initial} de 10 K/cm, $V = 10 \mu\text{m/s}$, Phase II : Vitesse de refroidissement sur la zone haute dans la deuxième phase: 4 K/min. a) et b) Coupes longitudinales après polissage électrolytique, c) et d) Distribution du pourcentage d'eutectique (maximum 73 % et minimum 21 %), e) et f) Distribution de l'espacement dendritique, DAS (maximum 322 μm et minimum 22 μm). La flèche noire indique le sens de solidification. Taille de la boîte pour la mesure du pourcentage d'eutectique et de l'espacement dendritique: 0.875 mm x 0.656 mm.



Chapitre 3 Fig. 3: Polissage électrolytique des sections longitudinales de la partie haute de l'échantillon pour les expériences correspondant aux : a) figure 1.b, b) figure 2.b. Les zones analysées par EBSD (a* et b*) sur ces sections sont délimitées par des rectangles rouges en pointillés sur les sections longitudinales. La dendrite d'orientation principale est en gris. L'échelle de couleur donne la désorientation des grains et des fragments par rapport à cette dendrite principale.

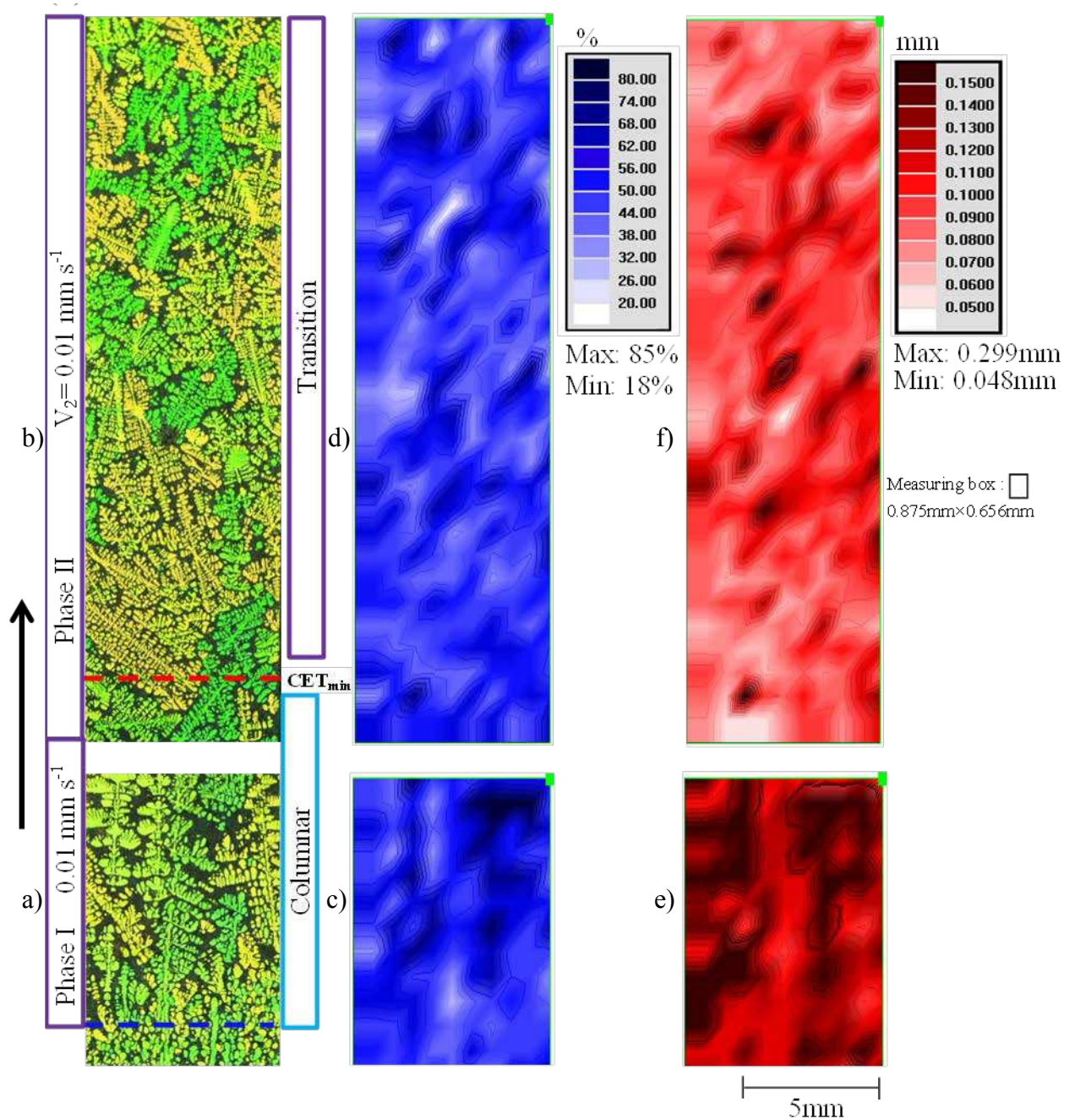
La figure 3 présente la caractérisation par EBSD des deux coupes longitudinales figures 1.b et figure 2.b. La caractérisation EBSD confirme que la croissance est colonnaire dans ces deux expériences et que la compétition de grains sélectionne une seule orientation principale à faible vitesse de tirage comme avec la vitesse de tirage élevée. L'EBSID révèle cependant la présence de quelques grains périphériques en plus du grain colonnaire principal. De nombreux grains de taille correspondant à la taille des bras secondaires et possédant une désorientation d'une dizaine de degrés ou plus par rapport à l'orientation principale sont observées dans les deux expériences (cercles rouges Figures 3.a* et b*).



Chapitre 3 Fig. 4: Al-Si 7,0 %pds affiné solidifié en microgravité : G_{initial} de 10 K/cm, $V = 10 \mu\text{m/s}$ à $200 \mu\text{m/s}$, Phase II : vitesse de refroidissement sur la zone haute: 4 K/min. a) et b) Coupes longitudinales après polissage électrolytique, c) et d) Distribution du pourcentage d'eutectique (maximum 79 % et minimum 32 %), e) et f) Distribution de l'espacement dendritique (maximum 231 μm et minimum 42 μm). La flèche noire indique la direction de solidification. Taille de la boîte pour la mesure du pourcentage d'eutectique de l'espacement dendritique: 0.875 mm $\times$ 0.656 mm.

La figure 4 présente la structure de grains révélée par anodisation pour deux coupes longitudinales obtenues après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 240 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds affiné en microgravité avec un gradient thermique initial de 10 K/cm, une vitesse de tirage du four de 10 $\mu\text{m/s}$ (Phase I) puis, de 200 $\mu\text{m/s}$ avec un refroidissement simultané de 4 K/min appliqué à la zone chaude (Phase II). Sur la figure 4.a, comme pour les expériences figures 1 et 2, les premiers grains croissent sur les grains préexistants dans la zone stabilisée puis se développent et entrent en compétition (Figures 4.a & b). La croissance est colonnaire dans cette première phase. Quand le saut de vitesse de 10 à 200 $\mu\text{m/s}$ est appliqué avec le refroidissement de la zone chaude qui entraîne une diminution du gradient thermique, la structure devient rapidement équiaxe (Figure 4.b). La répartition de la phase eutectique est homogène et liée à la structure de grains équiaxes lorsque la vitesse de tirage est de 200 $\mu\text{m/s}$, de plus, la distribution des valeurs se resserre (Figure 4.d). La valeur maximale du pourcentage de phase eutectique diminue avec l'augmentation de la vitesse de tirage du four. Cette valeur est comparable à celle mesurée à la même vitesse dans l'expérience sans particules affinantes aux mêmes vitesses (Figure 1.d). La mesure de l'espacement dendritique (DAS) par la méthode des interceptes montre que le DAS diminue sensiblement avec la vitesse de tirage (Figure 4.f). La distribution du DAS est plus homogène que dans le cas de l'alliage non affiné comme le montre la comparaison des figures 1.f & 4.f. Cependant, il faut noter qu'il y a un effet de coupe par rapport à la direction des dendrites colonnaires dans le cas de l'alliage non affiné.

La figure 5 présente la structure de grains révélée par anodisation pour deux coupes longitudinales obtenues après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 240 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds affiné en microgravité avec un gradient thermique initial de 10 K/cm, une vitesse de tirage du four de 10 $\mu\text{m/s}$ avec un refroidissement simultané de 4 K/min appliqué à la zone chaude au cours de la phase II. Comme pour les expériences figures 1, 2 et 4, les premiers grains croissent sur les grains préexistants dans la zone stabilisée, entrent en compétition (Figures 4.a & b) pour finalement conduire à une croissance colonnaire. Quand le refroidissement de la zone chaude est appliqué, la structure devient progressivement équiaxe (Figure 5.b). La répartition de la phase eutectique est moins homogène que dans l'expérience précédente à plus forte vitesse de tirage 200 $\mu\text{m/s}$ (Figure 4). La distribution du pourcentage de phase eutectique reste large (18 à 85 %). La mesure de l'espacement dendritique (DAS) par la méthode des interceptes montre que le DAS reste élevé même dans la zone équiaxe et est très sensible à la répartition des dendrites équiaxes (Figure 5.f). Sur la figure 5.b, la structure observée est intermédiaire de type II comme nous l'avons défini dans le chapitre 2, c'est-à-dire que les grains qui ont germés sur les particules sont très allongés. Plus haut dans l'échantillon, une transition équiaxe avec des grains pratiquement isotropes est obtenue.



Chapitre 3 Fig. 5: Al-Si 7,0 %pds affiné solidifié en microgravité avec : G_{initial} de 10 K/cm, $V = 10 \mu\text{m/s}$, Phase II : vitesse de refroidissement sur la zone haute dans la phase II : 4 K/min. a) et b) Coupes longitudinales après polissage électrolytique, c) et d) Distribution du pourcentage d'eutectique (maximum 85 % et minimum 18 %), e) et f) Distribution de l'espacement dendritique (maximum 299 μm et minimum 48 μm). La flèche noire indique la direction de solidification. Taille de la boîte pour la mesure du pourcentage d'eutectique de l'espacement dendritique: 0.875 mm $\times$ 0.656 mm.

Discussion [62, 63, 65, 96] :

Le démarrage de la solidification est comparable pour toutes les expériences en microgravité, c'est à dire, croissance à partir de grains préexistants après la période d'homogénéisation. A cause du gradient thermique relativement élevé et de la faible vitesse de tirage de la première phase (10 $\mu\text{m/s}$), des grains colonnaires se développent aussi bien dans l'alliage affiné que dans l'alliage non affiné durant cette première phase de

solidification. Les grains ainsi formés ont des orientations cristallographiques différentes et aléatoires. La compétition des grains initiaux a pour conséquence la formation de poches eutectiques au début de la solidification comme discuté dans le chapitre 2 également. La mesure de la répartition de la phase eutectique correspond à cette observation. On voit clairement avec ces expériences que la répartition de la phase eutectique et donc les ségrégations sont intimement liées à la structure de grains (Figures 1, 2, 3 et 4 b & d).

Dans les lingots non affinés, par la suite, à cause de la compétition de croissance entre les grains, seuls un ou deux grains vont survivre. Pour les deux expériences avec des alliages non affinés (Figures 1&2), dans le régime stationnaire, la croissance est donc colonnaire. Pendant la seconde phase, l'augmentation de vitesse de tirage du four de $V_1 = 10 \mu\text{m/s}$ à $V_2 = 200 \mu\text{m/s}$ dans l'expérience correspondant à la figure 1 a pour conséquence le développement d'une microstructure dendritique régulière et fine. Par contre sur la figure 2 qui correspond à l'expérience pour laquelle seul un taux de refroidissement est appliqué sur l'élément chauffant du haut, l'espacement primaire des dendrites est irrégulier et de plus grande taille par rapport à la figure 1 ce qui est cohérent avec les paramètres utilisés. De plus, des branchements secondaires plus nombreux sont observés dans cette dernière expérience (Figure 2.b). Des sillons de grande taille formés par la croissance de ces branches secondaires sont observés. Ces régions peuvent être des sites favorables pour la formation de fragments [21].

Des mesures d'EBSD complémentaires (Figure 3) montrent que certaines branches secondaires ont soit subi une rotation soit une fragmentation par rapport au grain colonnaire principal pour les deux vitesses utilisées (Figures 1 & 2). La mesure confirme quantitativement que la différence d'orientation est suffisante pour parler de grains isolés (dizaine de degrés). Cette région se solidifie sous un gradient de température autour de 5 K/cm qui, de plus, décroît avec une vitesse de refroidissement de 4 K/min ce qui est favorable au phénomène de fragmentation comme nous l'avons vu au chapitre 1 et par exemple dans [76]. Par conséquent, ces grains isolés viennent probablement de branches secondaires fragmentées par refusion qui tournent de quelques degrés et forment des grains indépendants. Cependant, ce phénomène ne concerne que peu de branches secondaires. Dans des conditions comparables au sol dans un autre four de solidification (Chapitre 2 et [23]), la croissance équiaxe a pu être obtenue dans l'alliage Al-Si 7,0 %pds non affiné par fragmentation. En microgravité, ces grains isolés n'induisent pas la CET. En effet, en microgravité, la convection est absente et, par conséquent, les fragments ne peuvent pas être transportés au-dessus du front colonnaire. Les fragments sont donc piégés dans la zone pâteuse et la CET ne peut pas être obtenue. De plus, la convection étant absente, elle ne peut pas jouer son rôle d'apport de soluté et de chaleur dans la zone pâteuse qui peut être favorable à la fragmentation ce qui peut expliquer la faible proportion de fragments observés en microgravité par rapport à des expériences de laboratoire dans des conditions comparables (Chapitre 1).

Dans le cas des lingots affinés, même pour la vitesse de tirage de $10 \mu\text{m/s}$ (Figure 5), après la formation des grains colonnaires initiaux, des grains équiaxes germent. Les conditions thermiques pendant la solidification des lingots affinés et non affinés sont identiques ce qui confirme que la différence de structure de grains obtenue même à grande vitesse entre les lingots non affinés (Figures 1 & 2) et affinés (Figures 4 & 5) est due à la présence des particules affinantes. Figure 5, les grains se développent avec une forme allongée suivant le gradient thermique. En effet, pour cette faible vitesse de tirage, la présence des particules affinantes autorise la germination de quelques grains quand la surfusion de constitution atteint la surfusion de germination des particules de plus grande taille qui sont aussi les plus rares

[4]. Dans cette expérience, la CET est progressive puisqu'on passe d'une zone colonnaire à une zone équiaxe isotrope en passant par une région intermédiaire de grains allongés suivant la direction du gradient thermique.

Par contre, dans la seconde phase de l'expérience figure 4, une vitesse de tirage de 200 $\mu\text{m/s}$ est appliquée en même temps qu'un refroidissement de la zone chaude. Par conséquent, de nombreux grains équiaxes germent, la CET se produit et est entretenue à cette vitesse de tirage élevée par des germinations par couches successives. En effet, plus la vitesse est élevée, plus le taux de germination est important [80]. Ces résultats confirment également que dans un lingot affiné, sous fort gradient, le mécanisme qui permet d'obtenir une CET abrupte est principalement contrôlé par la vitesse de tirage et n'est pas contrôlée par les effets de gravité et de convection contrairement au phénomène de fragmentation dans les lingots non affinés.

Les zones noires observées entre les dendrites correspondent aux poches de liquide induites par l'accumulation de soluté interdendritique qui forment des poches eutectiques quand la solidification totale du lingot se produit. Ces zones, comme discuté dans le chapitre 1, sont intimement liées à la forme des grains et à leur distribution. Dans le cas des lingots affinés, le liquide enrichi en soluté est réparti de façon plus uniforme autour de petits grains équiaxes que pour dans le cas des alliages non affinés. Quant à elles, les mesures quantitatives de DAS confirment que dans le cas d'une plus grande vitesse de tirage, une microstructure plus fine est obtenue. Cette tendance est en accord avec les modèles théoriques d'espacement dendritique [50, 51]: la diminution du DAS résulte de l'augmentation du taux de refroidissement due à l'application du saut de vitesse.

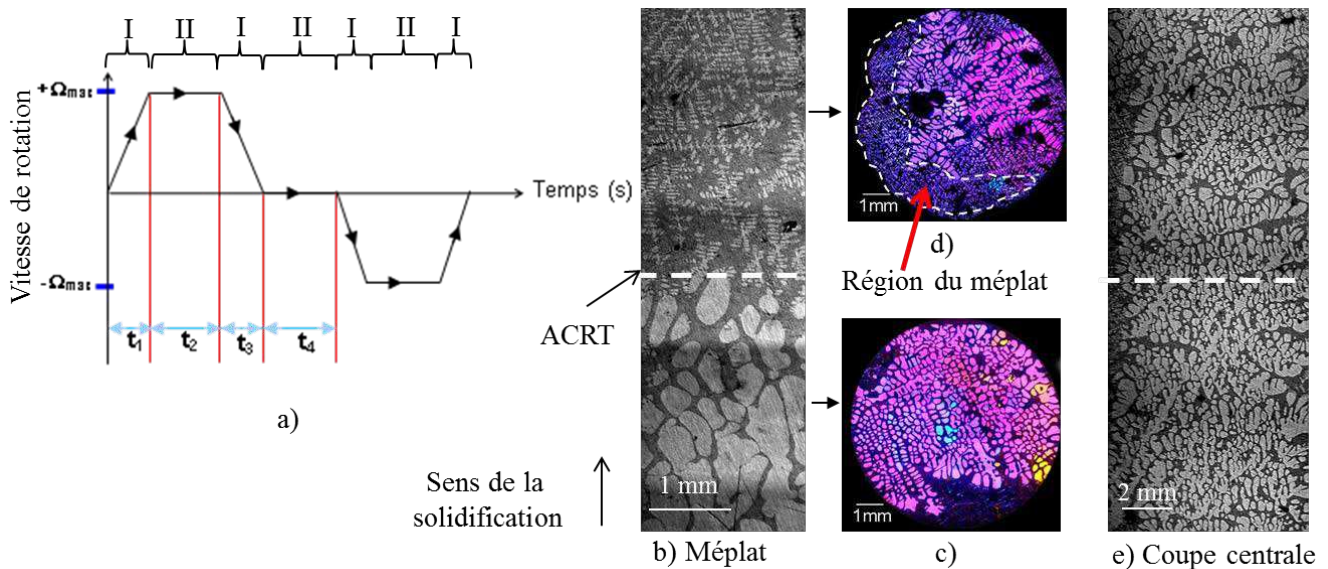
En conclusion, la structure de grains est à l'origine de la méso-ségrégation qui est mesurée ici par la distribution du pourcentage de phase eutectique. Une microstructure équiaxe fine et isotrope induit une distribution uniforme du DAS et du pourcentage de phase eutectique. Au contraire, la structure colonnaire conduit à des poches eutectiques de plus grande taille réparties de façon irrégulière. L'absence de convection n'empêche pas la méso-ségrégation due à la taille des grains, à leur forme et à leur arrangement. Par contre, l'absence de gravité et donc de convection ne permet pas de former une zone équiaxe par fragmentation dans les alliages non affinés.

3.2 STRUCTURE DE GRAINS ET CONVECTION FORCEE

En utilisant les rotations alternées (ACRT : Accelerated Crucible Rotation Technique) notre objectif était de contrôler la structure de grains et de favoriser la CET. En effet, l'écoulement forcé du liquide peut favoriser la fragmentation des branches secondaires dendritiques puis transporter les fragments.

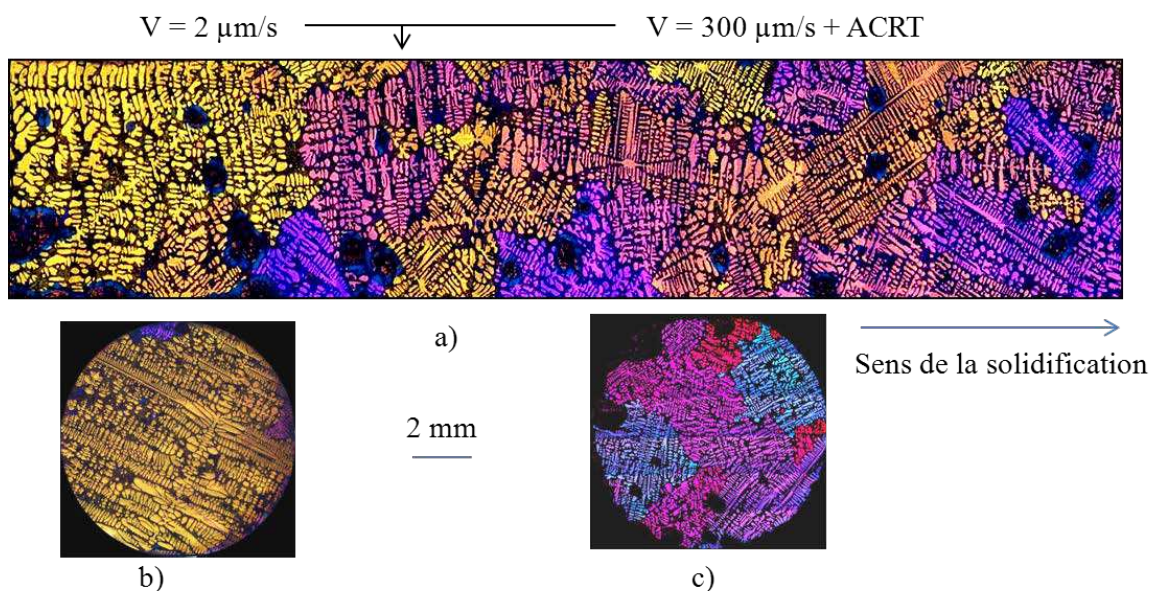
Nous avons choisi le mode de rotations alternées trapézoïdal (Figure 1.a) pour lequel le profil des rotations passe par différentes phases. Dans ce mode, la vitesse de rotation augmente pendant une durée t_1 , puis se stabilise pendant une durée t_2 . Elle diminue pendant t_3 et enfin la vitesse est nulle pendant une durée t_4 . Ensuite, une nouvelle phase de rotation débute, mais en sens inverse. Dans ce mode, différentes phases se succèdent : l'une devant permettre la fragmentation par dissolution ou refusion (Phase I figure 1.a : accélération ou décélération importante) et l'autre devant permettre la croissance de ces fragments (Phase II figure 1.a : vitesse de rotation constante).

Pour toutes les expériences présentées ici, on utilise un mode de rotation alterné trapézoïdal (Figure 6.a) avec des durées t_1 , t_2 , t_3 et t_4 de respectivement 4; 3,5; 3,5 et 4 s.



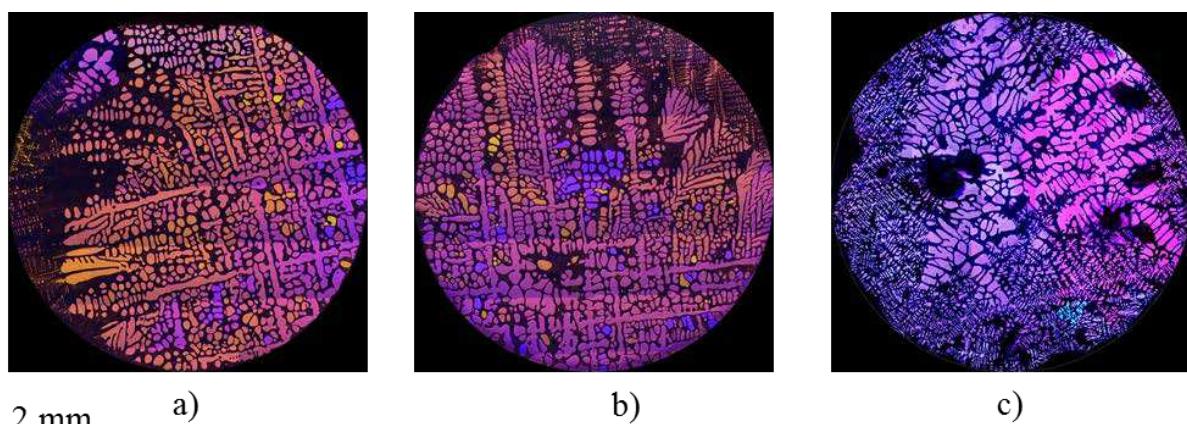
Chapitre 3 Fig. 6: a) Profil du mode de rotation trapézoïdal. Al - 7,0 %pds Si non affiné solidifié avec $G = 15 \text{ K/cm}$ et $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$ en l'absence puis, avec ACRT ($t_1 = 4 \text{ s}$, $t_2 = 3,5 \text{ s}$, $t_3 = 3,5 \text{ s}$ et $t_4 = 4 \text{ s}$) à $\Omega = 20 \text{ rpm}$, b) Méplat, c) Coupe transverse en l'absence d'ACRT, d) Coupe transverse dans la région d'application de l'ACRT et e) Coupe longitudinale au centre de l'échantillon.

La figure 6 présente la microstructure de croissance obtenue après la solidification d'un barreau cylindrique (8mm de diamètre et 120mm de long) d'Al-Si 7 %pds non affiné solidifié avec un gradient thermique de 15 K/cm , une vitesse de tirage de $2 \text{ } \mu\text{m/s}$ et des rotations alternées appliquées après quelques centimètres de croissance. La vitesse maximale de rotation est de 20 rpm . En dessous de la limite d'application des rotations alternées, la microstructure est uniforme et très peu branchée voire globularisée (Figure 6.b). Au-dessus de la limite d'application de l'ACRT, on observe la formation de dendrites très fines (Figure 6.b) uniquement en périphérie du barreau voir le méplat (Figures 6.b) et la coupe transverse (Figure 6.d). Au centre du barreau, la microstructure est colonnaire et présente des grains peu branchés (Figure 6.e).



Chapitre 3 Fig. 7: Al - 7,0 %pds Si non affiné solidifié à $G_{initial} = 15 \text{ K/cm}$, avec une vitesse de tirage de $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$ en l'absence d'ACRT puis à $V = 300 \text{ } \mu\text{m/s}$ avec ACRT (mode trapézoïdal, $\Omega_{max} = 20 \text{ rpm}$), a) Coupe longitudinale, b) Coupe transverse à $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$ en l'absence d'ACRT, c) Coupe transverse à $V = 300 \text{ } \mu\text{m/s}$ en présence d'ACRT.

La figure 7 présente la microstructure de croissance et la structure de grains révélée par anodisation obtenue après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 120 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds non affiné avec un gradient thermique de 15 K/cm, une vitesse de tirage de 2 $\mu\text{m/s}$ puis, une vitesse de tirage de 300 $\mu\text{m/s}$ et des rotations alternées appliquées simultanément après quelques centimètres de croissance (vitesse maximale de rotation de 20 rpm). En dessous de la limite d'application des rotations alternées, la microstructure est colonnaire (Figure 7.b) avec des grains très branchés. Certains des grains ne sont pas orientés parallèlement au gradient thermique. La microstructure est très comparable à la microstructure en l'absence d'ACRT (Chapitre 1, figure 1 par exemple). On note la présence de plusieurs poches eutectiques sur la coupe longitudinale correspondant à cette région (Figure 7.a). Au-dessus de la limite d'application de l'ACRT, on observe la présence de grains équiaxes millimétriques (Figure 7.c) comme le révèle l'anodisation. Ces grains sont également très branchés.

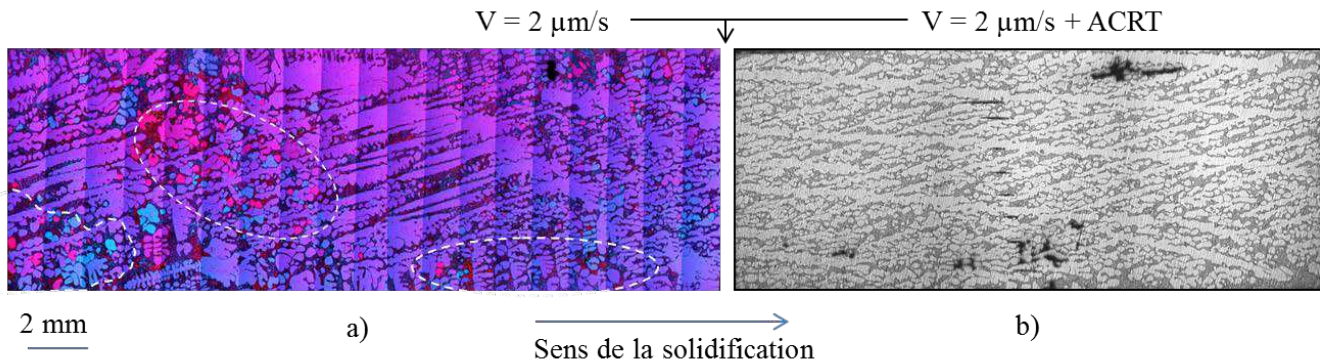


Chapitre 3 Fig. 8: Effet de la vitesse de rotation, Al - 7,0 %pds Si non affiné solidifié à $G = 15 \text{ K/cm}$, $V = 2 \mu\text{m/s}$ avec ACRT, Polissage électrolytique a) $\Omega = 5 \text{ rpm}$, b) $\Omega = 10 \text{ rpm}$ et, c) $\Omega = 20 \text{ rpm}$.

La figure 8 présente la microstructure de croissance et la structure de grains révélée par anodisation des coupes transverses dans la zone de régime établi obtenues après la solidification de barreaux cylindriques (8 mm de diamètre et 120 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds non affiné avec un gradient thermique de 15 K/cm, une vitesse de tirage de 2 $\mu\text{m/s}$ et des rotations alternées appliquées après quelques centimètres de croissance. Dans l'expérience présentée figure 8, la vitesse maximale de rotation pour chacune des expériences est de a) 5 rpm, b) 10 rpm, c) 20 rpm. La structure de grains est colonnaire et peu branchée pour la vitesse de rotation de 20 rpm (Figure 8.c) avec une zone périphérique de grains fins. Pour les deux autres vitesses de rotation, la structure observée suivant la coupe transverse est typique d'une structure colonnaire très branchée et présente de nombreuses désorientations des branches secondaires ou tertiaires révélées par l'anodisation. Ces branches secondaires ou tertiaires pourraient être des fragments (Figures 8.a & b).

La figure 9 présente la microstructure de croissance et la structure de grains révélée par anodisation après la solidification d'un barreau cylindrique (8 mm de diamètre et 120 mm de long) d'Al-Si 7,0 %pds non affiné avec un gradient thermique de 15 K/cm, une vitesse de tirage de 2 $\mu\text{m/s}$ et des rotations alternées appliquées après quelques centimètres de croissance (vitesse maximale de rotation de 50 rpm). En dessous de la limite d'application des rotations alternées, on observe certaines zones pour lesquelles la microstructure présente de nombreuses désorientations mises en évidence par l'anodisation à l'échelle des bras

secondaires des dendrites (Figure 9.a). Au-dessus de la limite d'application de l'ACRT, la microstructure est colonnaire (Figure 9.b) mais la morphologie est globularisée par rapport au cas sans ACRT (Chapitre 2 figure 1).



Chapitre 3 Fig. 9: Al - 7,0 %pds Si non affiné solidifié à $G = 15 \text{ K/cm}$ et $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$, polissage électrolytique a) Coupe longitudinale dans la région soumise à la vitesse de $2 \text{ } \mu\text{m/s}$ en l'absence d'ACRT b) Coupe longitudinale de la partie haute de l'échantillon avec ACRT ($\Omega = 50 \text{ rpm}$).

Discussion [37, 44, 91-95, 97, 98]:

L'ACRT peut provoquer un affinage de la microstructure de l'alliage clairement mis en évidence par exemple sur la figure 6.b ou la figure 8.c. Cependant, l'affinage n'est observé qu'en périphérie, la microstructure au centre de l'échantillon a une taille caractéristique beaucoup plus importante (Figure 6.e et Figure 8.c) et reste colonnaire dans ces expériences. Sur la coupe transverse obtenue en l'absence d'ACRT, la microstructure est colonnaire sans zone affinée (Figure 6.c), ce qui permet de conclure que ce phénomène est lié à la présence de l'ACRT. Les écoulements de Couette et d'Ekman induits par l'ACRT et qui se développent pendant la décélération rapide sont confinés à une couche proche des parois du creuset [99, 100]. La localisation de ces écoulements pourrait donc expliquer la localisation du phénomène d'affinage en périphérie.

L'application de l'ACRT modifie également la microstructure de la zone pâteuse même en dessous de la position à partir de laquelle l'ACRT est appliquée. En effet, la microstructure observée sous la position d'application de l'ACRT (Figure 6.b) est totalement différente de la microstructure colonnaire classique observée dans cet alliage (Chapitre 1). La morphologie est globulaire ce qui traduit le fait que l'écoulement forcé pénètre profondément dans la zone pâteuse et modifie sa microstructure peut-être par des refusions locales.

En utilisant d'autres paramètres, la CET peut être provoquée par l'application des rotations. La microstructure est équiaxe en présence d'ACRT pour une vitesse de rotation de 20 rpm et avec une vitesse de tirage de $300 \text{ } \mu\text{m/s}$ (Figure 7.a). En dessous, en l'absence d'ACRT et avec une vitesse de tirage de $V = 2 \text{ } \mu\text{m/s}$, la microstructure est colonnaire (Figure 7.b). Les grains équiaxes obtenus dans cette expérience sont homogènes mais restent de grande taille. Il faut noter que sans ACRT et dans les mêmes conditions de solidification, il n'y a pas de CET. La pénétration de l'écoulement forcé dans la zone pâteuse perméable peut provoquer des variations locales de température et de soluté et induire des refusions ou des dissolutions comme nous l'avons vu au chapitre 1. De plus, durant la solidification dirigée, nous avons mesuré la variation du gradient thermique induite par l'application de la rotation alternée. Au fur et à mesure de l'expérience, le gradient thermique diminue jusqu'à environ $G = 4 \text{ K/cm}$ à partir du gradient initial de 15 K/cm . En effet, le brassage induit des écoulements

qui homogénéisent la température. Or comme nous l'avons montré au chapitre 1, une diminution du gradient thermique favorise la fragmentation. Finalement, l'ACRT produit des effets qui concourent à la fragmentation et à l'établissement d'une zone équiaxe. Les fragments formés peuvent circuler dans le liquide grâce à la convection forcée puis atteindre des régions où les conditions sont favorables à leur survie et à leur développement. S'ils sont suffisamment nombreux et leur croissance suffisamment rapide, ils peuvent entrer en compétition avec les grains colonnaires et provoquer la CET. Cependant, les grains équiaxes obtenus sont de grande taille. C'est pour cette raison que nous avons également souhaité analyser l'effet de l'amplitude de la vitesse de rotation sur la structure de grains.

Pour trois vitesses de rotation, à faible vitesse de tirage (Figure 8), la croissance est dendritique colonnaire au centre avec une microstructure très fine en périphérie. La zone de dendrites fines est plus importante pour la vitesse de rotation Ω la plus élevée (Figure 8.c). Par conséquent, l'augmentation de la vitesse de l'écoulement forcé peut modifier la morphologie des dendrites qui s'affinent mais ne semble pas produire de fragments. Par contre, pour les vitesses de rotation modérées, on observe de nombreuses désorientations (Figures 8. a & b) qui sont probablement des fragmentations mais qui ne conduisent cependant pas à une CET. De plus, si la vitesse de rotation est encore augmentée, l'effet d'affinage disparaît. Au-dessus de ce seuil, l'effet d'homogénéisation dû à l'écoulement forcé de forte intensité prédomine. Par conséquent, une grande amplitude de rotation associée à un effet d'affinage ne semble pas compatible avec la formation de nouveaux grains par fragmentation.

Dans l'expérience figure 9, la microstructure est dendritique colonnaire avant et après l'application d'ACRT. Comme nous l'avons vu précédemment, l'utilisation de vitesses de rotation élevées ne provoque pas de CET bien que cela modifie la morphologie des dendrites. Par contre, on peut mettre en évidence de nombreux fragments de petite taille (régions entourées de pointillés blancs sur la figure 9.a). La morphologie de la zone pâteuse sous la position d'application de l'ACRT est donc modifiée à 50 rpm de façon plus importante qu'à 20 rpm. Avec une vitesse de rotation plus élevée, l'écoulement forcé pénètre plus profondément dans la zone pâteuse et à plus grande vitesse. La zone pâteuse est donc modifiée de façon plus importante avant le passage du front eutectique. L'importance de la pénétration de l'écoulement dans la zone pâteuse est démontrée par l'absence de phénomènes de fragmentation ou de CET provoquée par l'ACRT dans d'autres expériences que nous avons réalisées avec l'alliage Al-Ni 3,5 %pds dont le faible intervalle de solidification diminue fortement la possibilité et l'impact de la pénétration de l'écoulement.

Au cours de la thèse de Kader Zaïdat, des expériences ont également été réalisées sur des alliages affinés en présence d'un champ magnétique glissant [91-95]. Ces travaux ont montré l'effet très important de la convection forcée à la fois sur les structures de grains obtenues et sur les macroségrégations. Nous avons étudié l'effet d'un champ électromagnétique glissant sur les structures de grains dans l'alliage Al-Ni 3,5 %pds non affiné solidifié à $V = 10 \mu\text{m/s}$ et $G_{\text{initial}} = 26 \text{ K/cm}$. Sans brassage, la structure est colonnaire. Quand l'intensité de brassage est modérée, la structure de grains se modifie et on obtient des grains équiaxes allongés qui se développent de la périphérie vers le centre du creuset. De nouveau, la présence de grains libres, ne peut être expliquée que par l'ensemencement du liquide par des fragments de dendrites en provenance de la zone pâteuse. Pour des intensités de brassage plus importantes, la structure est de nouveau colonnaire. Le champ électromagnétique est donc capable de provoquer des fragmentations par pénétration de l'écoulement dans la zone pâteuse comme l'écoulement dû à l'ACRT. Cependant, pour que ces fragments puissent croître pour donner

naissance à des grains équiaxes, ils doivent être transportés vers une zone de croissance. Aux champs électromagnétiques modérés, des fragments peuvent être créés tout en maintenant une zone de surfusion de constitution tandis qu'aux champs d'intensité trop élevée la zone de surfusion est balayée par la convection forcée qui peut emporter les grains équiaxes dans le haut de l'échantillon où ils sont refondus et, interdit la croissance des grains équiaxes. Nous avons développé un modèle analytique afin de rendre compte de la modification de la couche de surfusion de constitution dans ces conditions de convection forcée qui confirme les conclusions tirées de ces observations.

En conclusion, le champ électromagnétique et l'ACRT modifient la structure de l'écoulement dans le liquide et également dans la zone pâteuse et par conséquent la macroségrégation et les structures de grains. Les résultats de ces travaux démontrent la possibilité d'un contrôle des microstructures, de la structure de grains et des macroségrégations radiale et longitudinale par la convection forcée par champ électromagnétique glissant et par ACRT. L'ensemble de ces travaux montre également que l'écoulement forcé peut provoquer des fragmentations mais que la CET ne peut être obtenue que si l'écoulement permet le transport des fragments et la conservation d'une zone de croissance au-dessus de l'interface.

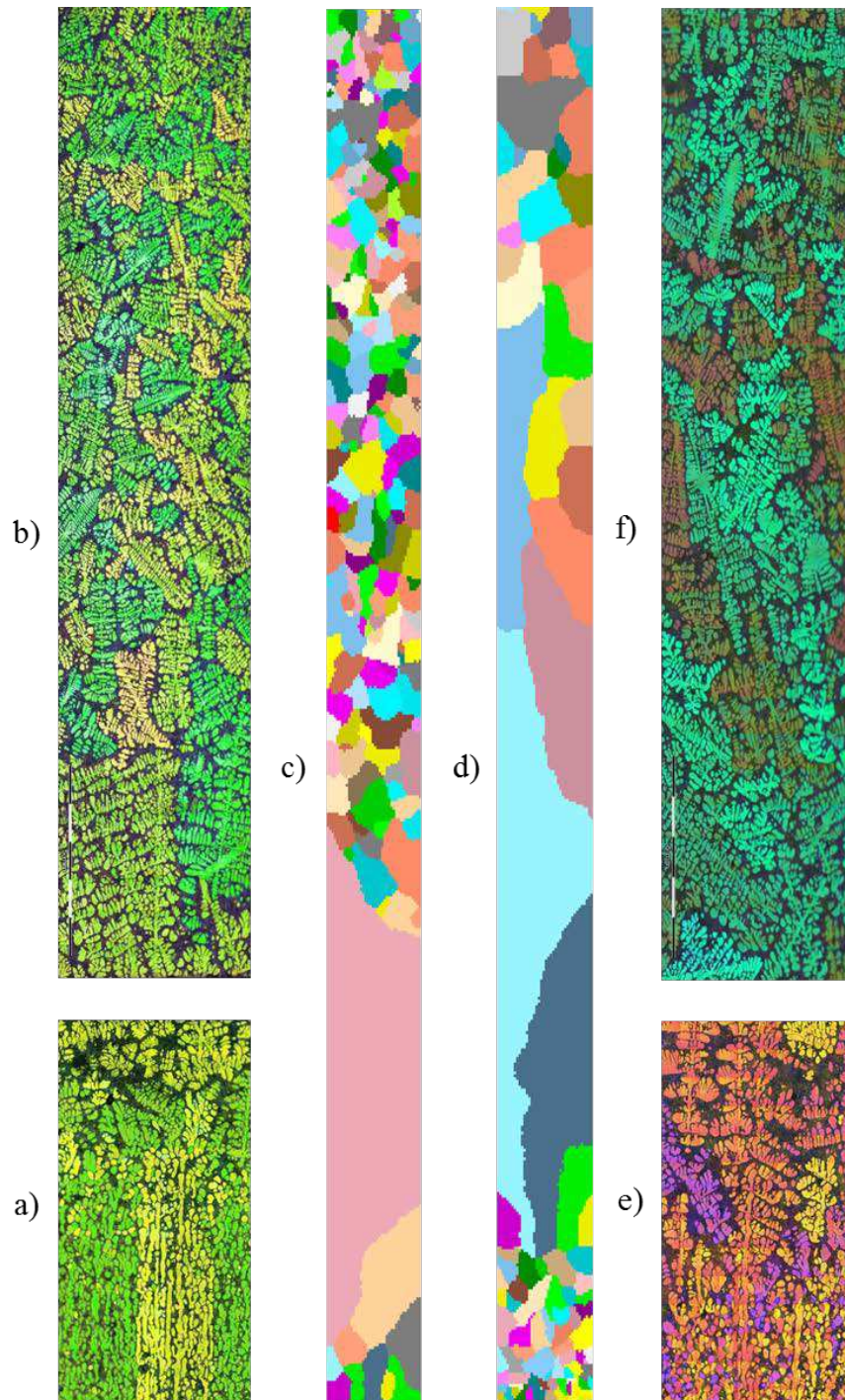
3.3 PERSPECTIVES DU CHAPITRE 3

De plus amples travaux seraient nécessaires afin d'élucider les phénomènes sous-jacents et d'améliorer le contrôle de la structure de grains par l'application d'ACRT. Les travaux concernant la convection forcée par champ électromagnétique sont poursuivis en collaboration avec le laboratoire SIMAP. Dans le cadre de ce projet, des expériences de solidification en présence d'un champ électromagnétique permanent sont effectuées dans le dispositif permettant le suivi par imagerie X synchrotron afin de mieux comprendre l'effet de la convection forcée sur le développement de la microstructure dendritique et sur la fragmentation. Des expériences ont déjà été menées et montrent un effet significatif du champ sur la forme de l'interface, sur la croissance des microstructures et sur le déplacement des fragments [97, 98].

En ce qui concerne les expériences réalisées en microgravité, la caractérisation quantitative des expériences se poursuit avec notamment la détermination de la taille des grains et de l'élongation à partir des mesures EBSD qui se font en collaboration avec le CEMEF. De plus, de nouvelles expériences en microgravité sont programmées dans le projet CETSOL afin de compléter les expériences précédentes avec des expériences focalisées sur la solidification des alliages non affinés, la fragmentation et l'importance de la convection et de la gravité dans ces phénomènes.

Des travaux de simulation numérique de la structure de grains en utilisant le code XR2Sol+CAFE sont effectués en collaboration avec Charles-André Gandin du CEMEF, Ecole des Mines de Paris. Les simulations en 2D axisymétrique utilisent comme conditions aux limites thermiques les températures enregistrées pendant la solidification par des thermocouples sur les creusets. Un exemple de comparaison qualitative entre les expériences et les simulations est donné figure 10. La structure de grains ainsi que les meso-ségrégations sont bien modélisées. Notamment, les simulations reproduisent la structure de grains et les différences qualitatives de taille et d'allongement observées entre les deux expériences et discutées dans le paragraphe 3.1 (CET abrupte et progressive). Cependant, des comparaisons quantitatives sont nécessaires pour améliorer la comparaison et la compréhension des

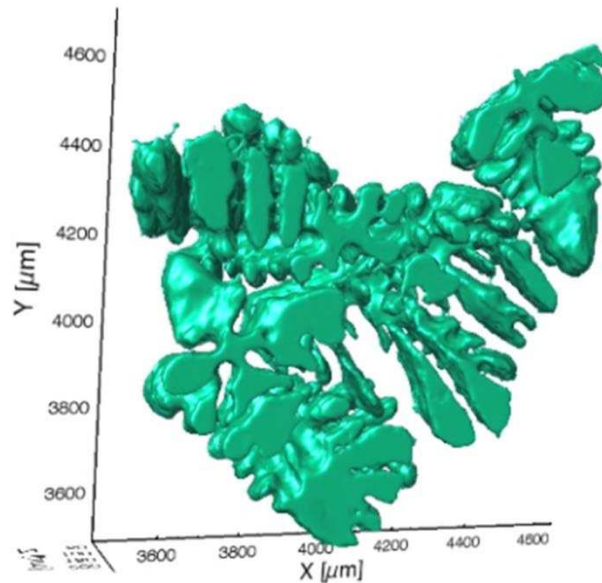
phénomènes. Ces comparaisons quantitatives des tailles de grains, de l'allongement et de la distribution eutectique sont en cours.



Chapitre 3 Fig. 10: Structure de grains révélée par polissage électrolytique sur une coupe longitudinale pour l'alliage Al-Si 7,0 %pds affiné a) & b) Durée d'homogénéisation = 10 min, $G = 10$ K/cm, $V_1 = 10$ $\mu\text{m/s}$, $V_2 = 200$ $\mu\text{m/s}$, $K_2 = 4$ K/min et e) & f) Durée d'homogénéisation = 10 min, $G = 10$ K/cm, $V_1 = 10$ $\mu\text{m/s}$, $V_2 = 10$ $\mu\text{m/s}$, $K_2 = 4$ K/min. Structure de grains simulée (seule une moitié d'échantillon est présentée) pour les expériences c) figure 10.a & b, d) figure 10.e & f.

Nous prévoyons également de comparer le résultat des simulations des expériences en microgravité à des simulations identiques en présence de convection. En effet, nous n'aurons accès qu'à une expérience de référence dans le même dispositif au sol prévue en 2013 dans le

cadre du projet CETSOL. La comparaison des simulations en présence de convection et sans convection permettra d'améliorer la compréhension de l'effet de la convection sur la structure de grains.



Chapitre 3 Fig. 11: Reconstruction 3D par découpe en série d'un grain dans la région équiaxe d'un barreau de 8 mm de diamètre et de 110 mm de long d'Al-Si 7,0 %pds affiné avec $G = 17 \text{ K/cm}$ et un saut de vitesse de $V_t = 25 \text{ μm/s}$ à $V_t = 300 \text{ μm/s}$.

Enfin, il ressort des discussions actuelles sur ce travail que la simulation axisymétrique présente des limitations lorsqu'on veut effectuer des comparaisons quantitatives. Par conséquent, une perspective est de simuler les expériences en microgravité en utilisant le logiciel de simulation 3D récemment mis au point au CEMEF. Ceci implique que des caractérisations 3D expérimentales qualitatives et quantitatives seront indispensables (taille de grains, élongation, pourcentage de phase eutectique inter-granulaire..). Nous avons pris contact avec le Prof. P. Voorhees (NW University of Evanston) pour réaliser ces caractérisations 3D par découpe en série. De premiers résultats prometteurs sur des échantillons élaborés au laboratoire ont été obtenus. Sur la figure 11, on peut voir la reconstruction d'un grain équiaxe. Dans la continuation envisagée du projet CETSOL, les partenaires prévoient de généraliser ces caractérisations 3D pour l'analyse des expériences microgravité.

Chapitre 4 : Solidification du silicium photovoltaïque multi-cristallin

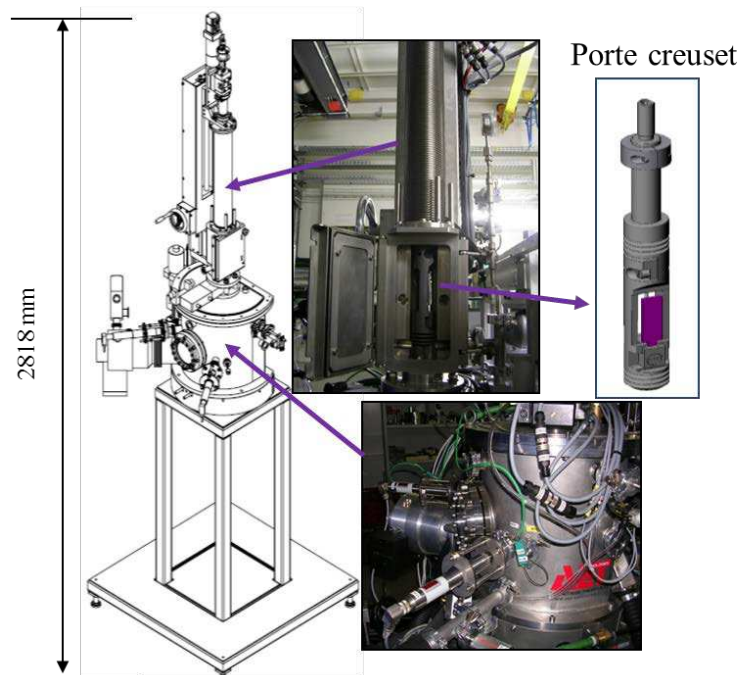
Les cellules photovoltaïques (PV) sont amenées à devenir une des composantes majeures de l'habitat écologique de demain. Cependant, le développement de l'électricité solaire photovoltaïque (PV) nécessite des progrès significatifs en termes d'amélioration des performances, réduction des coûts et augmentation de la fiabilité pour pouvoir soutenir la concurrence avec les énergies fossiles [17] et les autres énergies vertes. Parmi les matériaux utilisables dans les cellules solaires, les cellules solaires à base de silicium dominant actuellement le marché (80%). Dans le domaine d'application du silicium cristallin, le silicium multi-cristallin présente le meilleur rapport rendement prix mais il présente également des inconvénients dus à sa structure de grains [14] et aux défauts inhérents liés à la présence de joints de grains, de grains en position de macles et des différentes orientations cristallographiques. De plus, jusqu'à présent, du silicium en provenance de l'industrie microélectronique était utilisé pour fabriquer les cellules PV mais l'industrie rencontre depuis quelques années un problème d'approvisionnement en silicium de qualité suffisante pour obtenir des rendements de conversion satisfaisants. D'autres voies d'approvisionnement et de fabrication du matériau silicium de qualité acceptable pour les applications PV sont explorées mais ces matériaux silicium sources doivent être considérés comme de nouveaux matériaux vis-à-vis des procédés d'élaboration de lingots et de cellules. En conséquence, un certain nombre de problèmes liés à la solidification de ces matériaux doivent être réexaminés avec attention même lorsque les procédés étaient établis pour les matériaux en provenance de l'industrie microélectronique.

Par conséquent, il est indispensable de contrôler et donc de comprendre les mécanismes de formation de la structure de grains issue de l'étape de solidification et son impact sur les propriétés PV finales.

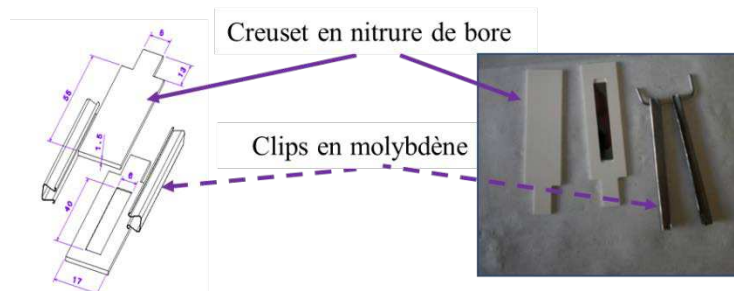
Au laboratoire EPM devenu SIMAP, j'avais participé avec Thierry Duffar à des travaux concernant la compréhension et la prédiction de la structure de grains dans le silicium multi-cristallin dans le cadre d'une collaboration avec l'entreprise Photowatt [101-104]. Suite à cette collaboration, nous avons conçu un modèle de transition de grains de silicium colonnaires à des grains de petite taille équiaxes [105, 106]. Ce travail a mis en évidence le manque d'information sur la germination des grains équiaxes dans le silicium et surtout sur les lois de croissance du silicium. Il a également montré l'importance du contrôle de la structure de grains dans ce matériau et la nécessité d'améliorer la compréhension des phénomènes spécifiques à la formation de celle-ci dans le silicium. Enfin, le silicium présente la particularité d'avoir une croissance facettée suivant l'une de ses orientations : (111) [107]. A l'IM2NP, nous avons déjà abordé la croissance facettée pour l'étude la solidification de quasi-cristaux à l'IM2NP [28, 38, 39, 68, 108-110]. Les travaux sur le silicium nous ont permis d'approfondir l'étude de la croissance facettée.

Plus récemment, avec l'objectif d'une meilleure compréhension des mécanismes de formation de la structure de grains dans le silicium multi-cristallin, j'ai coordonné de 2009 à fin 2012 un projet (Si-X) sur cette thématique. Le projet Si-X (Caractérisation et compréhension de la cristallisation du Silicium photovoltaïque: imagerie X synchrotron) financé par l'ANR HABISOL rassemblait plusieurs équipes : IM2NP, INES/CEA, SIMAP, ESRF, SINTEF, CEMEF, EMIX. Dans le cadre de ce projet, l'équipe MCA de l'IM2NP a caractérisé la solidification du silicium multi-cristallin *in situ* et en temps réel par imagerie X synchrotron : radiographie et topographie. Pour mener à bien ces expériences, nous avons dû développer un four de solidification pour des matériaux avec un point de fusion jusqu'à 1800 °C et adapté à l'imagerie X synchrotron. Cette phase a abouti fin 2010 avec la livraison et l'installation du dispositif à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility). En Octobre 2010, Amina Tandjaoui a débuté sa thèse sur le sujet.

4.1 DISPOSITIF CONÇU DANS LE CADRE DU PROJET SI-X



Chapitre 4 Fig. 1: Schéma du four de solidification du silicium photovoltaïque et porte creuset

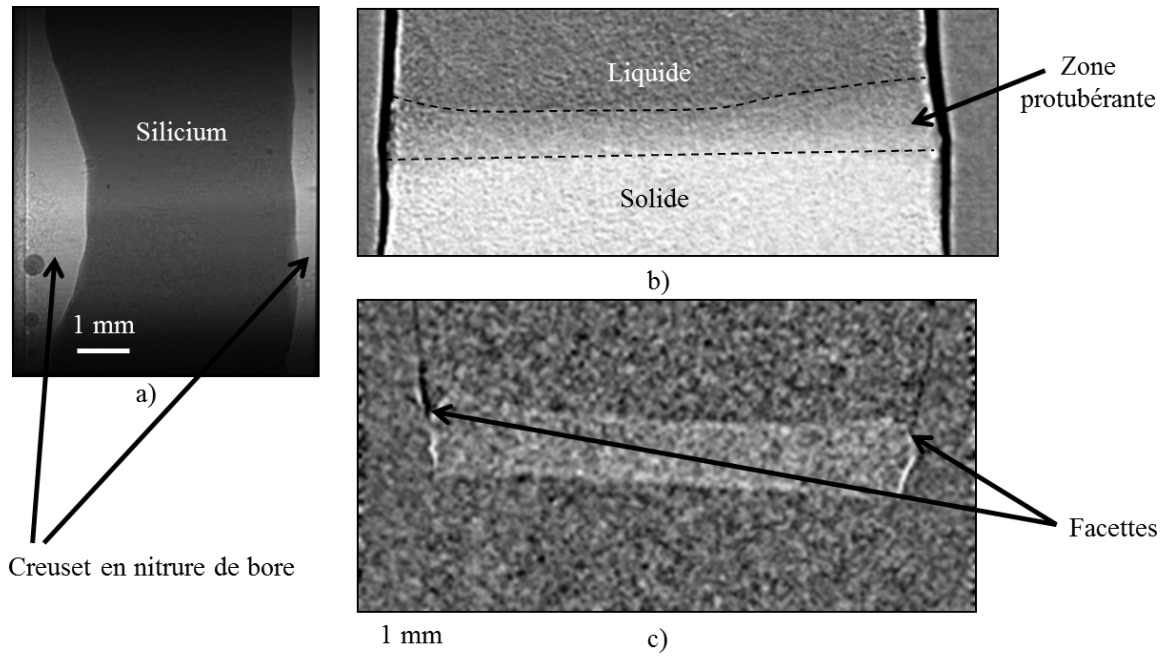


Chapitre 4 Fig. 2 : Assemblage échantillon-creuset.

La figure 1 présente le dispositif de solidification mis au point dans le cadre du projet Si-X. Le four est constitué de deux zones résistives chauffantes qui permettent d'imposer et de contrôler le gradient thermique. Les échantillons sont insérés dans l'enceinte à vide dynamique qui contient le four par l'intermédiaire d'une chambre d'introduction. Les échantillons utilisés dans ces expériences ont les dimensions moyennes suivantes : 40 mm de long, 6 mm de large et 300 μm d'épaisseur. Les creusets sont constitués de deux plaques avec un logement pour l'échantillon. Des pinces en molybdène assurent le serrage des deux plaques (Figure 2). Dans les expériences décrites dans la suite, le creuset est en nitrure de bore. Différentes qualités de silicium sont étudiées: silicium pur (6N) d'origine Czochraslki, solaire (SoG), solaire avec une proportion connue de C et/ou de O, métallurgique amélioré (UMG), métallurgique (MG). La solidification est obtenue par refroidissement contrôlé des résistances chauffantes ou par tirage de l'échantillon vers la zone basse du four.

D'autres travaux [111-115] ont pour objectif de caractériser la solidification du silicium pour les applications photovoltaïques en utilisant des techniques de microscopie et ont permis d'étudier la croissance facettée du silicium et la formation de certains types de macles. Dans nos travaux, les deux techniques d'imagerie X synchrotron déjà utilisées pour les alliages

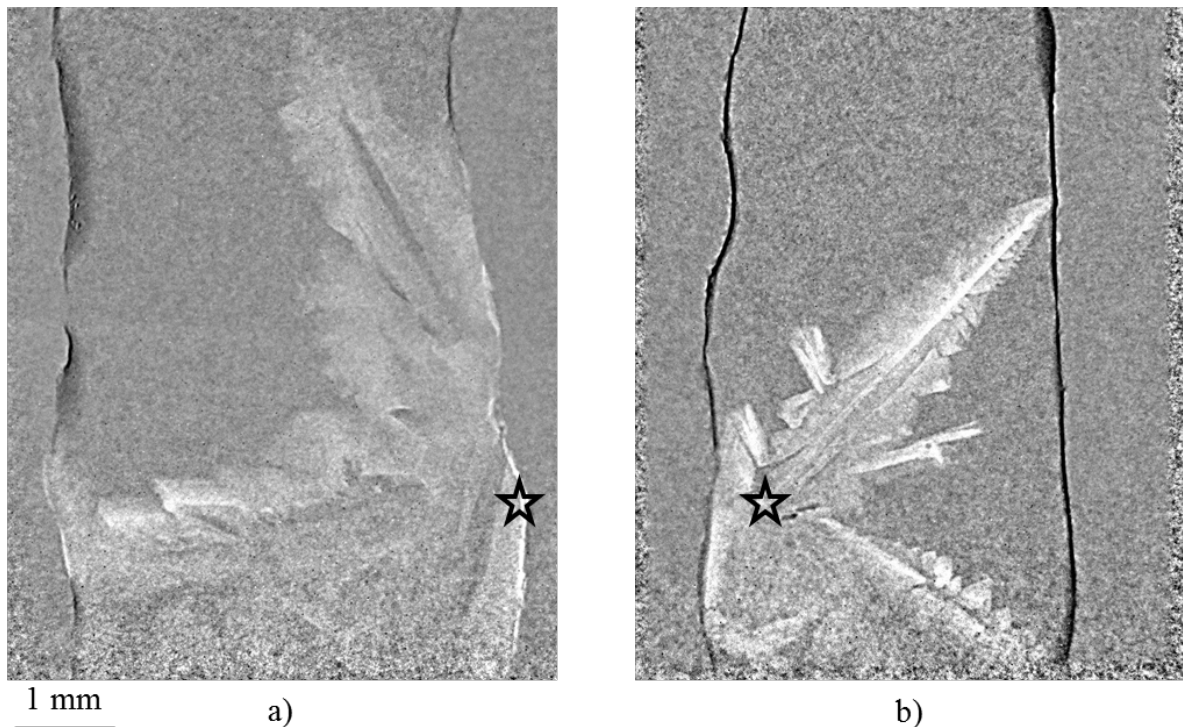
métalliques (radiographie X et topographie X) sont mises en œuvre et permettent d’explorer d’autres mécanismes de la croissance du silicium. Dans le cas de la radiographie X, un faisceau blanc traverse l’échantillon en cours de croissance. Au passage dans l’échantillon, le faisceau transmis subit une absorption différentielle dans l’échantillon. Il est ensuite rendu monochromatique à l’aide d’un post-monochromateur ($E = 17,5 \text{ keV}$) puis, l’image est enregistrée par l’intermédiaire d’une caméra spécifique (FReLoN) développée à l’ESRF. En mode topographique, le faisceau direct est coupé et on enregistre les faisceaux diffractés sur des films négatifs. Les deux modes peuvent être utilisés alternativement pendant une même expérience. Les spécificités du dispositif dédié à la caractérisation de la solidification du silicium par imagerie X sont décrites avec plus de détails dans [116].



Chapitre 4 Fig. 3: Traitement des images de radiographie X a) Image brute d’un échantillon de silicium de haute pureté (6N) pendant sa solidification (Gradient thermique : $G = 17,5 \text{ K/cm}$, Vitesse de refroidissement : $K = 0,2 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants). b) Division pixel par pixel de l’image en cours par la première image (Silicium de qualité solaire, $G = 12 \text{ K/cm}$, $K = 0,2 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants) c) Division pixel par pixel d’images successives (Silicium de qualité solaire, $G = 11 \text{ K/cm}$, $K = -0,5 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants).

Dans le cas de la solidification du silicium, le contraste en radiographie est dû à la différence de densité entre le solide et le liquide uniquement puisqu’il n’y a pas d’élément d’alliage. Cependant, cette différence de densité est très faible ($\rho_s = 2,31 \text{ g.cm}^{-3}$ et $\rho_l = 2,56 \text{ g.cm}^{-3}$). Par conséquent, sur l’image radiographique brute (Figure 3.a), l’interface n’est pas visible. Afin de révéler l’interface, nous utilisons deux types de traitement des images. Le premier traitement des images consiste à effectuer une division pixel par pixel de l’image en cours par la première image à l’instant suivant l’application du refroidissement. Le résultat de ce type de traitement est présenté figure 3.b. Le solide apparaît en gris clair car la densité du solide est inférieure à celle du liquide qui apparaît en gris foncé. Une zone de gris intermédiaire est observée entre la zone solide et la zone liquide (Figure 3.b). Cette zone correspond à une zone solide protubérante dans le liquide. Avec ce type de traitement, on peut suivre la dynamique d’évolution de l’interface solide/liquide. Le second traitement des images consiste à diviser pixel par pixel deux images successives espacées temporellement de

quelques secondes dans nos expériences (Figure 3.c). Avec ce type de traitement des images, on obtient une image de la forme précise de l'interface. Sur la figure 3.c, on peut observer par exemple des facettes sur les bords de l'échantillon de silicium. Il faut noter à ce stade que la forme des échantillons (par exemple figure 3.a) est due à la rétraction de l'échantillon au moment de sa fusion. De plus amples renseignements sur le traitement des images peuvent également être obtenus dans la référence [116].



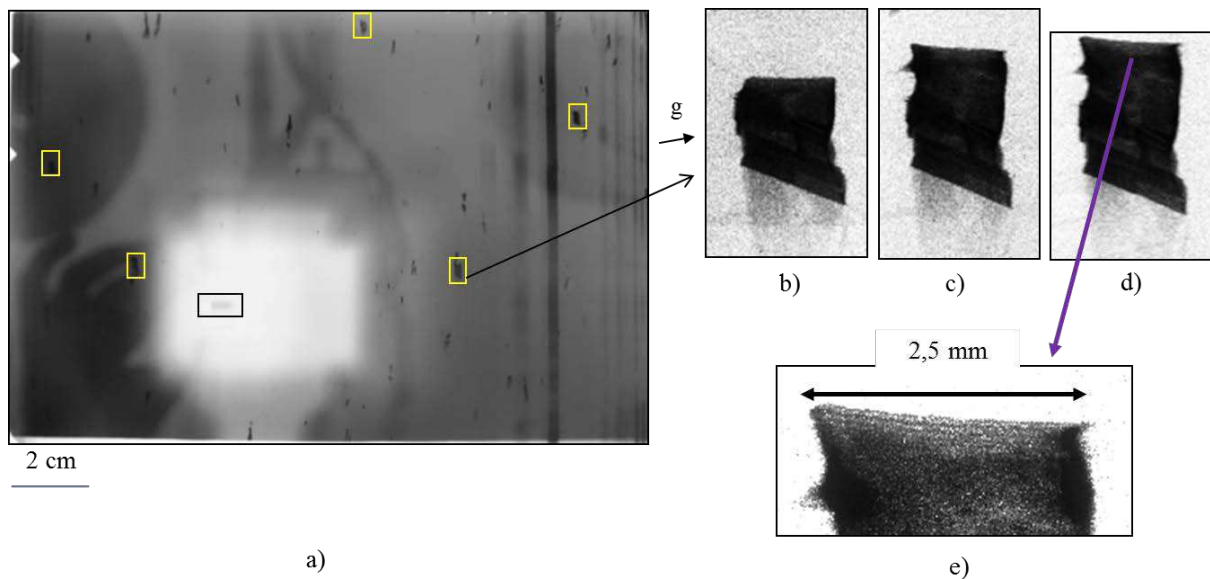
Chapitre 4 Fig. 4: Dendrites à partir d'un état surfondu : a) Si MG, état initial isotherme et surfondu, Vitesse de refroidissement appliquée sur les deux éléments chauffants $K = 1 \text{ K/min}$ à partir de t_0 .

Image à $t = t_0 + 19 \text{ min}$, b) Si pur (6N), $G \approx 25\text{-}30 \text{ K/cm}$ et état initial surfondu, Vitesse de refroidissement appliquée sur l'élément du bas $K = 8,3 \text{ K/min}$ à partir de t_0 . Image à $t = t_0 + 7 \text{ min}$.

L'étoile noire indique le site de germination de la dendrite.

La figure 4 présente deux exemples de croissance dendritique dans deux qualités de silicium différentes: silicium de qualité métallurgique (Figure 4.a) et silicium très pur (6N) (Figure 4.b). La solidification dendritique est obtenue à partir d'un échantillon surfondu. Le site de germination de la dendrite est matérialisé par une étoile noire pour les deux expériences. Les branches dendritiques se développent à partir de ce site pour envahir tout l'échantillon. Les dendrites présentent des facettes et sur la figure 4.b, on observe également la croissance d'aiguilles à partir du tronc primaire.

La figure 5 présente un film topographique enregistré pendant une expérience de solidification d'un échantillon de silicium métallurgique sous un gradient de $12,5 \text{ K/cm}$ avec une vitesse de refroidissement de $0,5 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants. Les rectangles jaunes indiquent les taches de diffraction correspondant à l'un des grains de l'échantillon. Plusieurs films topographiques sont enregistrés au cours d'une même expérience et on peut observer l'évolution temporelle de l'une des tâches et donc de ce grain (Figures 5.b à d). Le grain se développe vers le haut dans le sens du gradient. Sur le zoom (Figure 5.e) de la partie haute du grain (Figure 5.d), on observe des franges de Pendellösung.



Chapitre 4 Fig. 5: Topographie X pendant la solidification de silicium métallurgique à $G = 12,5 \text{ K/cm}$, Vitesse de refroidissement appliquée sur les deux éléments chauffants $K = 0,5 \text{ K/min}$, la vitesse de croissance mesurée est de $6,5 \text{ } \mu\text{m/s}$, a) Film topographique et taches correspondant au même grains (rectangles jaunes). Séquence temporelle de l'évolution d'une des taches b) t_0 , c) $t_0 + 1 \text{ min}$, d) $t_0 + 2 \text{ min}$, et e) zoom de la partie haute de la figure 4.d au niveau de la zone protubérante montrant des franges de Pendellosüng. "g" est le vecteur de diffraction.

Discussion [116]:

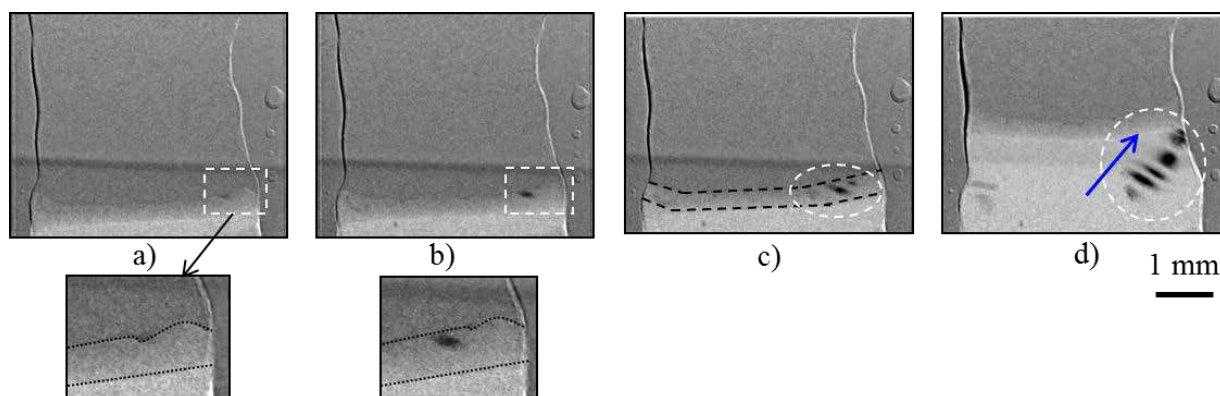
Le nouveau dispositif que nous avons conçu permet de caractériser la solidification du silicium *in situ* et en temps réel par radiographie et topographie X. Ces deux modes sont complémentaires. La radiographie X donne des informations sur la dynamique et sur la vitesse de croissance. La topographie X quant à elle permet de mettre en évidence la compétition entre grains, leur orientation cristallographique, les grains en position de macle, les défauts et déformations. Compte tenu du matériau, le contraste en radiographie X ne peut être révélé que par traitement des images (Figure 3) d'où une interprétation plus ardue. En topographie, comme le faisceau synchrotron est large, on retrouve l'image des grains suivant leurs différentes orientations lorsque les taches sont observées à l'aide d'un microscope. La position des taches donne l'information concernant l'orientation cristallographique. Un même grain a donc plusieurs images sur le film topographique qui correspondent à l'image des grains suivant un ensemble de plans cristallins.

Le mode de croissance dendritique du silicium a récemment connu un regain d'attention [14, 117, 118] car il permet de limiter le nombre de grains dans le lingot. La figure 4 présente deux croissances dendritiques pour du silicium de différentes qualités. Les dendrites sont obtenues en partant d'un lingot complètement fondu. La surfusion du liquide au moment du refroidissement provoque une germination et une croissance rapide. La dendrite devient rapidement facettée car ce sont les plans les plus lents donc les plans (111) facettés qui imposent sa forme. Dans une autre expérience, nous avons pu observer un sommet dendritique octaédrique correspondant à la forme obtenue lorsque seules les facettes (111) les plus lentes imposent la forme de la pointe dendritique. Une fois refondu partiellement, le grain issu de la solidification dendritique permet de travailler avec une interface contenant uniquement un ou deux grains. Nous analysons actuellement la croissance dendritique plus en détails. Bien qu'étant utilisée pour obtenir un état initial monocristallin, la croissance

dendritique n'est pas celle utilisée en mode stationnaire pour la croissance du silicium multicristallin destiné aux applications photovoltaïques. En général, la croissance se fait à une vitesse de quelques $\mu\text{m/s}$. Dans la suite, nous nous sommes focalisés sur ce mode de croissance à plus faible vitesse de croissance.

L'existence de la zone protubérante (Figure 3) montre que l'interface n'est pas plane. De plus, lorsque cette zone est caractérisée par topographie X (Figure 5), on remarque qu'elle présente des franges de Pendellösung signe d'une très grande qualité cristalline et d'une quasi absence de dislocations [116]. Cette observation a été faite au cours de plusieurs expériences. Il est important de noter que la grande qualité cristalline dans la zone protubérante est observée aussi bien dans le silicium pur que pour les matériaux les plus chargés en impuretés le silicium MG comme sur la figure 5. Sous le niveau de la zone protubérante, le contraste des taches topographiques est très foncé et l'on n'observe plus de franges en conséquence de la contrainte et des dislocations qui peuvent être induites dans la région où le silicium est en contact avec le creuset.

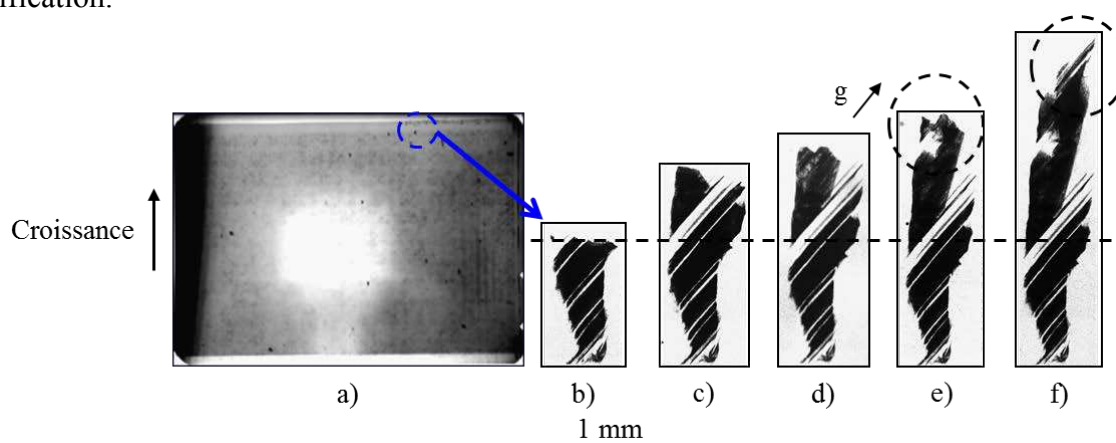
4.2 FORMATION DES MACLES DANS LE SILICIUM MULTICRISTALLIN



Chapitre 4 Fig. 6: Radiographie X de la formation de macles pendant la solidification d'un échantillon de silicium MG avec un gradient thermique de $G = 15 \text{ K/cm}$, une vitesse de refroidissement de $K = 1 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux résistances chauffantes à t_0 : a) $t_0 + 4 \text{ min } 41 \text{ s}$, b) $t_0 + 4 \text{ min } 52 \text{ s}$, c) $t_0 + 5 \text{ min } 4 \text{ s}$, d) $t_0 + 6 \text{ min } 56 \text{ s}$.

La figure 6 présente des images radiographiques enregistrées pendant une expérience de solidification d'un échantillon de silicium de qualité métallurgique sous un gradient de 15 K/cm avec une vitesse de refroidissement de 1 K/min appliquée sur les deux éléments chauffants. Sur la figure 6.a, on peut observer la présence d'un segment noir (absence totale de faisceau transmis) qui correspond à une zone d'orientation en position de Bragg pour l'énergie sélectionnée pour la radiographie ($17,5 \text{ keV}$). Ce segment de contraste noir apparaît à l'interface solide-liquide en haut de la zone protubérante. Le zoom de la zone correspondante figure 6.a montre que cette ligne se forme au niveau d'une facette à l'interface. Le grain qui possède cette facette continue à croître vers le haut au cours de l'expérience et une nouvelle ligne noire apparaît à l'interface solide-liquide (Figure 6.b) toujours au niveau de la même facette. Au cours de la croissance, de nombreuses autres lignes noires parallèles sont observées (Figures 6.c & d) et apparaissent successivement au niveau de la même facette du grain en croissance suivant la direction de la flèche sur la figure 6.d. Ces lignes correspondant à des plans en position de Bragg restent visibles pendant la suite de la

solidification (Figure 6.d) bien qu'on observe une évolution du contraste au cours de la solidification.

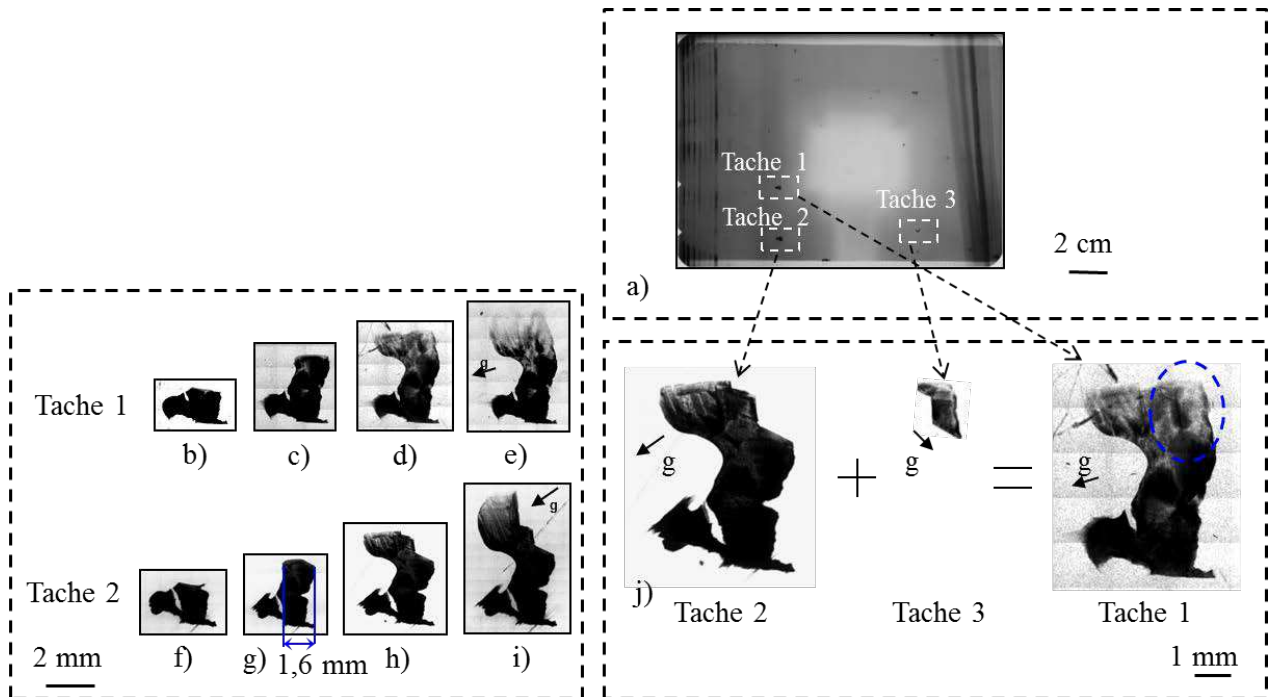


Chapitre 4 Fig. 7: a) Film topographique au cours de la solidification d'un échantillon de silicium de haute pureté (6N) dans un gradient thermique de $G = 16 \text{ K/cm}$ et avec une vitesse de refroidissement appliquée sur les deux résistances $K = 0,2 \text{ K/min}$ à t_0 . Evolution temporelle de l'une des taches au cours de la solidification b) t_0 , c) $t_0 + 12 \text{ min}$, d) $t_0 + 18 \text{ min}$, e) $t_0 + 25 \text{ min}$, f) $t_0 + 49 \text{ min}$. g est le vecteur de diffraction.

La figure 7 présente un film topographique enregistré pendant une expérience de solidification d'un échantillon de silicium de haute pureté sous un gradient de 16 K/cm avec une vitesse de refroidissement de $0,2 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants. Le cercle sur la figure 7.a indique une tache de diffraction correspondant à l'un des grains de l'échantillon. Plusieurs films topographiques comme celui présenté figure 7.a sont enregistrés au cours d'une même expérience et, on peut observer au microscope l'évolution temporelle de la tache identifiée figure 7.a et donc, la diffraction due à un plan de ce grain (Figures 7.b à f). Le grain se développe vers le haut dans le sens du gradient. Pendant la période de stabilisation thermique et avant l'application du refroidissement (Figure 7.a), la tache présente un aspect zébré (lignes blanches et noires dans la tache) ce qui signifie que des domaines du grain n'ont pas la même orientation et ont diffracté à une autre position. Au cours de la croissance du grain vers le haut, les zones blanches se développent dans la continuité de celles présentes dans le solide préexistant (Figures 7.c & d). De nouvelles lignes se forment pendant la croissance (Cercles pointillés sur les figures 7.e & f) suivant la même inclinaison.

La figure 8.a présente l'image enregistrée au microscope optique d'un échantillon de silicium de haute pureté après une expérience de solidification sous un gradient thermique de 30 K/cm avec une vitesse de refroidissement de $0,5 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants. Les grains ont été révélés par une attaque acide de type CP4. Le rectangle bleu encadre l'un des grains de l'échantillon comportant de nombreuses macles. La technique de Laue a été utilisée pour déterminer l'orientation de ce grain. Le diagramme de Laue correspondant sur lequel on a superposé en rouge l'indexation déterminée à l'aide du logiciel OrientExpress est présenté figure 8.b. Le grain a une orientation (100) dans la direction perpendiculaire au plan de la feuille. La projection stéréographique correspondant à l'indexation est donnée sur la figure 8.c. Sur la figure 8.a, on mesure l'angle que font les plans de macles avec la verticale du grain. Cet angle de 45° est reporté sur la projection stéréographique (Figure 8.c), la tache correspondant à cet angle est celle de l'orientation (111).

La figure 9 présente une image radiographique enregistrée pendant une expérience de solidification d'un échantillon de silicium UMG sous un gradient de 16 K/cm avec une vitesse de refroidissement de 0,4 K/min appliquée sur les deux éléments chauffants. La technique de traitement des images utilisée pour cette image est la division d'images successives qui révèle en détails l'interface solide-liquide. Au niveau de l'interface, on observe un sillon formé de deux facettes (Figure 9.b).



Chapitre 4 Fig. 10: Résultats de topographie X pour un échantillon de silicium UMG solidifié sous un gradient thermique de 16 K/cm et une vitesse de refroidissement $K = 0,4$ K/min appliquée sur les deux éléments chauffants à t_0 (Figure 9). a) Film topographique à l'instant t_0 et position de trois taches (1-3) topographiques. Séquences de l'évolution de deux taches correspondant à deux diffractions d'un même grain pendant la solidification; b & f) $t = t_0$, c & g) $t = t_0 + 8$ min, d & h) $t = t_0 + 15$ min, e) & i) $t = t_0 + 22$ min, j) Image des taches 1 à 3 à l'instant $t_0 + 15$ min. g est le vecteur de diffraction.

La figure 10 présente les résultats de topographie enregistrés pendant la même expérience que celle présentée figure 9 (Si UMG, $G = 16$ K/cm, $K = 0,4$ K/min appliquée sur les deux éléments chauffants). Les figures 10 b à e et f à i sont les images de l'évolution de deux taches de diffraction respectivement tache 1 et tache 2 correspondant au même grain. A partir du talon solide (Figures 10.b & f), la croissance se fait vers le haut dans le sens du gradient thermique. En plus de la croissance verticale, le grain subit une croissance latérale sur la gauche (Figures 10.d & e et h & i) qui correspond à la forme de l'échantillon de silicium (Figure 9). A partir des instants correspondant aux figures 10.d & e et h & i, la morphologie des taches 1 & 2 est différente. Sur la tache 2 (Figures 10.h & i), le grain a une forme en escalier sur sa droite. Quant à elle, la tache 1 (Figures 10.d & e) est plus développée sur la droite. L'image du film topographique (Figure 10.a) montre l'emplacement des taches 1 et 2 ainsi que d'une troisième tache de diffraction (Tache 3) complémentaire de la tache 2 pour former la tache 1 comme on le voit sur la figure 9.j.

Discussion [119]:

La macle est une association, suivant des lois géométriques bien précise de deux cristaux ou grains de même nature. Les grains qui forment la macle ont en commun un réseau appelé réseau de macles [120]. Dans nos expériences, nous ne mettons pas en évidence le réseau de macles mais des grains en position de macles. Cependant, par soucis de simplification, j'emploie parfois dans le texte macle en lieu et place de grain en position de macle.

Nos observations montrent que le phénomène de maclage se produit suivant deux mécanismes différents dans nos expériences:

- Formation de macles successives au niveau d'une facette d'un sillon de joints de grains au cours de la croissance du grain initial sans pour autant perturber la croissance de celui-ci,
- Nucléation d'un grain en position de macle dans un sillon de joint de grains. Ce grain entre en compétition avec le grain initial.

Sur la figure 6, le contraste noir correspond à des macles qui sont en position de diffraction (condition de Bragg) pour l'énergie sélectionnée en radiographie (17,5 keV). Par conséquent, il y a une extinction du contraste correspondant à ces plans dans le faisceau transmis. Ces plans correspondent à des macles. Les macles apparaissent de façon répétitive au cours de la croissance et elles ont la même orientation dans un même grain. Les macles de ce type (répétitives ou successives) sont observées couramment dans les lingots [14, 121]. Dans le mode radiographie (figure 6), le phénomène de maclage peut se produire dans d'autres grains de l'échantillon de silicium mais si ces macles n'ont pas une orientation qui satisfait les conditions de Bragg pour l'énergie utilisée, on ne les voit pas sur les images radiographiques. Par conséquent, figure 6, d'autres grains en position de macle sont peut-être présentes dans l'échantillon. La radiographie apporte des informations essentielles concernant la formation de ces macles. Elles naissent à l'interface solide/liquide au sommet de la zone protubérante de solide dans le liquide (Figure 6.a). Or, dans la littérature, l'origine de ces macles [121, 122] fait encore l'objet de débats. Nous montrons ici que certains types de macles et notamment, les macles successives observées très fréquemment dans les lingots industriels, se forment à l'interface solide-liquide au niveau d'une facette en croissance et pas sous l'interface au moment du refroidissement du solide. Avec l'information dynamique de la radiographie X, nous montrons également que les macles se forment successivement au fur et à mesure de l'avancée du front de solidification avec la même orientation cristallographique (démonstré par le fait qu'elles diffractent à la position de Bragg) avec un espacement quasiment régulier et, également avec le même angle par rapport à la direction verticale dans un même grain. Nous avons également mis en évidence la germination des macles sur les facettes des sillons de joints de grains (agrandissement figures 6.a & b). En l'occurrence, dans l'expérience présentée figure 6, le grain initial continue sa croissance et les grains en position de macle germent sur la facette du sillon au niveau du joint de grains entre ce grain initial et son voisin. Grâce à des mesures complémentaires d'orientation cristallographique par Laue post-mortem, nous avons pu montrer pour plusieurs expériences dont un exemple est présenté figure 8 que l'orientation des facettes sur lesquelles les macles se forment est l'orientation (111). Cette orientation est l'orientation des facettes dans le silicium [107]. Nous avons observé ce comportement et ce mécanisme dans de nombreuses expériences, pour différents taux de refroidissement et pour toutes les qualités de silicium étudiées. Cependant, nous avons observé ce phénomène de formation de macles successives plus fréquemment dans le silicium de haute pureté (6N). En effet, la formation d'une macle permettrait de relâcher les

contraintes avec un faible coût énergétique. Dans les matériaux chargés en impuretés, ce phénomène peut se produire mais les impuretés peuvent être à l'origine d'autres mécanismes de germination de grains encore moins coûteux énergétiquement. Il est important de noter que le contraste de diffraction évolue au cours de la croissance au niveau des macles ce qui suggère une évolution des contraintes au cours du refroidissement sous l'interface.

Nous avons complété cette étude des macles multiples successives avec la topographie (Figure 7) technique pour laquelle les macles sont mises en évidence sur une tache même lorsqu'elles ne sont pas en position de Bragg contrairement à la radiographie X. L'aspect hachuré de l'image topographique, d'un grain (Figure 7) est symptomatique de macles successives. Les zones absentes dans le grain correspondent à des macles désorientées en comparaison de l'orientation principale de la tache de diffraction du grain observé. Dans ce cas, les macles diffractent à d'autres positions sur le film topographique. Sur la tache commune, on doit retrouver l'intégralité de l'image du grain avec les macles qu'il comporte. La topographie confirme que les macles sont formées à l'interface solide/liquide à partir des macles encore présentes dans le solide initial non fondu mais également indépendamment du talon solide initial (Voir cercle figure 7.b). De plus, leur orientation par rapport à l'axe de solidification dans un même grain reste toujours la même ce qui confirme qu'elles germent sur la même facette d'un grain. Dans le cas de ce mécanisme de formation des macles, la croissance du grain au sein duquel les macles se forment semble peu perturbée comme nous l'avons vu également en radiographie X.

Ce type de macle n'est pas rédhibitoire pour les propriétés photovoltaïques car, leur germination semble minimiser la formation des dislocations dans les grains où on les observe [14] et ne gêne pas la croissance du grain initial.

L'autre mécanisme de maillage est présenté figure 9. Au cours de cette expérience, nous observons le creusement de façon répétitive d'un sillon de joint de grains au niveau de l'interface solide-liquide par radiographie X. La topographie permet de confirmer qu'il s'agit bien du sillon de deux grains distincts qui n'apparaissent donc pas ensemble sur les images topographiques. En effet, la largeur du grain (Tache 2 sur la figure 10.g) est mesurée sur la topographie, sa valeur est d'environ 1,6 mm et, on remarque une facette au niveau de l'interface sur sa droite. Cette facette correspond à la facette de gauche du sillon figure 9.b. La largeur de 1,6 mm mesurée sur la topographie X est comparable à la distance mesurée entre la position du sillon et la gauche de l'échantillon (1,3 mm) sur la radiographie (Figure 9). Les images topographiques sont déformées à cause des contraintes et donc des déformations subies par les grains ce qui peut expliquer la faible différence de valeur mesurée entre l'image radiographique et l'image topographique.

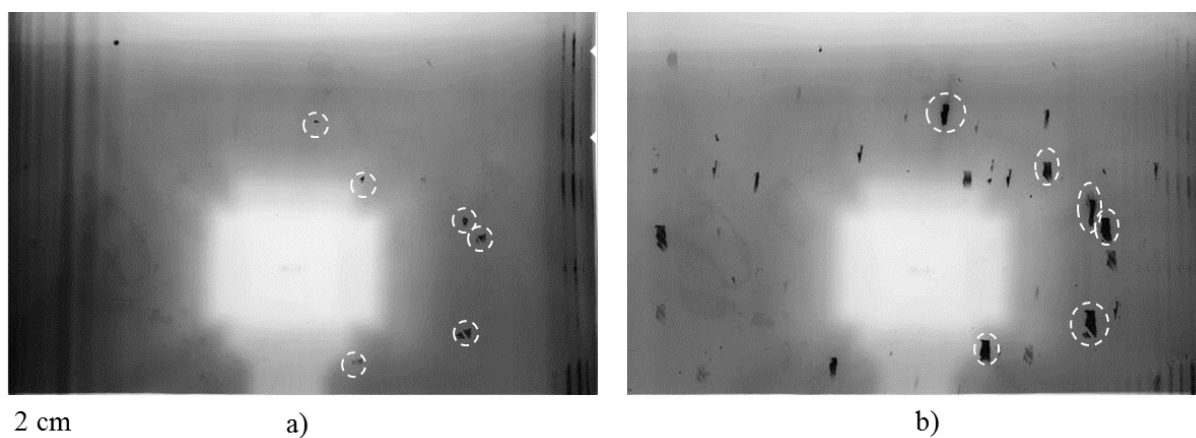
Les taches de diffraction 1 & 2 suivies temporellement sur la figure 10 correspondent donc au grain situé à gauche de l'échantillon de silicium au cours de cette expérience. Leur position sur le film topographique est indiquée sur la figure 10.a. Lorsqu'on suit la croissance des grains sur les taches 1 et 2 (Figure 10), on observe la croissance verticale attendue puis une croissance latérale sur la gauche due à la forme particulière de l'échantillon de silicium au cours de cette expérience (Figure 9). Par contre, l'image de la tache 1 est plus large latéralement vers la droite si on la compare à l'image de la tache 2 (Figures 10.d & h et 10.e & i). Le grain complémentaire à la tache 2 pour former la tache 1 se trouve à la position 3 (Figure 10.a & j). Cette observation signifie que les grains observés sur les taches 2 & 3 ont un plan commun donc que le grain de la tache 3 est en position de macle par rapport au grain de la tache 2. Donc, le grain en position de macle avec le grain tache 2 figure 9 diffracte à une autre position du film (Tache 3 Figure 10) mais se trouve également sur la tache commune (Tache 1 Figure 10). La particularité de ce grain en position de macle (Tache 3 Figure 10) est

sa forme en V à sa base. Cette forme correspond à la forme du sillon du joint de grains sur l'image de radiographie (Figure 9) ce qui suggère que ce grain a germé dans le sillon.

Dans la suite de la solidification, le grain tache 2 et le grain en position de macle (Tache 3) entrent en compétition de croissance. La conséquence est la forme particulière du grain caractérisée par des marches après la germination du grain en position de macle (Tache 2 Figures 10.h & i). La formation de ces marches indique que le grain de départ croît verticalement suivant le gradient thermique mais, que sa croissance latérale vers la droite est bloquée durant certaines périodes par le grain en position de macle. Par conséquent, pendant la séquence de croissance de l'échantillon enregistrée, le grain en position de macle prend latéralement le dessus sur le grain de départ (Figure 10). Au moins deux mécanismes peuvent favoriser la croissance d'un grain par rapport à l'autre et conduire à une compétition entre les grains: leur orientation cristallographique et les conditions locales de solidification qui varient d'autant plus dans cette expérience que la largeur de l'échantillon n'est pas uniforme.

Du point de vue des propriétés, ce type de macles a un effet néfaste en augmentant le nombre de grains et, en diminuant leur taille moyenne. Ce phénomène est identique et à relier à celui qui se produit sur les facettes des bords de lingots de silicium dit quasi monocristallin où de nouveaux grains maclés germent au cours de la croissance [15] et entrent en compétition avec le ou les grains initiaux. Nous avons d'ailleurs observé la germination de nouveaux grains aux limites latérales des échantillons de silicium que nous avons solidifiés. Ces grains qui germent sur les bords empêchent la croissance d'une orientation cristallographique privilégiée sur toute la hauteur de l'échantillon et par extension du lingot.

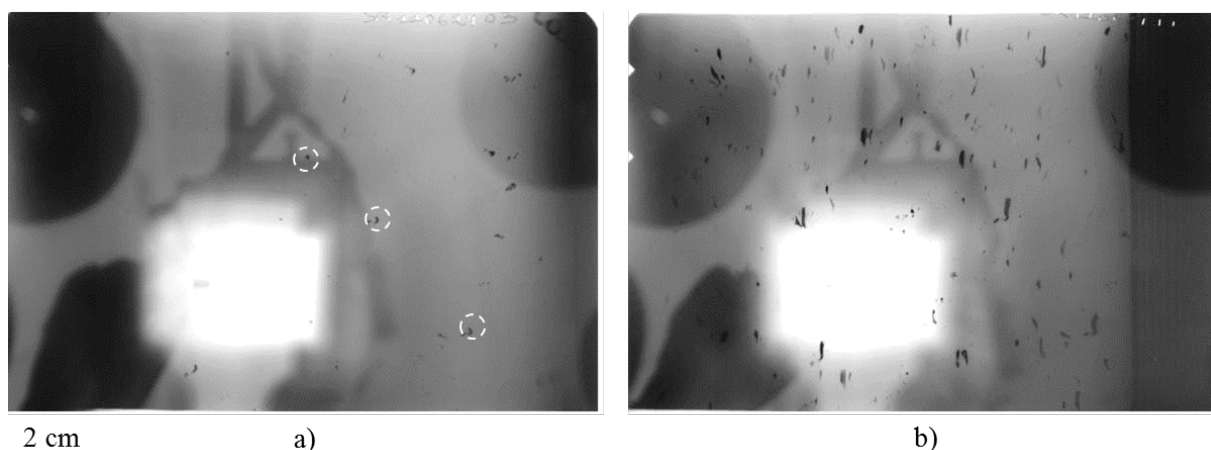
4.3 SILLONS ET FORMATION DES NOUVEAUX GRAINS:



Chapitre 4 Fig. 11: Film de topographie X pour un échantillon de silicium SoG PSX67 solidifié sous un gradient thermique de 10 K/cm et une vitesse de refroidissement $K = 0,2$ K/min appliquée sur les deux éléments chauffants à t_0 , Vitesse de croissance mesurée: $3,3 \mu\text{m/s}$. a) Etat initial, $t = t_0$, b) Fin de la solidification, $t = t_0 + 26$ min.

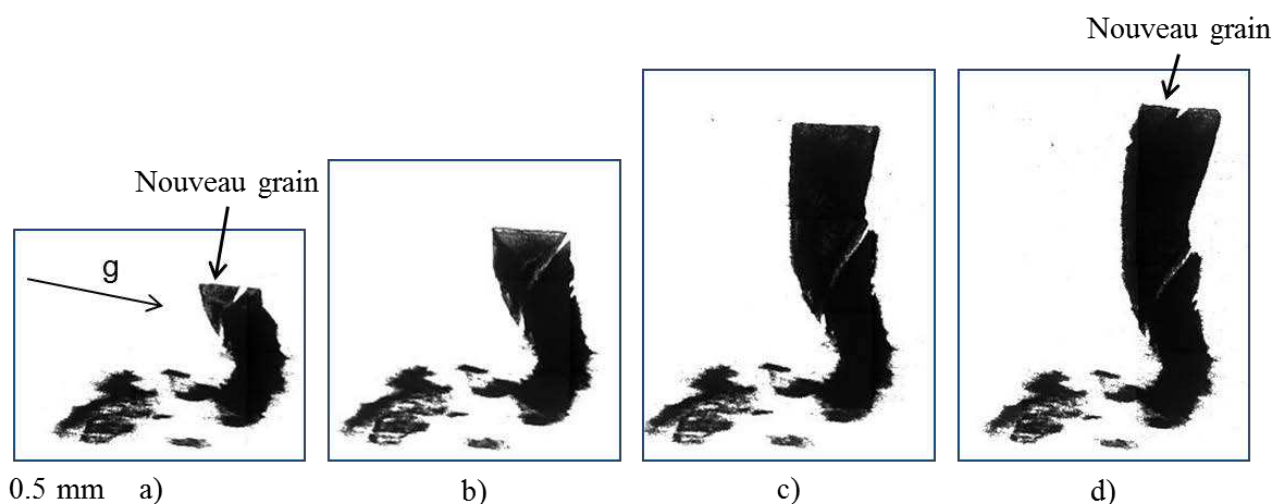
La figure 11 présente des films topographiques enregistrés pendant une expérience de solidification de Si de type PSX67 (qualité solaire avec un ajout volontaire de carbone : de 30 à 50 ppm pds et avec une faible concentration en oxygène < 7 ppm pds) avec un gradient thermique de 10 K/cm et une vitesse de refroidissement de 0,2 K/min appliquée sur les deux éléments chauffants. La figure 11.a présente l'état initial obtenu après refusion partielle de l'échantillon puis stabilisation. On voit deux ou trois grains de grande taille (Cercles sur la figure 11.a). Il est important de rappeler qu'en topographie un grain unique possède plusieurs taches de diffraction sur le film topographique. A la fin de la solidification (Figure 11.b), on

observe principalement la croissance des grains initiaux. Seuls quelques nouveaux grains ont germé au cours de la croissance.



Chapitre 4 Fig. 12: Film de topographie X pour un échantillon de silicium SoG PSX25 solidifié sous un gradient thermique de 12 K/cm et une vitesse de refroidissement $K = 0,2$ K/min appliquée sur les deux éléments chauffants à t_0 , Vitesse de croissance mesurée: $2,8 \mu\text{m/s}$. a) Etat initial, $t = t_0$, b) Fin de la solidification, $t = t_0 + 45$ min.

La figure 12 présente des films topographiques enregistrés pendant une expérience de solidification de Si de type PSX25 (qualité solaire avec un ajout volontaire de carbone : de 14 à 120 ppm pds et avec une concentration en oxygène : de 27 à 76 ppm pds) avec un gradient de 12 K/cm et une vitesse de refroidissement de 0,2 K/min appliquée sur les deux éléments chauffants. La figure 12.a présente l'état initial sur lequel on observe quelques grains de grande taille comme pour la figure 11.a. A la fin de la solidification (Figure 12.b), seul un grain semble être issu des germes initiaux et, on observe la croissance de nombreux grains de petite taille (millimétriques) qui ont une forme en V à leur base. L'une de ces taches est agrandie figure 13.



Chapitre 4 Fig. 13: a) Suivi d'une tache de diffraction pour un échantillon de silicium SoG PSX25 solidifié sous un gradient thermique de 12 K/cm et une vitesse de refroidissement $K = 0,2$ K/min appliquée sur les deux éléments chauffants à t_0 , Vitesse de croissance mesurée: $2,8 \mu\text{m/s}$. a) t_0 , b) $t_0 + 4$ min, c) $t_0 + 12$ min, d) $t_0 + 16$ min.

La figure 13 présente l'évolution temporelle d'une tache sur le film topographique figure 12 (Si PSX25, $G = 12 \text{ K/cm}$, $K = 0,2 \text{ K/min}$ appliquée sur les deux éléments chauffants). Sur la figure 13.a, un grain en forme de V à la base apparaît et commence à croître verticalement. Ce grain qui a germé pendant l'expérience prend le dessus sur le grain présent initialement et se développe verticalement. Après plusieurs minutes de croissance (Figure 13.d), un autre grain en forme de V germe en haut.

Discussion [116, 119, 123]:

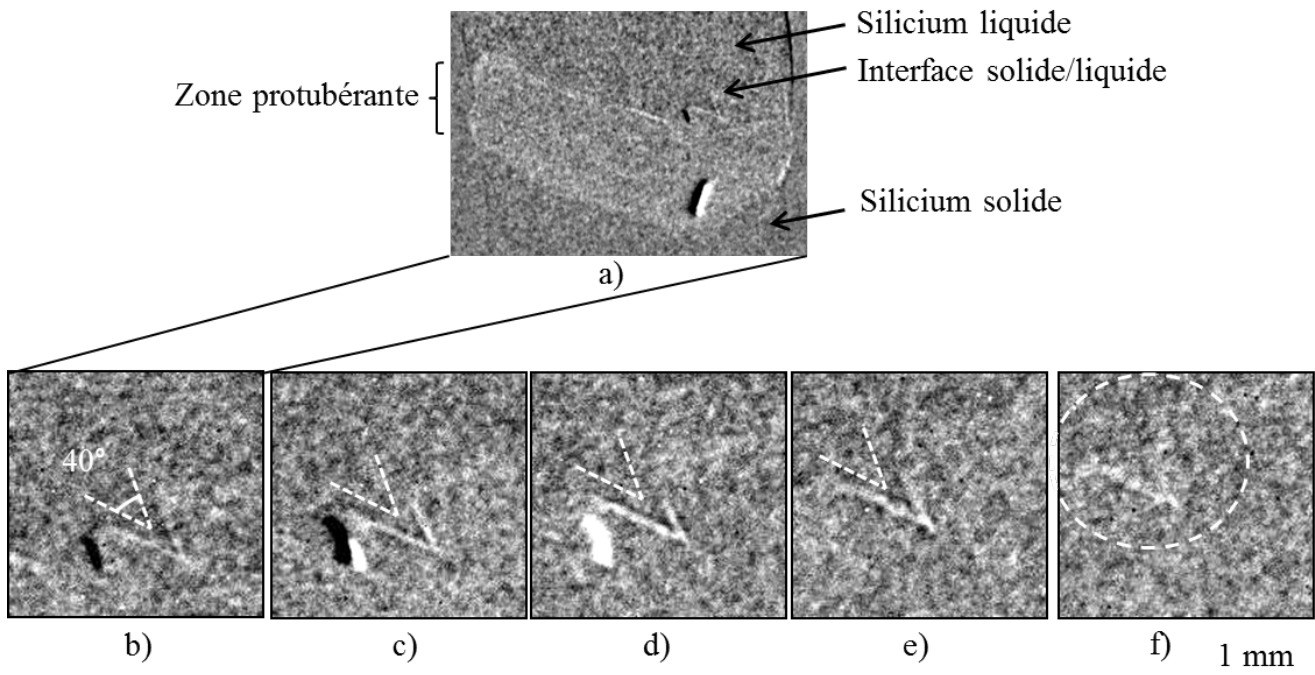
Comme le montrent les figures 11 et 12, la qualité de silicium utilisée a un effet prédominant sur le nombre de grains dans le lingot final. Dans nos expériences, nous avons pu observer qu'en présence de carbone dans du silicium de qualité solaire, peu de grains supplémentaires par rapport aux grains initiaux étaient formés au cours de la croissance (Figure 11). Inversement dans du silicium de qualité solaire chargée en C et en O, nous avons observé de nombreuses nucléations supplémentaires qui apparaissent au cours de la croissance (Figure 12) dans des conditions identiques. L'origine de ces grains est très certainement la germination sur des impuretés ou des précipités dans les sillons de joints de grains. Compte tenu de la comparaison entre les expériences figures 11 et 12, le carbone seul ne semble pas être suffisant pour provoquer la germination de grains de silicium dans les sillons. Par contre, dans le cas où du carbone et de l'oxygène sont présents, des précipités de C et O pourraient servir de sites de germination à de nouveaux grains [124]. Récemment, nous avons mesuré la composition locale en C et O au niveau des sillons pour l'une de ces expériences. Une concentration significativement plus élevée en C et O (10^{20} - 10^{21} at/cm^3) par rapport à la composition nominale (10^{17} - 10^{18} at/cm^3) est mesurée au niveau des pointes de ces grains en V ce qui est un élément supplémentaire en faveur d'une germination sur des précipités de C et O.

Ces nouveaux grains que ce soit dans ces expériences ou dans d'autres qualités de silicium présentent une forme caractéristique en V (Figure 13) directement liée à la forme des sillons des joints de grains. Dans nos expériences, on observe le creusement répétitif des sillons entre les joints de grains. La germination dans ces sillons qui sont des lieux d'accumulation d'impuretés et également de surfusion plus élevée serait un des mécanismes qui expliquerait le remplissage apparent du sillon suivi par la suite d'un nouveau creusement au cours de la croissance. Par la suite, ces nouveaux grains entrent en compétition de croissance avec les grains préexistants et modifient complètement la structure de grains finale.

4.4 PERSPECTIVES DU CHAPITRE 4

Ce travail sur la solidification du silicium a débuté dans l'équipe MCA avec le projet ANR Si-X en janvier 2009. Les premières expériences d'imagerie X synchrotron qui ont suivi la mise au point du dispositif ont pu être réalisées début 2011. Nous avons démontré que ce dispositif était capable de caractériser la solidification du silicium multi-cristallin photovoltaïque par radiographie et topographie pendant la solidification. Dans le cadre du projet Si-X, plusieurs qualités de silicium pour les applications photovoltaïques (métallurgique MG, métallurgique amélioré UMG et solaire SoG) ont été étudiées. L'exploitation scientifique des résultats a d'ores et déjà permis de mettre en évidence des mécanismes importants concernant les grains et la formation des grains en position de macle dans le silicium.

D'un point de vue technique, le creuset utilisé pendant ces expériences (nitrure de bore) n'a pas gêné la caractérisation de la structure de grains dans le silicium multi-cristallin car, la structure de grains n'est pas modifiée par la présence de bore provenant du creuset. Tout au plus, le bore peut former des précipités avec d'autres impuretés ce que nous prévoyons de vérifier avec des mesures chimiques locales. L'inconvénient majeur du bore ne se situe pas dans la modification de la solidification et de la structure de grains mais plutôt dans l'impact du bore sur les propriétés électriques des échantillons. Notre objectif principal reste la caractérisation de la structure de grains. Cependant, nous souhaitons également relier cette structure de grains aux propriétés électriques des matériaux autant que possible. Récemment, nous avons donc commencé un travail de mesure de ces propriétés sur ces échantillons. La chute importante (3 ordres de grandeur) de la résistivité que nous avons mesurée entre le matériau brut et les échantillons solidifiés dans notre dispositif démontre la diffusion importante de bore. En conséquence, les mesures de durée de vie par méthode μ PCD [125] ne sont possibles que sur les échantillons bruts. Nous sommes donc actuellement en train d'explorer la possibilité d'utiliser d'autres matériaux pour les creusets dans ces expériences. Ces creusets devront éviter toute fuite du silicium dans le four, ne pas gêner l'utilisation des techniques de radiographie et de topographie X (absorption et diffraction) et avoir le moins d'impact possible sur la croissance du silicium et sur ses propriétés électriques.



Chapitre 4 Fig. 14: Evolution d'un sillon facetté/facetté pendant la solidification de silicium 6N avec un gradient thermique de $G = 7,4 \text{ K/cm}$, une vitesse de refroidissement appliquée sur les deux éléments chauffants $K = 1 \text{ K/min}$ à t_0 , vitesse de croissance moyenne de l'interface $V_g = 22,7 \text{ }\mu\text{m/s}$. Division pixel par pixel des images successives. a) Image globale de l'interface solide-liquide. Agrandissement au niveau d'un sillon : b) t_0 ; c) $t_0 + 5 \text{ s}$; d) $t_0 + 10 \text{ s}$; e) $t_0 + 15 \text{ s}$; f) $t_0 + 20 \text{ s}$.

Une étude systématique importante est en cours sur les sillons entre les joints de grains. En effet, nous avons pu observer à l'interface en radiographie le creusement de sillons entre les joints de grains. Par la suite, la profondeur du sillon diminue puis il se recrée à nouveau. Les mécanismes identifiés de diminution de la profondeur du sillon sont principalement : la croissance conjointe des deux facettes du sillon lorsque le joint de grains est formé de deux facettes (Figure 14) ou, la germination d'un grain ou, la germination d'une macule dans ce

sillon. Les grains ainsi formés entrent en compétition avec les grains préexistants. La mesure de la profondeur des sillons donc de la surfusion dans le sillon en fonction des différentes qualités de silicium et des paramètres de solidification est également en cours. Ce travail a fait l'objet d'une publication qui vient d'être acceptée [123].

De plus, nous effectuons des mesures et analyses complémentaires sur les échantillons issues des expériences dont certains résultats ont été discutés plus haut. Ces analyses complémentaires consistent en la réalisation de diagrammes de Laue systématiquement sur les échantillons post-mortem afin de faciliter l'indexation des grains rendue difficile sur les topographies *in situ* compte tenu du faible nombre de taches de diffraction. Ces mesures complémentaires ont d'ores et déjà permis de confirmer la présence de macles et d'en donner les orientations ainsi que les orientations des facettes observées en radiographie et en topographie.

Des mesures chimiques locales sont également prévues afin de déterminer l'origine des nombreuses germinations notamment par exemple dans le cas de la figure 12.

Enfin, une analyse plus systématique des dendrites de silicium et notamment de leur morphologie, de la surfusion et de la vitesse de croissance ainsi que des morphologies particulières comme les aiguilles (Figure 4.b), dont l'existence est discutée par Fujiwara *et al.*, [126] est prévue.

D'autres expériences ont été réalisées en novembre 2012 pour compléter la compréhension de la formation et de la croissance des grains dans ce matériau. Notamment, les mécanismes de germination des macles restent encore à mieux élucider. Enfin, dans le cadre du projet Si-X, des modélisations de la structure de grains dans le silicium multi-cristallin ont été entreprises mais il apparaît que dans ce matériau de nombreuses informations nécessaires à la modélisation quantitative ne sont pas disponibles ou sont incomplètes comme par exemple la loi de croissance et les mécanismes de formation des grains en position de macle dans le silicium. Nos expériences tentent d'apporter des éléments de réponse à ces questions. Avec cet objectif, nous avons effectué des expériences dédiées à la mesure de la surfusion en fonction de la vitesse de croissance qui sont en cours d'analyse.

Chapitre 5 : Projets en cours et études à venir

Mon projet scientifique à l'IM2NP au sein de l'équipe MCA est d'un intérêt actuel pour la mise en évidence des mécanismes fondamentaux de solidification, la validation des modèles et simulations numériques et les applications en métallurgie et du silicium pour les applications photovoltaïques. Ma recherche principalement expérimentale s'articule autour de deux axes de travail: d'une part, la caractérisation *in situ* et en temps réel de la solidification; d'autre part, le contrôle actif, qui est un des points critiques pour l'amélioration des procédés.

Les thématiques listées ci-dessous sont celles que je souhaite plus particulièrement traiter dans les années à venir et qui ont également été identifiées comme des priorités de l'équipe MCA:

Caractérisation in situ et en temps réel de la solidification d'alliages métalliques

Nous utilisons la caractérisation par imagerie X synchrotron depuis quelques années. Grâce à cette technique, nous avons pu mettre en évidence des phénomènes physiques entrant en jeu dans des processus clefs comme la transition colonnaire équiaxe. Cependant, certains phénomènes et mécanismes associés à la transition colonnaire équiaxe restent encore à éclaircir et je souhaite consacrer une partie de mes recherches à la compréhension de ces mécanismes.

Notamment, certains mécanismes du phénomène de fragmentation dans les alliages non affinés sont encore imparfaitement connus et maîtrisés. Les techniques d'imagerie X synchrotron de radiographie et de topographie pourront certainement apporter des éléments nouveaux sur la dynamique du phénomène, l'interaction avec les contraintes et l'effet du champ de soluté adjacent.

Nous avons également pour projet d'étudier l'effet de l'application d'un champ électromagnétique pendant la solidification dans le dispositif de caractérisation par imagerie X synchrotron. Ces travaux ont commencé et permettront de mieux comprendre l'interaction de la convection forcée avec le développement des microstructures et des ségrégations dans les lingots. Ces travaux viendront compléter parfaitement mes recherches concernant l'effet d'un champ externe ou de l'absence de convection dans des échantillons massifs.

De plus, l'équipe est impliquée dans le développement d'un dispositif de radiographie X en microgravité. Des expériences sont en cours et prévues dans les années à venir. Elles permettront par comparaison avec nos travaux en présence de gravité de déterminer l'effet de la convection naturelle et de la sédimentation sur les microstructures et sur les ségrégations.

Enfin, l'équipe a récemment fait l'acquisition d'un dispositif de laboratoire pour la radiographie X de la solidification d'alliages à base aluminium. Ce dispositif nous permettra de nous affranchir de la contrainte de demande de temps faisceau à l'ESRF pour un certain nombre de thématiques. Dans le cadre de la collaboration avec le Brésil, des expériences concernant les alliages ternaires utilisés pour leurs propriétés tribologiques sont programmées dans ce dispositif. Cependant, pour les thématiques qui requièrent l'utilisation de la topographie (étude des contraintes, de l'orientation cristallographique, de la qualité cristalline,...) et pour les mesures de champ de soluté, nous devrons toujours utiliser le rayonnement synchrotron.

Les perspectives ci-dessus concernent les alliages à base aluminium (température liquidus autour de 650 °C) ou à point de fusion inférieur qui peuvent être solidifiés dans le four historique développé par J. Gastaldi du CRM-CN et par l'équipe MCA en collaboration avec l'ESRF. Récemment, dans le cadre du projet Si-X, nous avons donc mis au point un dispositif

complètement nouveau qui nous permet d'envisager de caractériser la solidification par radiographie et topographie X synchrotron de matériaux jusqu'à 1800 °C.

Un nouveau projet concerne notamment la solidification des superalliages. Les premiers essais préliminaires de solidification de superalliages en collaboration avec le Rolls Royce Institute de Cambridge (Juin 2011) sont prometteurs et nous permettent d'envisager l'étude des phénomènes de désorientation au cours de la solidification des superalliages [41]. Ces phénomènes sont cruciaux pour la maîtrise de la solidification de ces alliages dans la perspective de la fabrication des aubes de turbine. Par conséquent, ce projet de collaboration nous ouvre des perspectives scientifiques très intéressantes.

Nous sommes également en discussion avec l'entreprise SNECMA et le laboratoire CEMEF Mines ParisTech pour un projet de recherche concernant la solidification et la modélisation de la solidification des superalliages.

Dans ce dispositif, nous envisageons également de travailler sur la caractérisation de la solidification d'autres matériaux d'intérêt industriel comme les aciers.

Etude paramétrique de la formation de la structure de grains et des ségrégations. Effets de la convection naturelle et forcée par un champ externe : Rotations alternées (ACRT) et expériences en microgravité

Ces travaux comportent un aspect expérimental associant les résultats des expériences de solidification caractérisées par imagerie X dont les perspectives sont décrites ci-dessus mais aussi des expériences plus classiques dans un four de type Bridgman au laboratoire. En effet, les deux types d'expériences sont complémentaires grâce à leur différence d'échelle et du fait de l'existence d'un système de rotation alternée sur le four Bridgman de laboratoire.

De plus, dans le cadre de notre collaboration avec l'UNICAMP et l'UFSCar au Brésil, nous pourrions comparer nos résultats expérimentaux à des expériences réalisés dans des fours plus proches de conditions de fonderie classiques et notamment atteindre des conditions de vitesses de refroidissement plus élevées. Dans les années à venir, je souhaite renforcer cette collaboration en proposant des demandes dans des programmes qui nous permettraient de financer des étudiants en thèse.

Une part non négligeable de mes activités dans le domaine de l'étude de l'effet de la convection sera également dévolue à la poursuite de l'analyse qualitative et quantitative des expériences en microgravité qui viennent d'être achevées dans le cadre du projet CETSOL et des expériences qui suivront.

Simulation de la structure de grains et des meso-macro ségrégations

Au cours des dernières années, je me suis particulièrement impliquée dans la simulation en utilisant un code stochastique de la structure de grains et des ségrégations dans les expériences de solidification des alliages à base aluminium. Ce travail est effectué à l'IM2NP en utilisant le logiciel XR2Sol+CAFE développé au CEMEF MinesParisTech par Charles-André Gandin et se fait en collaboration étroite avec ce laboratoire. Nous pouvons maintenant modéliser de façon quantitative certaines expériences de solidification des alliages Al-Ni 3,5 %pds et Al-Si 7,0 %pds. Le croisement entre les analyses expérimentales et les simulations commence à porter ces fruits et je souhaite poursuivre ces recherches dans les années à venir. En janvier 2012, nous avons recruté le Dr. Liu en post-doctorat pour deux ans dans le cadre du projet CETSOL. Cette chercheuse que je co-encadre avec Charles-André Gandin du CEMEF a pour mission la caractérisation des expériences microgravité du projet CETSOL et leur simulation en collaboration avec le CEMEF. La comparaison des expériences aux simulations 2D est très satisfaisante qualitativement. Cependant, comme je l'ai indiqué dans

le chapitre 3, il apparaît que des simulations 3D seront nécessaires afin de pouvoir mener à bien des comparaisons quantitatives. Ces simulations 3D devront être accompagnées de caractérisations expérimentales également 3D. Dans ce but, nous sommes en contact avec P. Voorhees de la NorthWestern University spécialiste d'analyses 3D à partir de coupes en série d'échantillons métalliques. Cette équipe a annoncé son intention de participer à la continuation du projet CETSOL si ce projet est reconduit. De plus, deux groupes américains spécialistes des modèles de simulations (C. Beckermann, University of Iowa et A. Karma, Northeastern University, Boston) viennent de rejoindre le projet CETSOL et souhaitent simuler les expériences réalisées dans le projet. Ces collaborations devraient se développer dans les années à venir.

Enfin, depuis 2009, j'ai mis en place et développé dans l'équipe une nouvelle thématique et je continuerai à m'impliquer plus particulièrement dans les travaux concernant cet axe de recherche dans les années à venir :

Caractérisation et compréhension de la cristallisation du Silicium photovoltaïque: imagerie X synchrotron.

Les résultats du projet Si-X montrent des phénomènes intéressants de développement des grains, de formation des macles et d'effet des différentes qualités de silicium. L'étude de ce matériau nous permet de caractériser de manière approfondie la croissance facettée ainsi que le maillage entre autres questions majeures. De plus, ce projet nous a permis d'élargir nos travaux à un matériau d'intérêt sociétal essentiel, le silicium pour les applications photovoltaïques, et dont la solidification présente également des particularités scientifiques passionnantes. Je souhaite poursuivre mes recherches sur la solidification de ce matériau au-delà de la fin du projet Si-X (décembre 2012).

Récemment, nous avons commencé une collaboration avec l'entreprise Solarforce qui fabrique des rubans de silicium. Pour ce projet, nous travaillons sur la solidification du silicium multi-cristallin en nous focalisant sur les mécanismes spécifiques à leur procédé de solidification en rubans et sur leur amélioration.

Enfin, suite à la réunion finale du projet Si-X, la thématique de la solidification du silicium dit quasi monocristallin a été proposée pour un nouveau projet. Récemment, la recherche a été réactivée pour obtenir des lingots de silicium monocristallin ou quasi monocristallin (quelques grains) en utilisant des procédés de solidification directionnelle classiques [15, 118, 127] avec l'avantage évident d'augmenter le rendement photovoltaïque en comparaison au silicium multi-cristallin tout en réduisant les coûts d'élaboration par rapport aux méthodes classiques d'élaboration de lingots monocristallins comme la technique Czochralski. L'obtention d'une croissance quasi monocristalline requiert soit la formation d'une dendrite qui sélectionne une orientation dans le bas du creuset [127] ou d'utiliser un germe [15, 118]. Cependant, la question majeure est de pouvoir contrôler la croissance du ou des grains sur tout le volume du lingot en évitant la germination et le développement sur les bords de grains indésirables supplémentaires [15, 118] et la formation de défauts afin d'obtenir les propriétés photovoltaïques requises. Pour atteindre cet objectif, une connaissance approfondie des mécanismes de formation des grains et des défauts est indispensable.

Diffusion scientifique

Enfin, je souhaite poursuivre mes activités de diffusion scientifique que se concrétise par des interventions dans les classes de collèges et lycées axées sur la découverte de mes activités de recherche mais aussi, du métier de chercheur et des métiers d'accompagnement et les élargir à d'autres thématiques.

Références

- [1] D.o.E. workshop, Computational Materials Science and Chemistry: Accelerating Discovery and Innovation Through Simulation-Based Engineering and Science, in: D.o. Energy (Ed.), 2010.
- [2] M. Asta, C. Beckermann, A. Karma, W. Kurz, R. Napolitano, M. Plapp, G. Purdy, M. Rappaz, R. Trivedi, Solidification microstructures and solid-state parallels: Recent developments and future directions, *Acta Materialia*, 57 (2009) 941.
- [3] T.E. Quested, A.L. Greer, Grain refinement of Al alloys: Mechanisms determining as-cast grain size in directional solidification, *Acta Materialia*, 53 (2005) 4643-4653.
- [4] A.L. Greer, A.M. Bunn, A. Tronche, P.V. Evans, D.J. Bristow, Modelling of inoculation of metallic melts: application to grain refinement of aluminium by Al-Ti-B, *Acta Materialia*, 48 (2000) 2823-2835.
- [5] J.D. Hunt, Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic, *Materials Science and Engineering*, 65 (1984) 75-83.
- [6] C.-A. Gandin, From constrained to unconstrained growth during directional solidification, *Acta Materialia*, 48 (2000) 2483-2501.
- [7] S. Liu, S.-Z. Lu, A. Hellawell, Dendritic array growth in the systems $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ and $[\text{CH}_2\text{CN}]_2\text{-H}_2\text{O}$: the detachment of dendrite side arms induced by deceleration, *Journal of Crystal Growth*, 234 (2002) 740-750.
- [8] S. Liu, S.-Z. Lu, A. Hellawell, Dendritic array growth in the systems $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ and $[\text{CH}_2\text{CN}]_2\text{-H}_2\text{O}$: Dendrite tip behavior and the origin of side arm evolution, *Journal of Crystal Growth*, 234 (2002) 751-758.
- [9] C. Vivès, Grain refinement in aluminium alloys by means of electromagnetic vibrations including cavitation phenomena, *JOM-e*, 50 (1998).
- [10] P. Desnain, Y. Fautrelle, J.-L. Meyer, J.P. Riquet, F. Durand, Prediction of equiaxed grain density in multicomponent alloys stirred electromagnetically, *Acta Metallurgica & Materialia*, 38 (1990) 1513-1523.
- [11] K.A. Jackson, J.D. Hunt, D.R. Uhlmann, T.P. Seward, On the origin of the Equiaxed Zone in Castings, *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 236 (1966) 149-158.
- [12] T. Sato, W. Kurz, K. Ikawa, Experiments on dendrite branch detachment in the succinonitrile-camphor alloy, *Transactions of the Japan Institute of Metals*, 28 (1987) 1012-1021.
- [13] M.G. Mauk, Silicon solar cells: Physical metallurgy principles, *JOM*, 55 (2003) 38-42.
- [14] C.W. Lan, W.C. Lan, T.F. Lee, A. Yu, Y.M. Yang, W.C. Hsu, B. Hsu, A. Yang, Grain control in directional solidification of photovoltaic silicon, *Journal of Crystal Growth*, 360 (2012) 68-75.
- [15] M. Trempa, C. Reimann, J. Friedrich, G. Müller, D. Oriwol, Mono-crystalline growth in directional solidification of silicon with different orientation and splitting of seed crystals, *Journal of Crystal Growth*, 351 (2012) 131-140.
- [16] *Crystal Growth of Si for Solar Cells*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, 2009.
- [17] B.E.S.A. Committee, Science for Energy Technology: Strengthening the link between Basic Research and Industry The Full Report, in: U.S.D.o. Energy (Ed.), 2010.
- [18] G. Lesoult, Solidification - Macrostructures et qualité des produits, in: E.T.d. l'Ingénieur (Ed.) *Techniques de l'Ingénieur l'expertise technique et scientifique de référence*, France, 1989, pp. 32.

- [19] M. Zaloznik, A. Kumar, H. Combeau, M. Bedel, P. Jarry, E. Waz, Influence of transport mechanisms on macrosegregation formation in direct chill cast industrial scale aluminium alloy ingots, *Advanced Engineering Materials*, 13 (2011) 570-580.
- [20] R.C. Reed, *Superalloys: Fundamentals and Applications*, 2006.
- [21] R.H. Mathiesen, L. Arnberg, P. Bleuet, A. Somogyi, Crystal fragmentation and columnar-to-equiaxed transition in Al-Cu studied by synchrotron X-ray video microscopy, *Metallurgical & Materials Transactions A*, 37 (2006) 2515-2524.
- [22] C.J. Paradies, R.N. Smith, M.E. Glicksman, The influence of convection during solidification on fragmentation of the mushy zone of a model alloy, *Metallurgical & Materials Transactions A*, 28A (1997) 875-883.
- [23] H. Jung, La transition colonnaire équiaxe au cours de la solidification dirigée d'alliages métalliques, in: *Thèse en science des matériaux*, Université Paul Cézanne, Marseille, France, 2007.
- [24] R.H. Mathiesen, L. Arnberg, F. Mo, T. Weitkamp, A. Snigirev, Time-resolved X-Ray Imaging of Dendritic Growth in Binary Alloys, *Physical Review Letters*, 83 (1999) 5062-5065.
- [25] R.H. Mathiesen, L. Arnberg, K. Ramsokar, T. Weitkamp, C. Rau, A. Snigirev, Time-resolved X-Ray Imaging of Aluminum Alloy Solidification Processes, *Metallurgical and Materials Transaction B*, 33B (2002) 613-623.
- [26] H. Yasuda, I. Ohnaka, K. Kawasaki, A. Sugiyama, T. Ohmichi, J. Iwane, K. Umetani, Direct Observation of stray crystal formation in unidirectional solidification of Sn-Bi alloy by X-ray imaging, *Journal of Crystal Growth*, 262 (2004) 645-652.
- [27] H. Yasuda, I. Ohnaka, Y. Matsunaga, S. Y., In-situ Observation of Peritectic Growth with Faceted Interface, *Journal of Crystal Growth*, 158 (1996) 128-135.
- [28] H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, V. Cristiglio, B. Billia, B. Grushko, J. Härtwig, H. Klein, J. Baruchel, Probing the dynamics quasicrystal growth using synchrotron live imaging, *Physical Review E*, 74 (2006) 031605/031601-031605/031606.
- [29] H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noel, H. Jung, B. Billia, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Hartwig, J. Baruchel, In-situ and real-time investigation of columnar-to-equiaxed transition in metallic alloy, *Metall Mater Trans A*, 38A (2007) 1458-1464.
- [30] G. Reinhart, A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, H. Jung, N. Mangelinck-Noel, N. Bergeon, T. Schenk, J. Hartwig, J. Baruchel, In-Situ and real-time analysis of the formation of strains and microstructure defects during solidification of Al-3.5 wt pct Ni alloys, *Metall Mater Trans A*, 39A (2008) 865-874.
- [31] G. Reinhart, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, T. Schenk, J. Baruchel, CET during the solidification of refined Al-3.5wt%Ni alloys and characterization of the subsequent grain structure, *IOP ConferenceSeries: Materials Science & Engineering*, 27 (2011) 012011.
- [32] B. Billia, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, H. Jung, G. Reinhart, A. Bogno, A. Buffet, J. Hartwig, J. Baruchel, T. Schenk, In situ Synchrotron X-ray Characterisation of Microstructure Formation in Solidification Processing of Al-Based Metallic alloys, *ISIJ International*, 50 (2010) 1929-1935.
- [33] A. Bogno, H. Nguyen Thi, A. Buffet, G. Reinhart, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, T. Schenk, Analysis by synchrotron X-ray radiography of convection effects on the dynamical evolution of the solid-liquid interface and solute distribution during initial solidification transient, *Acta Materialia*, 59 (2011) 4356-4365.
- [34] A. Bogno, G. Reinhart, A. Buffet, H. Nguyen Thi, B. Billia, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, In situ analysis of the influence of convection during the initial transient of planar solidification, *Journal of Crystal Growth*, 318 (2011) 1134-1338.

- [35] A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, N. Mangelinck-Noel, H. Jung, J. Hartwig, J. Baruchel, B. Billia, Real-time and in situ solidification of Al-based alloys investigated by synchrotron radiation: a unique experimental set-up combining radiography and topography techniques, *Phys Status Solidi A*, 204 (2007) 2721-2727.
- [36] N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, G. Reinhart, H. Jung, B. Billia, A. Buffet, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Härtwig, J. Baruchel, Dynamics of Al-based alloy solidification by in situ and in real-time Synchrotron X-ray Radiography and Topography, in: SP07, 5th Decennial Int. Conf. on Solidification Processing, Sheffield, UK, 2007.
- [37] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, L. Sturz, G. Zimmerman, Columnar to equiaxed transition in nonrefined Al-based alloys during directional solidification in microgravity and on earth, in: SP07, 5th Decennial International Conference on Solidification Processing, Sheffield, UK, 2007.
- [38] B. Billia, J. Gastaldi, H. Nguyen Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck, B. Grushko, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, Growth structures, interface dynamics and stresses in metallic alloy solidification: In situ synchrotron X-ray characterisation, *Trans. Indian Inst. Met.*, 60 (2007) 287-291.
- [39] B. Billia, H. Nguyen Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck, J. Gastaldi, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, V. Cristiglio, B. Grushko, H. Klein, Studies by in situ and real time synchrotron imaging of interface dynamics and defect formation in solidification processing, *Advances in Science and Technology*, 46 (2006) 1-10.
- [40] M.A. Martorano, C. Beckermann, C.A. Gandin, A solutal interaction mechanism for the columnar-to-equiaxed transition in alloy solidification, *Metall Mater Trans A*, 34A (2003) 1657-1674.
- [41] J.W. Aveson, G. Reinhart, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, T. Lafford, H.J. Stone, Dendrite Bending during directional solidification, in: *Superalloys 2012*, Champion, USA, 2012.
- [42] G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, B. Billia, N. Mangelinck-Noel, T. Schenk, J. Hartwig, J. Baruchel, In situ and real time investigation of directional solidification of Al-Ni alloys by synchrotron imaging, *Materials Science Forum*, 508 (2006) 75-80.
- [43] B.H. Zhou, H. Jung, N. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, B. Billia, Q.S. Liu, C.W. Lan, Comparative study of the influence of natural convection on directional solidification of Al-3.5 wt% Ni and Al-7 wt% Si alloys, *Adv Space Res*, 41 (2008) 2112-2117.
- [44] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Baruchel, CET by fragmentation during the solidification under natural and forced convection of non-refined Al-based alloys, *Materials Science Forum*, 649 (2010) 343.
- [45] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, J. Baruchel, Fragmentation in Al-7wt%Si alloy studied in real-time by X-ray synchrotron techniques *Int J Cast Metal Res*, 22 (2009) 208-211.
- [46] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, Columnar to equiaxed transition in directional solidification processing of aluminium alloys, in: M.B. Ch.-A. Gandin (Ed.) *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, TMS (The Minerals, Metals & Materials Society), Opo, France, 2006, pp. 399-406.
- [47] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, G. Reinhart, A. Buffet, Directional processing on CET in Al-based alloys, *Metals & Materials International*, 15 (2009) 21-26.
- [48] H. Jung, N. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, B. Billia, G. Reinhart, A. Buffet, Directional Solidification Processing on CET in Al-Based Alloys, *Met Mater Int*, 15 (2009) 21-26.

- [49] H. Nguyen Thi, B. Drevet, J.M. Debierre, D. Camel, Y. Dabo, B. Billia, Préparation of the Initial Solid - Liquid Interface and Melt in Directional Solidification, *J. of Crystal Growth*, 253 (2003) 539-548.
- [50] J.A. Dantzig, M. Rappaz, Solidification, EPFL Press, 2009, 2009.
- [51] H. Fredriksson, U. Akerlind, Solidification and Crystallization Processing in Metals and Alloys, 2012.
- [52] M.C. Flemings, Our understanding of macrosegregation: Past and present, *ISIJ International*, 40 (2000) 833-841.
- [53] C. Beckermann, Modelling of macrosegregation : applications and future needs, *International Materials Review*, 47 (2002) 243-261.
- [54] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, J. Baruchel, Fragmentation in an Al-7 wt-%Si alloy studied in real time by X-ray synchrotron techniques, *Int J Cast Metal Res*, 22 (2009) 208-211.
- [55] B. Billia, J. Gastaldi, G. Grange, N. Bergeon, H. Nguyen Thi, H. Jamgotchian, Cumulative mechanical moments and microstructure deformation induced by growth shape in columnar solidification, *Physical Review Letters*, 93 (2004) 126105-126101, 126105-126104.
- [56] S. Ananiev, P. Nikritjuk, K. Eckert, Dendrite fragmentation by catastrophic elastic remelting, *Acta Materialia*, 57 (2009) 657-665.
- [57] A. Bogno, H. Nguyen Thi, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, E. Boller, T. Schenk, J. Baruchel, In situ analysis of dendritic equiaxed microstructure formation in Al-Cu alloys by synchrotron X-ray radiography, *Trans. Indian Inst. Met.*, 62 (2009) 427-431.
- [58] A. Bogno, H. Nguyen Thi, B. Billia, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Baruchel, In situ and real time analysis of the growth and interaction of equiaxed grains by synchrotron X-ray radiography, *IOP Conference Series: Materials Science & Engineering*, 27 (2011) 012089.
- [59] M. Do-Quang, G. Amberg, Simulation of free dendritic crystal growth in a gravity environment, *J Comput Phys*, 227 (2008) 1772-1789.
- [60] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau, G. Lesoult, Free growth of equiaxed crystals settling in undercooled NH₄Cl-H₂O melts, *Acta Materialia*, 46 (1998) 5851-5862.
- [61] G. Reinhart, Dynamique de formation de la microstructure de solidification d'alliages métalliques: caractérisation par imagerie X synchrotron, in: Thèse en science des matériaux, Université Paul Cézanne, Marseille, France, 2006.
- [62] C.-A. Gandin, B. Billia, G. Zimmermann, D.J. Browne, M.D. Dupouy, G. Guillemot, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, L. Sturz, S. Mc Fadden, J. Banaszek, Y. Fautrelle, K. Zaidat, A. Ciobanas, Columnar-to-Equiaxed Transition in SOLidification Processing (CETSOL): a project of the European Space Agency (ESA) - Microgravity Applications Promotion (MAP) programme, *Material Science Forum*, 508 (2006) 393-404.
- [63] G. Zimmerman, L. Sturz, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, C.-A. Gandin, D.J. Browne, W.U. Mirihanage, Investigation of Columnar-to-Equiaxed Transition in Solidification Processing of AlSi alloys in Microgravity – The CETSOL project, in: *ISPS4, 4th International Symposium on Physical Sciences in Space*, Bonn, Allemagne, 2011, pp. 012002.
- [64] S. Mc Fadden, L. Sturz, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, G. Zimmerman, B. Billia, D.J. Browne, D. Voss, D.J. Jarvis, Validation of a front tracking model of the columnar to equiaxed transition using solidification results from the MAXUS 7 microgravity platform, in: *ISPS, International symposium on Physical Sciences in Space*, Japan, 2007.
- [65] A. Noeppel, O. Budenkova, G. Zimmermann, L. Sturz, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, H. Nguyen-Thi, B. Billia, C.-A. Gandin, Y. Fautrelle, Numerical modelling of columnar to equiaxed transition - application to microgravity experiments, *Int J Cast Metal Res*, 22 (2009) 34-38.

- [66] L. Sturz, G. Zimmermann, H. Jung, N. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, B. Billia, Investigations on the columnar-equiaxed transition in AlSi7 alloys onboard MAXUS-7 in low-gravity environment, *Esa Sp Publ*, 647 (2007) 367-372.
- [67] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, Columnar to equiaxed transition during directional solidification in refined Al-based alloys, *Journal of Alloys and Compounds*, 484 (2009) 739-746.
- [68] J. Gastaldi, B. Billia, H. Nguyen Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, In situ synchrotron X-ray imaging of the solidification progress in metallic alloys, *T Indian I Metals*, 60 (2007) 281-286.
- [69] G. Reinhart, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, J. Gastaldi, J. Härtwig, J. Baruchel, In situ observation of transition from columnar to equiaxed growth in Al-3.5wt%Ni alloys by synchrotron radiography, in: *MCWASP XI, Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, Opio, France, 2006.
- [70] G. Reinhart, A. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, J. Gastaldi, B. Billia, P. Pino, J. Hartwig, J. Baruchel, Investigation of columnar-equiaxed transition and equiaxed growth of aluminium based alloys by X-ray radiography, *Materials Science & Engineering A*, 413 (2005) 384-388.
- [71] N. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, V. Cristiglio, M.D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia, J. Hartwig, In situ analysis of equiaxed growth of aluminium-nickel alloys by x-ray radiography at ESRF, *J Phys D Appl Phys*, 38 (2005) A28-A32.
- [72] T. Schenk, H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, G. Reinhart, V. Cristiglio, N. Mangelinck, H. Klein, J. Haertwig, B. Grushko, B. Billia, J. Baruchel, Application of synchrotron X-ray imaging to the study of directional solidification of aluminium-based alloys, *Journal of Crystal Growth*, 275 (2005) 201-208.
- [73] M. Vandyoussefi, A.L. Greer, Application of cellular automaton-finite element model to the grain refinement of directionally solidified Al-4.15wt%Mg alloys, *Acta Materialia*, 50 (2002) 1693-1705.
- [74] H. Nguyen Thi, Y. Dabo, B. Drevet, M.D. Dupouy, D. Camel, B. Billia, J.D. Hunt, A. Chilton, Directional solidification of Al-1.5wt%Ni alloys under diffusion transport in space and fluid-flow localisation on Earth, *Journal of Crystal Growth*, 281 (2005) 654-668.
- [75] J.P. Garandet, J.J. Favier, D. Camel, Segregation phenomena in crystal growth from the melt, in: D.T.J. Hurle (Ed.) *Handbook of crystal growth*, Elsevier Science B.V., North Holland, 1994, pp. 661.
- [76] M.D. Dupouy, D. Camel, Effects of Gravity on Columnar Dendritic Growth of Metallic Alloys: Flow Pattern and Mass Transfer, *Journal of Crystal growth*, 183 (1998) 469-489.
- [77] H.B. Dong, P.D. Lee, Simulation of the columnar to equiaxed transition in directionally solidified Al-Cu alloys, *Acta Materialia*, 53 (2005) 659-668.
- [78] H. Jung, N. Mangelinck-Noël, C. Bergman, B. Billia, Determination of the nucleation undercooling of Al-5.0wt%Ti-1.0wt%B refining particles in Al-based alloys using DSC, *Journal of Alloys and Compounds*, 477 (2009) 622-627.
- [79] A. Bogno, H. Nguyen Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, E. Boller, J. Baruchel, Application of Synchrotron X-Ray Radiography to the Study of Dendritic Equiaxed Microstructure Formation in Al – Cu alloys, *Nucl Instrum Meth B*, 268 (2010) 394-398.
- [80] N. Mangelinck-Noël, J.E. Spinelli, C.-A. Gandin, G. Reinhart, H. Nguyen Thi, B. Billia, A method to determine the active particle distribution in a refined alloy, *IOP Conference Series: Materials Science & Engineering*, 27 (2011) 012090.
- [81] M.D. Dupouy, D. Camel, J.E. Mazille, Transition colonnaire-équiaxe au sol et en microgravité pour la solidification dirigée d'un alliage affiné Al-3.5wt%poidsNi, *Colloque Matériaux 2002, Poitiers*, (2002).

- [82] D. Camel, M.D. Dupouy, Comparative study of the Columnar-Equiaxed Transition in microgravity and on ground during directional solidification of a refined Al- 3.5 wt% Ni alloy, *Journal de Physique IV*, 11 (2001) Pr6-119 Pr116-126.
- [83] K. Sabat Da Cruz, N. Mangelinck-Noël, C.-A. Gandin, B. Billia, Distributions of structures and solute in directionally solidified Al – 7 wt % Si, *IOP Conference Series: Materials Science & Engineering*, 27 (2011) 012017.
- [84] B.J. Mc Kay, P. Cizek, P. Schumacher, K.A.Q. O'Reilly, Heterogeneous nucleation in an Al-Ni-Si alloy studied using a metallic glass technique, *Materials Science & Engineering*, A304-306 (2001) 240-244.
- [85] P. Schumacher, B.J. McKay, TEM investigation of heterogeneous nucleation mechanisms in Al-Si alloys, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 317 (2003) 123-128.
- [86] G. Guillemot, C.A. Gandin, H. Combeau, Modeling of macrosegregation and solidification grain structures with a coupled cellular automaton-finite element model, *ISIJ International*, 46 (2006) 880-895.
- [87] G. Reinhart, C.-A. Gandin, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, J. Baruchel, Direct simulation of an in situ and real-time X-ray solidification experiment, in: *MCWASP-XIII, Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XIII*, Schladming, Austria, 2012.
- [88] G. Reinhart, C.-A. Gandin, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, J.E. Spinelli, J. Baruchel, B. Billia, Influence of natural convection during upward directional solidification: a comparison between in situ X-ray radiography and direct simulation of the grain structure, *Acta Materialia*, Accepted (2013).
- [89] R. Tönhardt, G. Amberg, Dendritic growth of randomly oriented nuclei in a shear flow, *Journal of Crystal Growth*, 213 (2000) 161-187.
- [90] B. Appolaire, H. Combeau, G. Lesoult, Modeling of equiaxed growth in multicomponent alloys accounting for convection and for globular/dendritic morphological transition, *Materials Science and Engineering A*, 487 (2008) 33-45.
- [91] K. Zaïdat, Influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée des alliages métalliques binaires, in: *Thèse de l'INPG, Institut National Polytechnique de Grenoble*, Grenoble, France, 2005.
- [92] K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, R. Moreau, Control of melt convection by a travelling magnetic field during the directional solidification of Al-Ni alloys, *C.R. Mécanique*, 335 (2007) 330-335.
- [93] K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, R. Moreau, Control of the solidification of Al-Ni alloys using a travelling magnetic field: macrosegregation, in: *MCWASP XI, Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, Opio, France, 2006.
- [94] K. Zaïdat, T. Ouled Khachroum, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, M.D. Dupouy, R. Moreau, Effect of Travelling Magnetic Field on the Directional Solidification of refined Al-3.5 wt %Ni alloys, *Materials Science Forum*, 508 (2006) 221-226.
- [95] K. Zaïdat, T. Ouled Khachroum, G. Vian, C. Garnier, N. Mangelinck-Noël, M.D. Dupouy, R. Moreau, Directional solidification of refined Al-3.5 wt % Ni under natural convection and under a forced flow driven by a travelling magnetic field, *Journal of Crystal Growth*, 275 (2005) e1501-e1505.
- [96] C.-A. Gandin, J. Balizot, S. Mosbah, M. Bellet, G. Zimmerman, L. Sturz, D.J. Browne, S. Mc Fadden, H. Jung, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, Y. Fautrelle, X. Wang, Modelling of Heat and Solute Interactions upon Grain Structure Solidification, *Materials Science Forum*, 649 (2010) 331.
- [97] J. Wang, Z.M. Ren, Y. Fautrelle, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Salloum Abou Jaoude, Y.B. Zhong, K. I., A. Bojarevics, Modification of liquid/solid interface

shape in directionally solidifying Al-Cu alloys by transverse magnetic field, *Journal of Materials Science*, 48 (2013) 213-219.

[98] J. Wang, Y. Fautrelle, Z.M. Ren, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Salloum Abou Jaoude, Y.B. Zhong, I. Kaldre, A. Bojarevics, L. Buligins, Thermoelectric magnetic force acting on the solid during directional solidification under a static magnetic field, *Appl Phys Lett*, 101 (2012) 251 904.

[99] L. Juncheng, J. Wanqi, Modelling Ekman flow during the ACRT process with marked particles, *Journal of Crystal Growth*, 183 (1998) 140-149.

[100] J. Wanqi, G. Xipin, L. Juncheng, M. Dong, X. Wei, The ACRT-B process and its applications, in: J.B.H. Jones (Ed.) 4th decennial International Conference on Solidification Processing, University of Sheffield, Sheffield, UK, 1997, pp. 49.

[101] N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, D. Ballutaud, N. Le Quang, G. Goaer, Analysis of the occurrence of small grains during the solidification of PV Si, in: 20th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, Barcelone, Espagne, 2005.

[102] F. Barvinschi, C. Stelian, Y. Delannoy, N. Mangelinck, T. Duffar, Modeling the mc-Si ingots solidification process in a vertical square furnace, in: AMS 2002 Workshop, Timisoara, Roumanie, 2002.

[103] F. Barvinschi, C. Stelian, Y. Delannoy, N. Mangelinck, T. Duffar, Modeling the multi-crystalline silicon ingot solidification process in a vertical square furnace, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 5 (2003) 293-300.

[104] L. Sylla, A. Hodroj, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, Measurement of undercooling for better understanding of solidification phenomena during the elaboration of polycrystalline silicon, in: 19th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, Paris, France, 2004, pp. 3775.

[105] N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, Planar Front-Equiaxed Transition in semiconductor solidification: application to photovoltaic silicon, *Transactions Indian Institute of Metals*, 60 (2007) 93-97.

[106] N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, Modelling of the transition from a planar faceted front to equiaxed growth: Application to photovoltaic polycrystalline silicon, *Journal of Crystal Growth*, 311 (2008) 20-25.

[107] K.A. Jackson, *Crystal Growth Kinetics*, *Materials Science & Engineering*, 65 (1984) 7-13.

[108] J. Gastaldi, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, T. Schenk, J. Hartwig, B. Grushko, H. Klein, A. Buffet, J. Baruchel, H. Jung, P. Pino, B. Przepiarynskik, In situ study of quasicrystal growth by synchrotron X-ray imaging, *Philos Mag*, 87 (2007) 3079-3087.

[109] J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, H. Klein, J. Härtwig, N. Mangelinck-Noël, B. Grushko, H. Nguyen Thi, P. Pino, B. Billia, J. Baruchel, In situ observation of pore evolution during melting and solidification of Al-Pd-Mn quasicrystals by synchrotron X-ray radiography, *Philos Mag*, 86 (2006) 335-340.

[110] H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, V. Cristiglio, B. Billia, B. Grushko, J. Härtwig, H. Klein, J. Baruchel, In situ and real-time probing of quasicrystal solidification dynamics by synchrotron imaging, *Physical Review E*, 74 (2006) 031605-031601_031605-031606.

[111] K. Fujiwara, R. Gotoh, X.B. Yang, H. Koizumi, J. Nozawa, S. Uda, Morphological transformation of a crystal-melt interface during unidirectional growth of silicon, *Acta Materialia*, 59 (2011) 4700-4708.

[112] K. Fujiwara, K. Maeda, N. Usami, G. Sazaki, Y. Nose, A. Nomura, T. Shishido, K. Nakajima, In situ observation of Si faceted dendrite growth from low-degree-of-undercooling melts, *Acta Materialia*, 56 (2008) 2663-2668.

- [113] K. Fujiwara, K. Nakajima, T. Ujihara, N. Usami, G. Sazaki, H. Hasegawa, S. Mizoguchi, K. Nakajima, In situ observations of crystal growth behavior of silicon melt, *Journal of Crystal Growth*, 243 (2002) 275-282.
- [114] K. Fujiwara, Y. Obinata, T. Ujihara, N. Usami, G. Sazaki, K. Nakajima, In-situ observations of melt growth behavior of polycrystalline silicon, *Journal of Crystal Growth*, 262 (2004) 124-129.
- [115] M. Tokairin, K. Fujiwara, K. Kutsukake, H. Kadama, N. Usami, K. Nakajima, Pattern formation mechanism of a periodically faceted interface during crystallisation of Si, *Journal of Crystal Growth*, 312 (2010) 3670-3674.
- [116] A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, J.J. Furter, T. Lafford, J. Baruchel, X. Guichard, Real time observation of the directional solidification of multicrystalline silicon: X-ray imaging characterization, *Energy Procedia*, 27 (2012) 82-87.
- [117] K. Fujiwara, W. Pan, K. Sawada, M. Tokairin, N. Usami, Y. Nose, A. Nomura, T. Shishido, K. Nakajima, Directional growth method to obtain high quality polycrystalline silicon from its melt, *Journal of Crystal Growth*, 292 (2006) 282-285.
- [118] A. Jouini, D. Ponthenier, H. Lignier, N. Enjalbert, B. Marie, B. Drevet, E. Pihan, C. Cayron, T. Lafford, D. Camel, Improved multicrystalline silicon ingot crystal quality through seed growth for high efficiency solar cells, *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, 20 (2012) 735-746.
- [119] A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, X. Guichard, Twinning occurrence and grain competition in multicrystalline silicon during solidification, *C.R. Physique*, 14 (2013) 8.
- [120] A. Abreal, Les Macles dans les Minéraux, *J. of Pers. Mineralogist*, 2 (2004) 101-175.
- [121] T. Duffar, A. Nadri, On the twinning occurrence in bulk semiconductor crystal growth, *Scripta Materialia*, 62 (2010) 955-960.
- [122] J. Pohl, M. Müller, A. Seidl, K. Albe, Formation of parallel (111) twin boundaries in silicon growth from the melt explained by molecular dynamics, *Journal of Crystal Growth*, 312 (2010) 1411-1415.
- [123] A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, Investigation of grain boundary grooves at the solid-liquid interface during directional solidification of high purity silicon: characterization in situ by X-ray imaging, *Journal of Crystal Growth*, 377 (2013) 203-211.
- [124] M. Beaudhuin, G. Chichignoud, P. Bertho, T. Duffar, M. Lemiti, K. Zaïdat, Carbon reaction with levitated silicon-Experimental and thermodynamic approaches, *Materials Chemistry & Physics*, 133 (2012) 284-288.
- [125] O. Palais, Cartographie de durées de vie des porteurs minoritaires et d'impuretés métalliques dans le silicium cristallin par déphasage micro-ondes in, Thèse de l'Université Paul Cézanne, Marseille, France, 2000.
- [126] K. Fujiwara, K. Maeda, N. Usami, G. Sazaki, Y. Nose, K. Nakajima, Formation mechanism of parallel twins related to Si-faceted dendrite growth, *Scripta Materialia*, 57 (2007) 81-84.
- [127] K. Nakajima, K. Fujiwara, W.G. Pan, M. Tokairin, Y. Nose, N. Usami, Development of textured high-quality Si multicrystal ingots with same grain orientation and large grain sizes by the new dendritic casting method, *Conference Record of the 2006 IEEE 4th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion*, Vols 1 and 2, (2006) 964-967 2568.

Annexe 1. Curriculum vitae

Nom : Noël
Nom d'épouse: Mangelinck
Prénom : Nathalie
Date de naissance: 11/07/1971
Grade: Chargée de recherche 1^{ère} classe CNRS, section 15
Laboratoire: Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence
IM2NP, UMR CNRS 7334
Aix-Marseille Université
Campus Scientifique de saint Jérôme - Case 142
13397 Marseille Cedex 20
Directeur : Rachid Bouchakour
Tel / Fax : (33) 4 91 28 87 37 / (33) 4 91 28 87 75
E-mail: nathalie.mangelinck@im2np.fr

1.1 Diplômes

- ❖ **1993:** DEA en optique et traitement du signal (spécialisation : optique guidée, optoélectronique) à l'Université d'Aix Marseille III, France.
- ❖ **1993:** Diplôme d'ingénieur de l'Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille (Sup φ), France.
- ❖ **1996:** Doctorat en Sciences Physiques, Université d'Aix Marseille III, France, septembre 1996.

1.2 Expérience professionnelle de recherche

- ❖ **Mars 1993 / Juin 1993 :** *Projet de fin d'études à l' « Institute of Optical Research » à Stockholm, Suède :* Composants passifs à base de réseaux dans les fibres optiques.
- ❖ **Septembre 1993 / Septembre 1996:** *Doctorat, laboratoire MATOP (Matériaux : Organisation et Propriétés, UPRESA, 28^{ème} section), Université d'Aix Marseille III, France :* Observation *in situ* et en temps réel de la microstructure interfaciale lors de la solidification dirigée d'alliages transparents massifs. Thèse cofinancée par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) et la région PACA.
- ❖ **Septembre 1996 / Septembre 1997:** *Contrat d'attachée temporaire à l'enseignement et à la recherche à l'université d'Aix Marseille III, 28^{ème} section, France (½ poste):* Poursuite des travaux de recherche engagés pendant la thèse au laboratoire MATOP.
- ❖ **Novembre 1997 / Mai 1998 :** *Post-doctorat au laboratoire de métallurgie mécanique de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Suisse :* Infiltration et solidification de composites à matrices métalliques. Post-doctorat de six mois financé par la COTRAO (Communauté de Travail des Alpes Occidentales).
- ❖ **Octobre 1998 / Juillet 2000 :** *Chercheur (Research Fellow) au laboratoire d'ingénierie de précision de la Nanyang Technological University (NTU), Singapour :* Projets de recherche et collaborations industrielles sur l'application de l'optique aux procédés d'ingénierie de précision : méthodes de caractérisation optique.

- ❖ **Octobre 2001 / Janvier 2004** : *Chargée de recherche CNRS au laboratoire EPM (Elaboration par procédés magnétiques), Grenoble.*
- ❖ **Janvier 2004** : *Chargée de recherche CNRS à l'IM2NP (Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence), Marseille :*
Les thématiques développées depuis mon entrée au CNRS sont détaillées dans la suite.

1.3 Collaborations académiques

- ❖ *Caractérisation et compréhension de la cristallisation du Silicium photovoltaïque: imagerie X synchrotron (Projet ANR Si-X dans le cadre de l'ANR HABISOL).*

Du 01/01/2009 au 31/12/2012.

Coordinatrice : Nathalie Mangelinck-Noël

Ce projet rassemblait les équipes suivantes : IM2NP (Marseille, France), CEA/INES (Chambéry, France), SIMAP (Grenoble, France), ESRF (Grenoble, France), SINTEF (Trondheim, Norvège), CEMEF (Sophia Antipolis, France), EMIX (Saint Maurice La Souterraine, France).

L'objectif du projet Si-X était d'approfondir de façon significative la compréhension des mécanismes dynamiques entrant en jeu pendant la formation de la structure cristalline du silicium multi-cristallin PV. Pour cela, nous proposons une validation expérimentale incluant des expériences à plusieurs échelles associées à des techniques de caractérisation innovantes et à des simulations tridimensionnelles des procédés et des structures associées.

Les données de référence requises pour remplir les objectifs du projet ont été obtenues grâce à plusieurs expériences complémentaires avec des échelles de lingots différentes et des caractérisations complémentaires. En particulier, dans le cadre du projet Si-X, nous avons développé un dispositif unique d'imagerie X qui permet d'obtenir des informations sur la dynamique, la cinétique de croissance et la germination (radiographie X) et sur l'orientation cristallographique des grains, le maillage, les déformations (Topographie X) pendant la solidification. Cette expérience représentait un défi et n'existait pas ailleurs pour le silicium au début du projet. Ce projet proposait également de relier les résultats d'imagerie X à la solidification de lingots silicium à plus grande échelle : moulage de plaques et solidification dirigée classique. Le vaste champ d'investigation concernant la modélisation des mécanismes de formation de grains et de simulation de la structure de grains dans le silicium multi-cristallin (mc) a été également entrepris dans ce projet. Le couplage entre les expériences et les simulations 3D de la structure de grains dans le silicium mc y compris pour les lingots industriels était une originalité supplémentaire de ce projet.

Résultats majeurs :

Des résultats majeurs ont été obtenus par l'équipe du projet Si-X :

- . Premières images rayons X *in situ* et en temps réel de la croissance de l'interface solide-liquide du silicium pendant sa solidification.
- . Modèle des macles et de la dynamique des joints de grains et, logiciel 2D.
- . Moulage de plaques.
- . Premières prédictions de la structure de grains 3D dans un lingot industriel de mc-Si.

- ❖ *MAP (Microgravity Application Promotion) de l'ESA (Agence Spatiale Européenne) : CETSOL (Columnar to Equiaxed Transition in SOLidification processing) pour Transition colonnaire équiaxe dans les procédés de solidification*

Ce projet a été reconduit pour deux ans en 2011 pour la quatrième fois par l'ESA et rassemble plusieurs équipes européennes : ACCESS e.V. (Aachen, Allemagne, Coordination),

CEMEF, Ecole des Mines de Paris (Sophia Antipolis, France, Coordination), IM2NP (Marseille, France), UCD (Dublin, Irlande). L'un des partenaires industriels de ce projet s'implique plus particulièrement : Hydro-Aluminium, Allemagne.

Les principaux centres d'intérêt du projet sont la croissance colonnaire, la transition colonnaire équiaxe (CET), la croissance équiaxe et les modèles numériques associés. L'objectif de ce projet est de réaliser des expériences et des modélisations des procédés de solidification pour contribuer à l'amélioration des modèles de structure de grains dans l'industrie métallurgique. Des expériences en microgravité ont été réalisées dans le laboratoire de matériaux (MSL) de la station spatiale internationale (ISS). Ces résultats constituent des données de référence en l'absence de convection et, en l'absence des phénomènes de sédimentation. Des expériences complémentaires ont été réalisées dans chacun des laboratoires en présence de convection naturelle ou forcée : champ électromagnétique tournant et glissant, vibrations et rotations. Dans le cadre de ce projet, l'IM2NP a mené à bien une étude paramétrique de la CET et des expériences en présence de rotations alternées (ACRT). De plus, nous contribuons à la préparation et à l'exploitation des expériences en microgravité. Je m'implique plus particulièrement dans l'aspect caractérisation et simulation des expériences en microgravité en collaboration avec le CEMEF. Ce projet arrive à échéance à la fin de l'année 2012 mais a été étendu par contrat jusqu'à fin 2013. De plus, un nouveau projet devrait être reconduit par l'ESA qui a proposé d'autres expériences en microgravité à l'équipe.

❖ *Caractérisation in situ et en temps réel de la solidification d'alliages à base aluminium et d'alliages métalliques complexes (quasi-cristaux, alliages à grandes mailles) par imagerie X (radiographie et topographie) synchrotron.*

La caractérisation par imagerie X *in situ* et en temps réel pendant la solidification apporte des informations uniques sur la dynamique de formation des structures de grains et des microstructures et sur les défauts de croissance.

Dans le cadre de ce projet nous avons abordé quatre thèmes principaux :

- . La croissance colonnaire d'alliages d'aluminium et le démarrage des instabilités,
- . La CET et la croissance équiaxe,
- . La croissance des quasi-cristaux,
- . La croissance d'alliages métalliques complexes.

❖ *Réseau d'excellence de l'Union Européenne CMA (Complex Metallic Alloys) : Alliages métalliques complexes.* Ce réseau impliquait 24 instituts de recherche, 80 laboratoires répartis dans 20 pays de l'Union Européenne. Ce projet est arrivé à échéance.

❖ *PPF (Plan Pluri Formation) « Contrôle actif de la structure de grains dans les procédés de solidification : expériences et simulations » de l'Université Paul Cézanne.* Début du projet 2008, Fin du projet:12/2011. Coordinatrice : Nathalie Mangelinck-Noël. Laboratoires impliquées : IM2NP, CEMEF (Sophia Antipolis, France), SIMAP (Grenoble, France).

❖ *Sous projet « Contrôle de la structure de grains et de la micro et macro-ségrégation lors de la solidification d'alliages métalliques. Influence de la convection naturelle et forcée » dans le cadre du projet ARCUS (Construction d'un espace scientifique et technologique Brésil/ Provence-Alpes-Côte d'Azur).* Démarrage : 2008, fin du projet : décembre 2009, Coordinatrice du sous projet: Nathalie Mangelinck-Noël.

❖ *Sous-projet « Matériaux avancés au service du développement durable. Silicium photovoltaïque pour cellules solaires et alliages métalliques pour des transports économes en énergie » dans le cadre du sous-thème : Technologies au service du développement durable du projet ARCUS (Construction d'un espace scientifique et technologique Brésil/ Provence-Alpes-Côte d'Azur)*

Démarrage : 2011, Coordinatrice du sous projet: Nathalie Mangelinck-Noël

A la suite du colloque de restitution du projet ARCUS en Octobre 2009, une nouvelle demande (2010-2013) ayant pour thème : agrosiences et développement durable a été proposée et acceptée par la région PACA, et le Ministère des Affaires étrangères français. Ce projet a débuté en janvier 2011. En ce qui concerne notre thématique, deux nouveaux groupes sont venus renforcer la collaboration en cours : le CEMEF Mines Paris-Tech pour la France et l'université de Sao Carlos, Etat de Sao Paulo pour le Brésil. Ces groupes contribuent plus particulièrement à l'axe simulations numériques prévu dans le projet.

❖ *Caractérisation in situ et en temps réel de la solidification de superalliages (Démarrage d'une collaboration avec le Rolls Royce Institute de Cambridge, Grande Bretagne).*

Nous collaborons avec le groupe du professeur Howard Stone au Rolls Royce Institute de l'Université de Cambridge et par son intermédiaire avec l'entreprise Rolls Royce.

Cette collaboration a pour objectif l'étude de la solidification des superalliages à base nickel. Notre groupe propose la caractérisation *in situ* et en temps réel de leur solidification afin d'étudier la formation des défauts et l'origine des désorientations cristallographiques. Ce projet a été rendu possible par le développement du four haute température adapté à l'imagerie X développé dans le projet Si-X. Des expériences préliminaires de caractérisation en temps réel par imagerie X-synchrotron de la solidification des superalliages ont été menées à bien en Juin 2011. Ces premiers résultats associant radiographie et de topographie sont très prometteurs.

❖ *Collaboration avec le laboratoire SIMAP (Science et Ingénierie des Matériaux et des Procédés), équipe EPM : Elaboration par Procédés Magnétiques, Grenoble*

Suite à mon changement d'affectation vers l'IM2NP, j'ai conservé des collaborations avec le laboratoire SIMAP équipe EPM sur la thématique de la solidification des alliages à base aluminium en présence de convection forcée par champ électromagnétique jusqu'à la fin de la thèse de Kader Zaïdat. Récemment, un nouveau projet entre les deux équipes a débuté et porte sur la caractérisation par imagerie X de l'effet d'un champ magnétique permanent sur la solidification d'alliages à base aluminium. Des expériences préliminaires ont d'ores et déjà été réalisées et ont mis en évidence l'effet du champ magnétique sur la microstructure dendritique.

❖ *Collaboration avec le laboratoire CEMEF (Centre de Mise en Forme des Matériaux), Sophia Antipolis (Ch-A. Gandin)*

Cette collaboration porte sur la modélisation avec le logiciel XR2Sol+CAFE de la structure de grains et de la méso/macro-ségrégation dans des expériences de solidification réalisées par l'équipe MCA. L'équipe MCA a fait l'acquisition du logiciel XR2Sol+CAFE développé au CEMEF afin de mener à bien ces simulations en collaboration avec le CEMEF. Le CEMEF quant à lui poursuit le développement du modèle en utilisant certains des résultats

expérimentaux et les phénomènes mis en évidence. Cette collaboration se concrétise actuellement par des présentations récentes dans des conférences internationales.

❖ *Projet SiSSi (Silicon-ISS Investigation): Gravitational effects on heat and mass transport phenomena in directional solidification of upgraded metallurgical silicon for photovoltaic applications*

Ce projet a été validé par l'ESA en 2010 mais est en attente d'évaluation des coûts des expériences en microgravité. Il rassemble 25 équipes européennes et 5 équipes françaises : IM2NP, SIMAP, CEMEF, INES, ESRF.

Ce projet a pour objectif l'utilisation de la microgravité pour résoudre des questions fondamentales de science des matériaux dans le domaine de la cristallisation du silicium pour les applications photovoltaïques.

L'équipe MCA de l'IM2NP contribuerait en coordonnant une tâche du projet qui a pour titre: Caractérisation *in situ* de la formation de la structure de grains et des interactions avec les particules en utilisant l'imagerie aux rayons X en microgravité.

1.4 Enseignement, formation et diffusion de la culture scientifique

Enseignements

1995

- Vacation : Remplacement en DEUG à l'Université Aix-Marseille III : Travaux dirigés de mécanique du point (10h)

1993-1996

Bénévolat au sein de l'association AFEV (Association de la Fondation Etudiante pour la Ville) pour le soutien scolaire d'enfants suivis par des éducateurs de la prévention judiciaire pour la jeunesse et dans des locaux sociaux de cités marseillaises (suivi de formations en : psychologie de l'enfant, politique de la ville en matière de soutien aux enfants, méthodologie).

1996-1997

Dans le cadre d'un ½ poste d'ATER, enseignements en licence ès Sciences Physiques au sein de l'équipe pédagogique :

- Travaux Pratiques (48h) en électricité : circuits résonnants et anti-résonnants, régimes transitoires et forcés, oscillations.
- Travaux Dirigés (24h) en optique : optique électromagnétique et optique physique.
- Travaux Pratiques (66h) en optique : interféromètres de Michelson et de Pérot-Fabry, analyse de sources par diffraction par un réseau, diffraction à l'infini.
- Travaux Dirigés (16h) en ondes et vibrations : oscillations électriques et mécaniques, analogie.

2001

- Vacataire de l'enseignement secondaire : remplacement d'un professeur de Sciences Physiques du collège de la ville de Rognac du 23 Janvier 2001 au 13 Avril 2001.

2002-2003

- Travaux pratiques (28h) en science des matériaux (essais mécaniques, diffusion) pour des étudiants de première année de l'Ecole nationale supérieure d'électrochimie et d'électrometallurgie de Grenoble (ENSEEG).

- Travaux pratiques (16h) sur les matériaux de structures (Mise en forme à partir de l'état liquide : expériences et modélisation) pour des étudiants de troisième année de trois écoles d'ingénieurs de l'INPG.

Organisation de conférences, congrès, rencontres

- Organisation d'une formation interne intitulée : « Systèmes à induction », en février 2003, au laboratoire EPM.
- Organisation d'une journée thématique du groupe de recherche 2258 (« Phénomènes de Transport et Transitions de Phase en Micropesanteur ») ayant pour thème : « Influence des champs externes sur la ségrégation et la structuration en solidification : expériences et simulations » au laboratoire EPM le 21 Mars 2003.
- Organisation et coordination d'un symposium intitulé : « Solidification des Métaux et des Alliages » dans le cadre de la conférence de la société brésilienne de matériaux : « X Encontro da SBPMAT, Brazilian MRS meeting », Gramado, Brésil, 25-29 Septembre 2011.

❖ Travaux d'expertise

2009

- Membre du comité de sélection de l'université KTH (Stockholm, Suède) pour un poste de professeur en solidification des métaux.

2010

- Mission ponctuelle d'expertise pour l'ANR HABISOL.

2011

- Mission ponctuelle d'expertise pour le Sweedish National Space Board.

2012-2013

- Membre du comité de sélection de l'université KTH (Stockholm, Suède) pour un poste de professeur associé en cristallisation.

❖ Diffusion de la culture scientifique

Intervention dans les classes intitulée : « La métallurgie : une vieille discipline ? » présentant un historique de la métallurgie, les applications industrielles, la recherche actuelle et de mon équipe ainsi que les métiers des laboratoires de recherche.

2009

- N. Mangelinck-Noël, 24 Mars 2009, Collège Viala Coste, Salon de Provence, Fête de la Science 2008, Des Scientifiques dans les classes.
- N. Mangelinck-Noël, 2 Avril 2009, Lycée Professionnel Gustave Eiffel, Aubagne, Fête de la Science 2008, Des Scientifiques dans les classes.
- Accueil d'une stagiaire de 3^{ème} (Collège) pour un stage : *Connaissance des métiers de la recherche et présentation des thématiques scientifiques* du 30/11 au 03/12/2009.

2010

- N. Mangelinck-Noël, 12 Octobre 2010, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de terminale S.

2011

- N. Mangelinck-Noël, 10 Mars 2011, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de seconde.
- N. Mangelinck-Noël, 17 Mars 2011, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de terminale.
- N. Mangelinck-Noël, 01 Avril 2011, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classes de lycée.

2012

- N. Mangelinck-Noël, 22 Mars 2012, Aix-Marseille Université, Journées des futurs bacheliers.
- N. Mangelinck-Noël, 27 Novembre 2012, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de collège.

1.5 Encadrement, animation et management de la recherche

Thèses et post-doctorats dirigés

2002-2005

- Kader Zaïdat (Directeur de thèse : R. Moreau, Tutrices : M.D. Dupouy & N. Mangelinck-Noël). Sujet de la thèse : *Influence d'un champ magnétique glissant sur la solidification dirigée des alliages métalliques binaires*. Thèse soutenue le 02/11/2005.

2004-2007

- Hyejin Jung (Directeur de thèse : B. Billia, Tutrice : N. Mangelinck-Noël). Sujet de la thèse: *Etude de la transition colonnaire-équiaxe lors de la solidification dirigée d'alliages métalliques*. Thèse débutée le 01/12/2004 et soutenue le 28/09/07.

2008-2009

- Dr José Eduardo Spinelli (Encadrante : N. Mangelinck-Noël). Post-doctorat sur contrat dans le cadre des projets CETSOL et ARCUS. Sujet du post-doctorat: *Simulation de la transition colonnaire-équiaxe à l'aide d'un code de simulation stochastique (XR2Sol+CAFE) et expériences de solidification dirigée de l'Al-Fe*. Début le 01/10/08, Fin : 30/05/2009.

2008-2010

- Dr Kleber Sabat Da Cruz (Encadrante : N. Mangelinck-Noël). Post-doctorat CNRS. Sujet du post-doctorat: *Expériences de solidification dirigée de l'alliage Al-Si 7,0 pds% en présence d'ACRT et simulation du dispositif de solidification dirigée*. Début le 01/11/2008, Fin : 01/11/2010.

2010-

- Amina Tandjaoui (Directeur de thèse : B. Billia, Tutrice : N. Mangelinck-Noël). Sujet de la thèse: *Solidification du silicium photovoltaïque multi-cristallin. Caractérisation in situ et en temps réel par imagerie X synchrotron*. Début le 01/10/2010.

2012-

- Dr. Dong Rong Liu (Encadrante : N. Mangelinck-Noël & Ch-A. Gandin, CEMEF Mines ParisTech, Sophia Antipolis). Sujet du post-doctorat: *Caractérisation d'expériences de solidification en microgravité et simulations numériques*. Début le 01/01/2012 pour deux ans.

❖ Autres encadrements

2002

- C. Haon (Taux d'encadrement : 50%), Ecole nationale supérieure d'électrochimie et d'électrometallurgie, stage d'application industrielle, Mai-Août 2002: *Etude de la solidification de lingots de silicium photovoltaïque*.

2003

- Y. Dehamna (75%), DEA Energétique Physique de l'école nationale supérieure de physique de Grenoble, Mars-Juin 2003 : *Caractérisation de la solidification d'alliages in situ par rayonnement synchrotron*.
- L. Sylla (50%), DEA Energétique Physique de l'école nationale supérieure de physique de Grenoble, Mars-Juillet 2003 : *Solidification dirigée en présence de convection naturelle ou forcée. Microstructures dendritique équiaxes*.
- H. Hodroj (50%), DEA Energétique Physique de l'école nationale supérieure de physique de Grenoble, Mars-Juin 2003 : *Origine des grains dans le silicium photovoltaïque*.

2004

- J. Perrin (50%), Maîtrise de Physique (Université de Provence), Mai-Juin 2004: *Analyse d'images appliquée à la solidification cellulaire et dendritique d'alliages métalliques*.
- N. Fontaine (25%), Maîtrise de Physique (Université Paul Cézanne), Juin 2004: *Analyse d'images interférométriques de l'interface de solidification d'alliages organiques transparents*.

2005

- N. Parigi (75%), IUT Marseille, Avril-Juin 2005 : *Réalisation d'un programme d'acquisition de températures pour un dispositif de croissance dirigée*.
- H. Bidak (75%), Ecole universitaire d'ingénieurs (Clermont-Ferrand), Mai-Juin 2005 : *Analyse d'images appliquée à la solidification cellulaire et dendritique d'alliages métalliques*.

2006

- M. Maurel (75%), Ecole d'ingénieurs universitaire (université Pierre et Marie-Curie, Paris), Juin-Juillet 2006 : *Modélisation de la transition colonnaire-équiaxe*.

2007

- Z. Yanbo (100%), Master Pro Maintenance Industrielle (Université François Rabelais, Tours), Avril-Juillet 2007 : *Simulation de la structure de grains dans des expériences en fusée sonde*.

2010

- C. Carrière (50%), Master 1, Matériaux, Mars-Juillet 2010 : *Etude de la structure de grains lors de la solidification de Silicium pour des applications photovoltaïques. Reconstruction 3D.*
- F. Da Costa Moreira (100%), Ingénieur Ecole Polytechnique Universitaire de Marseille en 3^{ème} année, Mars-Juillet 2010 : *Solidification du silicium polycristallin pour les applications photovoltaïques.*
- C. Campeneire (100%), 2^{ème} année DUT, Avril-Juin 2010, *Automatisation d'un four de croissance dirigée et mesures associées.*

2011

- S. Zhang (100%), Master 1, Matériaux, Avril-Juillet 2011 : *Caractérisation d'expériences de solidification d'alliages métalliques en microgravité.*

2012

- J. Perrin-Toinin (70%), Master 1, Matériaux, Avril-Juillet 2012 : *Caractérisation de la structure de grains, des défauts et des propriétés d'échantillons de silicium multi-cristallin pour les applications PV.*

2013

- Y. Xi (70%), Master 2, INSA de Lyon, Mars-Juillet 2013 : *Caractérisation de la surfusion et des ségrégations dans le silicium procédé RST pour les applications PV.*
- T. Riberi-Béridot (60%), Master 1, Matériaux, Avril-Juillet 2012 : *Caractérisation des grains et des défauts formés au cours de la solidification du silicium multi-cristallin par imagerie X, diffraction X, microscopie et, lien avec les propriétés électriques.* Projet en collaboration avec les équipes DNO et OptoPV dans la cadre de l'axe Transverse Matériaux pour l'Energie de l'IM2NP.

❖ Responsabilités d'intérêt général

- Responsable de la salle chimie et des méthodes de caractérisation métallographiques au laboratoire EPM (2001-2002).
- Responsable de l'organisation des séminaires du département Matériaux et Nanosciences de l'IM2NP depuis 2007.

❖ Coordination/Responsabilité de projets

- Coordinatrice du projet : Caractérisation et compréhension de la cristallisation du Silicium photovoltaïque: imagerie X synchrotron (Projet ANR Si-X dans le cadre de l'ANR HABISOL) : 2009-2013.
- Coordinatrice du PPF (Plan Pluri Formation) « Contrôle actif de la structure de grains dans les procédés de solidification : expériences et simulations » de l'Université Paul Cézanne : 2008-2011.
- Coordinatrice du projet « Contrôle de la structure de grains et de la micro et macro-ségrégation lors de la solidification d'alliages métalliques. Influence de la convection naturelle et forcée » dans le cadre du projet ARCUS I (Construction d'un espace scientifique et technologique Brésil/ Provence-Alpes-Côte d'Azur) : 2008-2009.
- Coordinatrice du sous-projet « Matériaux avancés au service du développement durable. Silicium photovoltaïque pour cellules solaires et alliages métalliques pour des transports économes

en énergie» dans le cadre du projet ARCUS II (Construction d'un espace scientifique et technologique Brésil/ Provence-Alpes-Côte d'Azur) : 2011-2013.

- Responsabilité du projet de collaboration avec l'entreprise Solarforce 2013-2014.

1.6 Transfert technologique, relations industrielles et valorisation

Contrats de recherche

1. Contrat de collaboration de recherche avec Photowatt SA, France : Etude du procédé POLIX 240. Amélioration du procédé de solidification du silicium multi-cristallin (2001-2004).

2. Contrat de collaboration de recherche avec Métallor, Suisse : Application du brassage électromagnétique à la coulée continue de métaux précieux (2003).

3. Contrat de prestation de recherche avec Solarforce, France : Etude de la phase de cristallisation du procédé Solarforce (Début : Mars 2013, durée 1 an).

Annexe 2. Production scientifique

1 Revues avec comité de lecture

1997

1. N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, “In situ et real-time observation of the formation and dynamics of a cellular interface in a succinonitrile-0.5wt% acetone alloy directionally solidified in a cylinder” *Journal of Crystal Growth* 181 (1997) 117.

1998

2. K. Kassner, J. M. Debierre, B. Billia, N. Noël, H. Jamgotchian, “Cellular structures in three-dimensional directional solidification: simulation and analysis”, *Physical Review E*. 57A (1998) 2849.
3. N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, “Influence of grain boundaries and natural convection on microstructure formation in cellular directional solidification of dilute succinonitrile alloys in a cylinder”, *Journal of Crystal Growth* 187 (1998) 516.
4. N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, “Mise en ordre du réseau cellulaire à l’interface solide-liquide d’un alliage transparent en croissance dirigée avec convection”, *Entropie*, 2, 215 (1998) 74.

2000

5. N. Noël, F. Zamkotsian, H. Jamgotchian, B. Billia, “Optical device dedicated to the non-destructive observation and characterization of the solidification of bulk transparent alloys *in situ* and in real time”, *Measurement Science and Technology*, 11, 66 (2000).
6. B.K.A. Ngoi, K. Venkatakrishnan, B. Tan, N. Noël, Z. W. Shen, C.S. Chin, C. J. Abraham, “Two-axis scanning laser Doppler vibrometer for micro-scale characterization”, *Optics Communications*, 182, (2000) 175.

2003

7. F. Barvinschi, C. Stelian, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, “Modelling the multi-crystalline silicon ingots solidification process in a vertical square furnace”, *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 5, (2003), 293.

2005

8. N. Bergeon, R. Trivedi, B. Billia, B. Echebarria, A. Karma, S. Liu, C. Weiss, N. Mangelinck-Noël, “Necessity of investigating microstructure formation during directional solidification of transparent alloys in 3D”, *Advances in Space Research* 36 (2005) 80-85.
9. T. Schenk, H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, G. Reinhart, V. Cristiglio, N. Mangelinck-Noël, H. Klein, J. Härtwig, B. Billia, J. Baruchel, “Application of Synchrotron X-ray imaging to the Study of Directional Solidification of Aluminium – based Alloys”, *Journal of Crystal Growth*, 275/1-2, (2005) 201-208.
10. N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, V. Cristiglio, M.-D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, “In Situ Analysis of the Equiaxed Growth of Aluminium-Nickel Alloys by X-Ray Radiography at ESRF”, *Journal of physics D: Applied Physics*, 38, (2005), A28-A32.
11. R. Ernst, N. Mangelinck-Noël, J. Hamburger, C. Garnier, P. Ramoni, “Grain size reduction by electromagnetic stirring inside gold alloys”, *European Physical Journal: Applied Physics*, 30, (2005) 215-222.
12. R. Trivedi, N. Bergeon, B. Billia, B. Echebarria, A. Karma, S. Liu, N. Mangelinck-Noël, C. Weiss, “In situ characterisation of interface-microstructure dynamics in 3D directional solidification of model transparent alloys”, *Microgravity Science and Technology*, 16, (2005) 133.

13. G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, J. Gastaldi, B. Billia, P. Pino, J. Härtwig, J. Baruchel, "Investigation of columnar-equiaxed transition and equiaxed growth of aluminium based alloys by X-ray radiography", *Materials Science & Engineering A*, 413-414, (2005) 384-388.
14. C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Effects of the interface curvature on cellular and dendritic microstructures", *Materials Science and Engineering A*, 413-414, (2005) 296-301.

2006

15. K. Zaïdat, T. Ouled-Khachroum, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, MD. Dupouy, and R. Moreau, "Effect of Travelling Magnetic Field on the Directional Solidification of refined Al-3.5 wt %Ni alloys", *Materials Science Forum*, 508, (2006) 221-226.
16. G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, "In Situ and Real Time Investigation of Directional Solidification of Al -Ni Alloys by Synchrotron Radiography", *Materials Science Forum*, 508, (2006) 75-80.
17. C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Effects of the interface curvature and dendrite orientation in directional solidification of bulk transparent alloys", *Materials Science Forum*, 508, (2006) 337-342.
18. Ch-A. Gandin, B. Billia, G. Zimmermann, D.J. Browne, M.D. Dupouy, G. Guillemot, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, L. Sturz, S. Mc Fadden, J. Banaszek, Y. Fautrelle, K. Zaïdat, A. Ciobanas, "Columnar to Equiaxed Transition in SOLidification Processing (CETSOL): a project of the European Space Agency (ESA) – Microgravity Applications Promotion (MAP) Programme", *Materials Science Forum*, 508, (2006) 393-404.
19. B. Billia, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, J. Gastaldi, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, V. Cristiglio, B. Grushko, H. Klein, "Studies by *in situ* and real time synchrotron imaging of interface dynamics and defect formation in solidification processing", *Advances in science and technology*, 46, (2006) 1-10.
20. J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, H. Klein, J. Härtwig, N. Mangelinck-Noël, B. Grushko, H. Nguyen Thi, P. Pino, B. Billia and J. Baruchel, "In situ observation of pore evolution during melting and solidification of Al-Pd-Mn quasicrystals by synchrotron X-ray radiography", *Philosophical Magazine*, 86, 3-5 (2006) 335-340.
21. H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, V. Cristiglio, B. Billia, B. Grushko, J. Härtwig, H. Klein, J. Baruchel, "In situ and real-time probing of quasicrystal solidification dynamics by synchrotron imaging", *Physical Review E*, 74, (2006) 031605-1/6.

2007

22. A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, J. Härtwig, J. Baruchel, B. Billia, "Real-time and *in situ* solidification of Al-based alloys investigated by synchrotron radiation: a unique experimental set-up combining radiography and topography techniques", *Physica Status Solidi A*, 204 (Issue 8), (2007) 2721-2727.
23. K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, R. Moreau, "Control of melt convection by a travelling magnetic field during the directional solidification of Al-Ni alloys", *Compte Rendu de Mécanique*, 335 (2007), 330-335.
24. H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, B. Billia, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Härtwig, J. Baruchel, "In situ and real-time investigation of columnar to equiaxed transition in metallic alloys", *Metallurgical and Materials Transactions A*, A38 (2007) 1458-1464.

25. B. Billia, J. Gastaldi, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, B. Grushko, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, "Growth structures, interface dynamics and stresses in metallic alloy solidification: *In situ* synchrotron X-ray characterisation", *Trans. Indian Inst. Met.* 60, N°2-3, April-June (2007) 287-291.
 26. J. Gastaldi, B. Billia, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, "In situ synchrotron X-ray imaging of the solidification progress in metallic alloys", *Trans. Indian Inst. Met.* 60, N°2-3, April-June (2007) 281-286.
 27. N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, "Planar front-equiaxed growth transition in semiconductor solidification: application to photovoltaic silicon", *Trans. Indian Inst. Met.* 60, N°2-3, April-June (2007) 93-97.
 28. M. Feuerbacher, C. Thomas, J.P.A Makongo, S. Hoffmann, W. Carrillo-Cabrera, R. Cardoso, Y. Grin, G. Kreiner, J-M. Joubert, T. Schenk, J. Gastaldi, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, P. Donnadieu, A. Czyrska-Filemonowicz, A. Zielinska-Lipiec, B. Dubiel, T. Weber, P. Schaub, G. Krauss, V. Gramlich, J. Christensen, S. Lidin, D. Fredrickson, M. Mihalkovic, W. Sikora, J. Malinowski, S. Bruehne, T. Proffen, W. Assmus, M. De Boissieu, F. Bley, J-L. Chemin, J. Schreuer, W. Steurer, "The Samson phase, β -Mg₂Al₃, revisited", *Z. Kristallogr.*, 222 (2007) 259-288
 29. J. Gastaldi, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, T. Schenk, J. Härtwig, B. Grushko, H. Klein, A. Buffet, J. Baruchel, H. Jung, P. Pino, B. Przepiarczyński, "In situ study of the quasicrystal growth by synchrotron X-ray imaging" *Philosophical Magazine* 87, 18-21 (2007) 3079-3087.
- 2008**
30. B.H. Zhou, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, Q.S. Liu, C.W. Lan, "Comparative study of the influence of natural convection on directional solidification of Al - 3.5wt% Ni and Al – 7,0 wt% Si alloys", *Advances in Space Research*, 41 (2008) 2112-2117.
 31. G. Reinhart, A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, "In Situ and Real-Time Analysis of the Formation of Strains and Microstructure Defects during Solidification of Al-3.5 Wt Pct Ni Alloys", *Metallurgical Materials Transactions A*, A39 (2008) 865-874.
 32. H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, A. Buffet, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, N. Bergeon, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, "In situ and Real-time analysis of TGZM phenomena by synchrotron X-ray radiography", *Journal of Crystal Growth*, 310 (2008) 2906-2914.
 33. S. McFadden, L. Sturz, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Zimmermann, B. Billia, D.J. Browne, D. Voss, D. Jarvis, "Validation of a Front-Tracking Model of the Columnar to Equiaxed Transition using Solidification Results from the Maxus 7 Microgravity Platform", *Journal Japan Society Microgravity Application*, 25 (2008) 489-494
 34. N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, "Modelling of the transition from a planar faceted front to equiaxed growth: Application to photovoltaic polycrystalline silicon", *Journal of Crystal Growth*, 311, 1 (2008), 20-25.
 35. A. Noeppel, O. Budenkova, G. Zimmermann, L. Sturz, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, H. Nguyen-Thi, B. Billia, Ch-A. Gandin, Y. Fautrelle, "Numerical Modelling of Columnar to Equiaxed Transition – Application to Microgravity Experiments", *International Journal of Cast Metal Research*, 22, n°1-4, (2008), 34-38.
 36. H. Jung, N. Mangelinck-Noël, C. Bergman, B. Billia, "Determination of the nucleation undercooling of Al-5.0wt%Ti-1.0wt%B refining particles in Al-based alloys using DSC", *J. Alloys Compounds*, 477, (2008), 622-627.

2009

37. H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, and J. Baruchel, "Fragmentation in Al-7,0 wt%Si alloy studied in real-time by X-ray synchrotron techniques", *International Journal of Cast Metal Research*, 22, n°1-4, (2009), 208-211.
38. H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, "Columnar to Equiaxed Transition during Directional Solidification in Refined Al – based alloys", *Journal of Alloys and Compounds*, 484, (2009), 739-746.
39. H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, G. Reinhart, A. Buffet, "Directional Solidification Processing on CET in Al-Based Alloys", *Metals and Materials International*, 15, (2009), 21-26.
40. C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Cellular pattern dynamics on a concave interface in three-dimensional directional solidification", *Physical Review E*, 79, (2009), 011605.
41. J.E. Spinelli, M.V. Cante, N. Cheung, N. Mangelinck-Noël, A. Garcia, "SEM characterization of Al₃Ni intermetallics and its influence on mechanical properties of directionally solidified hypoeutectic Al-Ni alloys", *Materials Science Forum*, 636-637, (2009), 465.
42. A. Bogno, H. Nguyen-Thi, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, E. Boller, T. Schenk, J. Baruchel, "In situ analysis of dendritic equiaxed microstructure formation in Al-Cu alloys by synchrotron X-ray radiography", *Trans. Indian Inst. Met.* 62, (2009), 427.
43. N. Bergeon, C. Weiss, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Interferometric method for the analysis of dendrite growth and shape in 3D extended patterns in transparent alloys", *Trans. Indian Inst. Met.* 62, (2009), 455.

2010

44. A. Buffet, H. Nguyen-Thi, A. Bogno, T. Schenck, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, N. Bergeon, B. Billia, J. Baruchel, "Measurement of Solute Profiles by Means of Synchrotron X-Ray Radiography during Directional Solidification of Al – 4 wt% Cu alloys", *Material Science Forum* 649, (2010), 331.
45. Ch-A. Gandin, J. Blaizot, S. Mosbah, M. Bellet, G. Zimmermann, L. Sturz, D.J. Browne, S. Mcfadden, H. Jung, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, Y. Fautrelle, X.D. Wang, "Modelling of Heat and Solute Interactions upon Grain Structure Solidification", *Materials Science Forum* 649, (2010), 189.
46. H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Baruchel, "CET by Fragmentation during the Solidification under Natural and Forced Convection of Non-Refined Al-Based Alloys", *Materials Science Forum* 649, (2010), 343.
47. A. Bogno, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, E. Boller, J. Baruchel, "Application of Synchrotron X-Ray Radiography to the Study of Dendritic Equiaxed Microstructure Formation in Al – Cu alloys", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 268, (2010), 394.
48. B. Billia, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, H. Jung, G. Reinhart, A. Bogno, A. Buffet, J. Härtwig, J. Baruchel, T. Schenk, "In situ synchrotron X-ray characterization of microstructure formation in solidification processing of Al-based metallic alloys", *ISIJ International* 50, (2010), 1929-1935.
49. A. Noepfel, A. Ciobanas, X. D. Wang, K. Zaidat, N. Mangelinck-Noël, O. Budenkova, A. Weiss, G. Zimmermann and Y. Fautrelle, "Influence of Forced/Natural Convection on Segregation During the Directional Solidification of Al-Based Binary Alloys", *Metallurgical Materials Transactions B* 41, (2010), 193-208.

50. P. Goulart, J.E. Spinelli, N. Cheung, N. Mangelinck-Noël, A. Garcia, “Al-Fe hypoeutectic alloys directionally solidified under steady state and unsteady state conditions”, *Journal Alloys Compounds* 504, (2010), 205-210.
51. A. P. Silva, J.E. Spinelli, N. Mangelinck-Noël, A. Garcia, “Microstructural development during transient directional solidification of hypermonotectic Al-Bi alloys”, *Materials and Design* 31, (2010), 4584-4591.

2011

52. A. Bogno, H. Nguyen Thi, A. Buffet, G. Reinhart, B. Billia, N. Mangelinck Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, T. Schenk, “Analysis by synchrotron X-ray radiography of convection effects on the dynamical evolution of the solid-liquid interface and solute distribution during initial solidification transient.”, *Acta Materialia*, 59, (2011), 4356-4365.
53. A. Bogno, H. Nguyen Thi, B. Billia, G. Reinhart, N. Mangelinck Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Baruchel, “*In situ* and real-time analysis of the growth and interaction of equiaxed grains by synchrotron X- ray radiography”, *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 27 (2011) 012089.
54. N. Mangelinck-Noël, J E Spinelli, Ch-A. Gandin, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, B. Billia, “A method to determine the active particle distribution in a refined alloy”, *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 27 (2011) 012017.
55. G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, T.Schenk, J. Baruchel, “CET during the solidification of refined Al-3.5wt%Ni alloys and characterization of the subsequent grain structure”, *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 27 (2011) 012011.
56. K. Sabat Da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, B Billia, “Distributions of structures and solute in directionally solidified Al – 7.0 wt % Si”, *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 27 (2011) 012090.
57. A. Bogno, G. Reinhart, A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, “*In situ* analysis of the influence of convection during the initial transient of planar solidification”, *Journal of Crystal Growth*, 318 (2011) 1134.
58. G. Zimmermann, L. Sturz, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, H Nguyen Thi, Ch-A. Gandin, D.J. Browne, W.U. Mirihanage, “Investigation of columnar-to-equiaxed transition in solidification processing of AlSi alloys in microgravity-the CETSOL project”, *Journal of Physics: Conference Series*, 327 (2011) 012023.

2012

59. G. Reinhart, Ch.-A. Gandin, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, and J. Baruchel, “Direct simulation of an *in situ* and real-time X-ray solidification experiment”, *IOP Conference Series:Materials Science and Engineering*, 33 (2012) 012077.
60. A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, J-J. Furter, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, X. Guichard, “Real time observation of the directional solidification of multicrystalline silicon: X-ray imaging characterization”, *Energy Proceedia*, 27 (2012) 82-87.
61. J. Wang, Y. Fautrelle, Z. M. Ren, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Salloum Abou Jaoude, Y. B. Zhong, I. Kaldre, A. Bojarevics, L. Buligins, “Thermoelectric magnetic force acting on the solid during directional solidification under a static magnetic field”, *Journal of Applied Physics*, 101 (2012) 251904.

2013

62. A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, X. Guichard, “Twinning occurrence and grain competition in multicrystalline silicon during solidification”, *C. R. Physique*, 14 (2013) 141.

63. J. Wang, Z. Ren, Y. Fautrelle, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Salloum, Y. Zhong, I. Kaldre, A. Bojarevics, "Modification of liquid/solid interface shape in directionally solidifying Al-Cu alloys by transverse magnetic field", *Journal of Materials Science*, 48 (2013) 213.
64. G. Reinhart, Ch-A. Gandin, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, J.E. Spinelli, J. Baruchel, B. Billia, "Influence of natural convection during upward directional solidification: a comparison between in situ X-ray radiography and direct simulation of the grain", *Acta Materialia*, (2013) Accepted.
65. A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, "Investigation of grain boundary grooves at the solid-liquid interface during directional solidification of high purity silicon: characterization in situ by X-ray imaging", *Journal of Crystal Growth*, 377 (2013) 203.

2 Actes de colloques avec comité de lecture

1996

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, "In situ and real-time observation by optical methods of cellular directional solidification of a transparent alloy in a cylinder" *ESA Symposium Proceedings on Space Station Utilisation*, ESOC, Darmstadt, Germany, 30 Sept.-2 Oct. 1996 (SP-385, December 1996).

1997

- H. Jamgotchian, N. Noël, B. Billia, *Joint Xth European and VIth Russian Symposium on Physical Sciences in microgravity*, St. Petersburg, Russia, 15-21 June 1997.
- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, *J.E.T.C. V* (Fifth European Meeting of Contemporary Thermodynamics), Toulouse, 16-19 September 1997.

2002

- C. Stelian, F. Barvinschi, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, "Numerical Modelling of Radiative Heat Transfer During the Solidification Process of Multi-crystalline Silicon", *AMS-2002 Workshop*, 12-14 September 2002, Timisoara, Romania.
- F. Barvinschi, C. Stelian, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, "Modelling the mc-Si ingots solidification process in a vertical square furnace", *AMS-2002 Workshop*, 12-14 September 2002, Timisoara, Romania.

2005

- K. Zaïdat, T. Ouled-Khachroum, G. Vian, C. Garnier, N. Mangelinck-Noël, MD. Dupouy, and R. Moreau, "Directional solidification of refined Al-3.5 wt % Ni under natural convection and under a forced flow driven by a travelling magnetic field", *Journal of Crystal Growth* (Special issue: Proceedings of the 14th International Conference on Crystal Growth and the 12th International Conference on Vapor Growth and Epitaxy - Edited by T.Duffar, M.Heuken and J.Villain), 275/1-2, (2005) e1501-e1505.

2006

- K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, R. Moreau, "Control of the solidification of Al-Ni alloys using a travelling magnetic field: macrosegregation", *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, Ch. Gandin, M. Bellet Eds (TMS-The Minerals, Metals, Materials Society, Warrendale, USA, 2006) 341-348.
- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, "Columnar to equiaxed transition in directional solidification processing of aluminium alloys", *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, Ch. Gandin, M. Bellet Eds (TMS-The Minerals, Metals, Materials Society, Warrendale, USA, 2006) 399-406.
- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, J. Gastaldi, J. Härtwig, J. Baruchel, "In situ observation of transition from columnar to equiaxed growth

in Al-3.5wt%Ni alloys by synchrotron radiography”, *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI*, Ch. Gandin, M. Bellet Eds (TMS-The Minerals, Metals, Materials Society, Warrendale, USA, 2006) 359-366.

2007

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, L. Sturz, G. Zimmermann, “Columnar to equiaxed transition in non refined Al-based alloys during directional solidification in microgravity and on earth”, *Solidification Processing SP07*, H. Jones Ed. (University of Sheffield, 2007) p. 186
- N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, H. Jung, B. Billia, A. Buffet, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Hartwig, J. Baruchel, “Dynamics of Al-based alloy solidification by *in situ* and in real-time Synchrotron X-ray Radiography and Topography”, *Solidification Processing SP07*, H. Jones Ed. (University of Sheffield, 2007) p. 331
- S. Mcfadden, L. Sturz, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Zimmermann, B. Billia, D. J. Browne, “Validation of a Front-Tracking Model of the Columnar to Equiaxed Transition using Solidification Results from the Maxus 7 Microgravity Platform”, *International Symposium on Physical Sciences in Space*, October 2007, Japan

2012

- J.W. Aveson, G. Reinhart, B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T.A. Lafford, C.A. Vie, J. Baruchel, H.J. Stone, “Observation of the initiation and propagation of solidification cracks by means of *in situ* synchrotron X-ray radiography”, *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XIII*, 17-22 Juin 2012, Schlaldming, Austria.
- L. Sturz, G. Zimmermann, Ch-A. Gandin, B. Billia, N. Mangelinck, H. Nguyen-Thi, D. J. Browne, W. U. Mirihanage, D. Voss, C. Beckermann, A. Karma, “ISS Experiments of Columnar to Equiaxed Transition in Solidification Processing”, *TMS 2012*, 11-15 Mars 2012, Orlando, Etats-Unis.
- J. Wang, Y. Fautrelle, ZM. Ren, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Saloum Abou Jaoude, YB. Zhong, I. Kaldre, A. Bojarevics, “*In situ* analyzing the Influence of Thermoelectromagnetic Convection on the Nucleation ahead of the Advancing Interface during Directional Solidification”, *7th International Conference on Electromagnetic Processing of Materials EPM2012*, 22-26 Octobre 2012, Beijing, Chine.
- J. W. Aveson, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, T.A. Lafford, H.J. Stone, N.D'Souza, “Dendrite Bending during directional solidification”, *Superalloys 2012*, 9-13 Septembre 2012, Champion, Etats-Unis.

Actes de colloques

2000

- B.K.A Ngoi, G. Udupa, P.S. Sreejith, N. Noël, Y.B.M. Noor and C.J. Abraham, “Nanometrology with atomic microscope for ultra-precision diamond turned and polished wafer surface”. *ICoPE'2000 (International Conference on Precision Engineering)*, Singapore, 21-23 March 2000.

2003

- F. Barvinschi, A. Hodroj, L. Sylla, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar et H. Boulechfar, F. Durand, Rencontres et journées techniques sur les matériaux et procédés pour la conversion photovoltaïque de l'énergie solaire, *Séminaire ADEME-CNRS* des 18 & 19 novembre 2003 à Sophia-Antipolis.

2004

- N. Le Quang, G. Goaer, F. Coustier, M. Gauthier, T. Duffar, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, F. Barvinschi, “Thickness reduction of large size high efficiency

screen-printed multicrystalline silicon solar cells – possibilities and limitations for industrial production”, *19th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition*, Juin 2004.

- L. Sylla, A. Hodroj, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, “Measurement of undercooling for better understanding of solidification phenomena during the elaboration of polycrystalline silicon”, *19th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition*, 7-11 June 2004, Paris, France.

2005

- N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, D. Ballutaud, N. Le Quang, G. Goaer, “Analysis of the occurrence of small grains during the solidification of PV Si”, *20th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition*, 6-10 June 2005, Barcelone, Espagne.

2006

- R. Marcout, G. Raymond, B. Martin, G. Cambon, B. Zappoli, F. Duclos, S. Barde, D. Beysens, Y. Carrabos, C. Lecoutre, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, “DECLIC : a facility to investigate fluids and transparent materials in microgravity conditions”, *International Astronautical Congress*, 2-6th October 2006, Valence, Espagne.

2007

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, C. Bergman, B. Billia, “Surfusion de nucléation déterminée par analyse calorimétrique différentielle (DSC) dans des alliages Al-3,5%pds Ni et Al-7,0 %pds Si affinés ou non affinés”, *33^{èmes} Journées d’Etude des Equilibres entre Phases* 28 au 30 Mars 2007, Lyon, France.

2010

- G. Pont, S. Barde, Ph. Bioulez, D. Blonde, B. Zappoli, Y. Garrabos, C. Lecoutre, D. Beysens, N. Bergeon, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, A. Ramirez, R. Trivedi, “DECLIC First Results on Orbit”, *61st International Astronautical Congress (IAC)*, 2010, Prague, République Tchèque
- K. Sabat da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, B. Billia, “Modelling and Experimental Characterization of the Microstructure and Grain Structure of Al-7,0 wt%Si Directionally Solidified”, *61st International Astronautical Congress (IAC)*, 2010, Prague, République Tchèque

2012

- L. Sturz, G. Zimmermann, Ch-A. Gandin, B. Billia, N. Mangelinck, H. Nguyen-Thi, D. J. Browne, W. U. Mirihanage, D. Voss, C. Beckermann, A. Karma, “ISS-experiments and modelling of Columnar-to-Equiaxed Transition in Solidification Processing”, *Materials Research in Microgravity 2012: Proceedings of a symposium held at the 141st TMS 2012 Annual Meeting and Exhibition*, 11-15 Mars 2012, Orlando, Etats-Unis.
- H. Nguyen-Thi, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, “Solidification experiments conducted in low-gravity environment on metallic and transparent alloys”, 9th China-Japan-Korea Workshop on Microgravity Sciences, 29 Octobre-2 Novembre 2012, Guilin, China.

4 Autres types de publications

- T. Schenk, G. Reinhart, V. Cristiglio, J. Gastaldi, H. Klein, B. Grushko, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, J. Härtwig, B. Billia and J. Baruchel, *ESRF Spotlight* (www.ESRF.fr), octobre 2004.
- T. Schenk, H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, G. Reinhart, V. Cristiglio, N. Mangelinck-Noël, H. Klein, J. Härtwig, B. Grushko, B. Billia, J. Baruchel, “Application of synchrotron X-

ray imaging to the study of directional solidification of Aluminium-based alloys” *ESRF Highlights* (2004) 110-111.

- A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, J. Härtwig, J. Baruchel, B. Billia, “A new setup combining radiography and diffraction topography to study the solidification of Al-based alloys *in situ*”, *ESRF Highlights* (2006) 13112006.

5 Conférences invités dans des congrès

1996

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, “*In situ* and real time observation of cellular directional solidification of transparent alloy in a cylinder”, *INTSOL-96*, International Workshop on Solidification and Applications to Materials Processing, Trivandrum, Inde, 1996.

2006

- B. Billia, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck, J. Gastaldi, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, V. Cristiglio, B. Grushko, H. Klein, “Studies by *In situ* and Real-time Synchrotron Imaging of interface dynamics and defect formation in solidification processing”, *CIMTEC 2006 – 11th Int. Ceramic Congress, 4th Forum on New Materials*, Acireale, Sicile, Juin 2006.
- J. Gastaldi, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noel, B. Billia, T. Schenk, J. Härtwig, B. Grushko, H. Klein, A. Buffet, J. Baruchel, H. Jung, P. Pino, B. Przepiarczyński, “*In situ* study of quasi-crystal growth by synchrotron X-ray imaging”, *APERIODIC’06*, Zao, Miyagi, Japon, Septembre 2006.
- J. Gastaldi, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck, B. Billia, T. Schenk, J. Härtwig, B. Grushko, H. Klein, A. Buffet, J. Baruchel, H. Jung, P. Pino, B. Przepiarczyński, “Perfection and growth of icosahedral quasi-crystals studied by synchrotron x-ray imaging”, *4th Asian Workshop on Quasicrystals - AWQ4*, Xi’an, Chine, 25-28 Septembre 2006.
- B. Billia, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noel, J. Gastaldi, T. Schenk, J. Härtwig, J. Baruchel, N. Bergeon, C. Weiss, “Gravity effects in the formation of the solidification microstructure in alloys”, “Critical issues and future directions in solidification science” - *Symposium in Honor of R.K. Trivedi*, Ames, Iowa, 20-22 Septembre 2006.
- B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noel, C. Weiss, „Dendrites and multiplets in <100>-solidification of succinonitrile – 0.1 wt% camphor in a cylinder”, “Critical issues and future directions in solidification science” - *Symposium in Honor of R.K. Trivedi*, Ames, Iowa, 20-22 Septembre 2006.
- J. Gastaldi, B. Billia, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, “*In situ* synchrotron X-ray imaging of the solidification progress in metallic alloys”, *3rd Int. Conf. “Solidification Science and Processing”*, Jaipur, Inde, 19-23 Novembre 2006.
- B. Billia, J. Gastaldi, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, G. Reinhart, N. Mangelinck, B. Grushko, H. Klein, J. Härtwig, J. Baruchel, “Growth structures, interface dynamics and stresses in metallic alloy solidification: *in situ* synchrotron X-ray characterisation”, *3rd Int. Conf. “Solidification Science and Processing”*, Jaipur, Inde, 19-23 Novembre 2006.
- N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, “Planar front-equiaxed growth transition in semiconductor solidification: application to photovoltaic silicon”, *3rd Int. Conf. “Solidification Science and Processing”*, Jaipur, Inde, 19-23 Novembre 2006.

2007

- H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noel, H. Jung, B. Billia, A. Buffet, J. Hartwig, J. Baruchel, T. Schenk, “*In situ* and real-time study of directional solidification by synchrotron imaging in Al-based alloys”, *2007 TMS Annual Meeting*, Orlando, Floride, USA, 25 Février – 1er Mars 2007.
- B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noel, Control of grain structure in solidification processing of alloys”, *1st China-France Microgravity Workshop*, Pékin, Chine, 2-3 Juillet 2007.

2008

- B. Billia, “New materials, products and processes - State of the art and future perspectives of microgravity research”, Rapporteur, *Workshop “Scientific evaluation of ELIPS and future priorities - Physical Sciences”*, European Space Science Committee / European Science Foundation (ESF), Sasbachwalden, Allemagne, Février 2008.
- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Baruchel, “Columnar to equiaxed transition induced by fragmentation in non refined Al-based alloys”, *Journées Annuelles de la Société Française de Métallurgie et de Matériaux (SF2M)*, Paris, 4-6 Juin 2008.

2009

- B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noel, N. Bergeon, A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, J. Baruchel, H. Jung, J. Hartwig, P. Tafforeau, “Pattern Formation in Dendritic Directional Solidification of Al-Based Alloys: Investigation of 3D- Dendrite Shape and Dynamical Mechanical Effects by Synchrotron Live X-Ray Imaging”, *2009 TMS Annual Meeting, San Francisco, Californie, USA, 15-19 Février 2009*.
- A. Bogno, H. Nguyen-Thi, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, E. Boller, T. Schenk, J. Baruchel, “*In situ* Analysis of Dendritic Equiaxed Microstructure Formation in Al – Cu alloys by Synchrotron X-Ray Radiography”, *ICSSP-4 (Fourth Conference on Solidification Science and Processing)*, Chennai, Inde, 20-23 Novembre 2009.
- H. Nguyen-Thi, “Solidification d’alliages métalliques : Caractérisation par imagerie X-Synchrotron”, *GDR Champ de Phase, Paris, France*, 9 Novembre 2009.

2010

- B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, H. Jung, G. Reinhart, A. Bogno, A. Buffet, J. Härtwig, J. Baruchel, T. Schenk, “*In situ* and Real-time X-Ray Synchrotron Imaging of the Dynamics of Microstructure Formation in Solidification Processing of Al-based Metallic Alloys”, *SPRING-8 Workshop, Japan*, 8 Février 2010.
- B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, H. Jung, G. Reinhart, A. Bogno, A. Buffet, J. Härtwig, J. Baruchel, T. Schenk, “Dynamical Microstructure Formation in Solidification Processing of Al-based Metallic Alloys: *In Situ* and Real-Time Synchrotron X-Ray Characterization”, *CSSC 2010 - Sapporo, Japon*, 3 - 5 Février 2010.
- A. Bogno, G. Reinhart, A. Buffet, H. Nguyen-Thi, B. Billia, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, J. Baruchel, “*In situ* analysis of the influence of convection during the initial transient of solidification”, *International Conference on Crystal Growth (ICCG 16)*, Beijing, Chine, Août 2010.

2011

- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, N. Bergeon, A. Bogno, T. Schenk, “*In situ* and real-time characterization of dendritic grain structure formation during metallic alloy solidification”, *Xth Encontro Sociedade Brasileira de Materiais (SBPMAT X)*, 25-29 Septembre 2011, Gramado, Brésil.

- N. Mangelinck-Noël, “Si-X Project: Characterisation and understanding of the crystallisation of photovoltaic Silicon: X-ray synchrotron imaging”, *Annual meeting of the Norwegian Centre for Solar Cell Technology, SINTEF*, 5 Mai 2011, Oslo, Norvège.

2012

- L. Sturz, G. Zimmermann, Ch-A. Gandin, B. Billia, N. Mangelinck, H. Nguyen-Thi, D. J. Browne, W. U. Mirihanage, D. Voss, C. Beckermann, A. Karma, “ISS-experiments and modelling of Columnar-to-Equiaxed Transition in Solidification Processing”, *TMS2012*, 11-15 Mars 2012, Orlando, Etats-Unis.
- N. Mangelinck-Noël, “Etude de la croissance d’alliages à base aluminium et du silicium pour les applications photovoltaïques par radiographie et topographie X synchrotron”, *Cristech 2012*, 15-17 Octobre 2012, Carry Le Rouet, France.

6 Communications orales

1996

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, « Direct Observation by optical methods of the microstructure of the solid-liquid interface in directional solidification of transparent alloys », *ICOS96*, International Conference on the Structure of Surfaces, Aix-en-Provence, 8-12 Juillet 1996.
- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, « *In situ* and real time observation of cellular directional solidification of a transparent alloy by optical methods », *COSPAR96*, Committee on Space Research, Birmingham, 14-21 Juillet 1996.

1997

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, « Etude par des méthodes optiques de la dynamique du réseau cellulaire lors de la solidification dirigée d’alliages organiques en creuset cylindrique. Influence de la convection et des joints de grains », *Colloque annuel du GFCC (Groupe Français de Croissance Cristalline)*, Marseille, 2-4 Avril 1997.
- H. Jamgotchian, N. Noël, B. Billia, « Dynamics of cellular structure during the directional solidification of a transparent alloy in a cylinder », *Joint Xth and VIth Russian Symposium on Physical Sciences in microgravity*, Saint Petersburg, Russie, 15-21 Juin 1997.
- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, « Influence of grain boundaries and of convection on the dynamic of the cellular array », *JETC V (Cinquièmes Journées Européennes de Thermodynamique Contemporaine)*, Toulouse, France, 16-19 Septembre 1997.

2003

- N. Mangelinck-Noël, M. D. Dupouy, K. Zaïdat, L. Sylla, *Séminaire du Groupe de Recherche 2258 (« Phénomènes de Transport et Transitions de Phase en Micropesanteur »)*, Aussois, France, 26-28 Mai 2003.
- F. Barvinschi, A. Hodroj, L. Sylla, Y. Delannoy, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar et H. Boulechfar, F. Durand, *Rencontres et journées techniques sur les matériaux et procédés pour la conversion photovoltaïque de l’énergie solaire, Séminaire ADEME-CNRS*, Sophia-Antipolis, 18-19 Novembre 2003.

2004

- N. Bergeon, R. Trivedi, B. Billia, B. Echebarria, A. Karma, S. Liu, C. Weiss, N. Mangelinck, *COSPAR*, Paris, France, 19-23 Juillet 2004.
- T. Schenk, H. Nguyen Thi, J. Gastaldi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Klein, J. Härtwig, B. Billia, J. Baruchel, *ICCG14*, Août 2004.
- K. Zaïdat, T. Ouled-Khachroum, N. Mangelinck-Noël, M.D. Dupouy, R. Moreau, *Minicolloque SFP*, Nancy, 30 Août au 3 Septembre 2004.

- K. Zaïdat, T. Ouled-Khachroum, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, MD. Dupouy, and R. Moreau, “Effect of Travelling Magnetic Field on the Directional Solidification of refined Al-3.5 wt %Ni alloys”, *Solidification and Gravity*, Hongrie, 6-10 Septembre 2004.
- H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, T. Schenk, M.-D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, “*In Situ* and Real Time Investigation of Directional Solidification of Refined and Non-refined Al -Ni Alloys by Synchrotron Radiography at ESRF”, *Solidification and Gravity*, Hongrie, 6-10 Septembre 2004.
- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, *Solidification and Gravity*, Hongrie, 6-10 Septembre 2004.
- N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, M.-D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, *XTOP2004*, République Tchèque, 6-10 Septembre 2004.

2005

- G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, T. Schenk, J. Gastaldi, B. Billia, P. Pino, J. Härtwig, J. Baruchel, « Investigation of columnar-equiaxed transition and equiaxed growth of aluminium based alloys by X-ray radiography », *International conference on advances in solidification processes*, 7-10 Juin 2005, Suède.
- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, “Effects of the interface curvature on cellular and dendritic microstructures”, *International conference on advances in solidification processes*, 7-10 Juin 2005, Suède.
- K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, “Macrosegregation and grain structure during the directional solidification of Al-Ni alloys under a travelling magnetic field”, *International conference on advances in solidification processes*, 7-10 Juin 2005, Suède.

2006

- K. Zaïdat, N. Mangelinck-Noël, R. Moreau, “Control of the solidification of Al-Ni alloys using a travelling magnetic field”, *11th Int. Conf. “Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes”*, Opio, France, 28 Mai – 2 Juin 2006.
- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, J. Gastaldi, J. Härtwig, J. Baruchel, “*In situ* observation of transition from columnar to equiaxed growth in Al-3.5 wt% Ni alloys by synchrotron radiography”, *11th Int. Conf. “Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes”*, Opio, France, 28 Mai – 2 Juin 2006.
- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, J. Gastaldi, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, “Analysis of Columnar – Equiaxed Transition and Equiaxed Growth of Al – 3.5 Wt% Ni Alloys by *In Situ* Synchrotron X-Ray Radiography”, *TMS 2006*, San Antonio, Texas, Mars 2006
- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, “Study of the Dendritic Growth in Directional Solidification of Bulk Transparent Alloys”, *TMS 2006*, San Antonio, Texas, Mars 2006
- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck, B. Billia, “Solidification dirigée d’alliages transparents massifs : observation *in situ* en temps réel de la formation et de l’évolution de la microstructure interfaciale”, *GDR “Champ de Phase”*, Marseille, Septembre 2006
- G. Reinhart, H. Nguyen Thi, N. Mangelinck, B. Billia, J. Gastaldi, T. Schenk, “Étude de la solidification dirigée d’alliages métalliques par imagerie X synchrotron”, *GDR “Champ de Phase”*, Marseille, Septembre 2006
- B.H. Zhou, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, Q.S. Liu, C.W. Lan, “Influence of convection on columnar - equiaxed transition in directional solidification of aluminium-based alloys”, *36th COSPAR*, Pékin, Chine, Juillet 2006

- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, “DECLIC scientific program - directional solidification”, *57th International Astronautical Congress*, Valence, Espagne, Septembre 2006
- R. Marcout, G. Raymond, B. Martin, G. Cambon, B. Zappoli, F. Duclos, S. Barde, D. Beysens, Y. Garrabos, C. Lecoutre, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck, “DECLIC: a facility to investigate fluids and transparent materials in microgravity conditions in ISS”, *57th International Astronautical Congress*, Valence, Espagne, Septembre 2006
- A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, H. Nguyen-Thi, J. Gastaldi, N. Mangelinck-Noël, H. Jung, J. Härtwig, J. Baruchel, B. Billia, “Real-time and *in situ* solidification of Al-based alloys investigated by synchrotron radiation: a unique experimental set-up combining radiography and topography techniques”, *X-TOP 2006 - 8th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging*, Karlsruhe/Baden-Baden, Allemagne, Septembre 2006
- C. Weiss, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, “Solidification d’alliages transparents massifs: caractérisation *in situ* en temps réel de la formation et de l’évolution de la microstructure interfaciale”, *GDR CNES-CNRS “Micropesanteur Fondamentale et Appliquée”*, Fréjus, 4-6 Décembre 2006
- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia “Transition colonnaire – équiaxe en présence de convection naturelle ou forcée par rotations alternées et en microgravité”, *GDR CNES-CNRS “Micropesanteur Fondamentale et Appliquée”*, Fréjus, 4-6 Décembre 2006
- B. Billia, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, J. Gastaldi, T. Schenk, J. Hartwig, J. Baruchel, B. Grushko, “*In situ* study of the growth of CMAs (Complex Metallic Alloys)”, *CMA Workshop « Laves to Bergman project »*, Zurich, 12 Décembre 2006.

2007

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, L. Sturz, G. Zimmermann, “Columnar to equiaxed transition in non refined Al-based alloys during directional solidification in microgravity and on earth”, *5th Decennial Int. Conf. on Solidification Processing - SP07*, Sheffield, Angleterre, 23-25 Juillet 2007
- N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, H. Jung, B. Billia, A. Buffet, T. Schenk, J. Gastaldi, J. Hartwig, J. Baruchel, “Dynamics of Al-based alloy solidification by *in situ* and in real-time Synchrotron X-ray Radiography and Topography”, *5th Decennial Int. Conf. on Solidification Processing - SP07*, Sheffield, Angleterre, 23-25 Juillet 2007
- B. Billia, H. Jung, A. Buffet, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, J. Hartwig, J. Baruchel “Dynamics of dendrite deformation during solidification of metallic alloys”, *15th Int. Conf. on Crystal Growth - ICCG15*, Salt Lake City, Utah, USA, 12-17 Août 2007
- N. Bergeon, C. Weiss, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, B.H. Zhou, “Array dynamics in dendritic solidification with a concave interface: *in situ* characterization on transparent model alloys”, *2007 Biennial International Symposium of ELGRA (European Low Gravity Research Association)*, Florence, Italie, 4-7 Septembre 2007
- H. Nguyen-Thi, H. Jung, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, A. Buffet, J. Hartwig, J. Baruchel, T. Schenk, J. Gastaldi, “Gravity effects beyond fluid flow in alloy solidification”, *2007 Biennial International Symposium of ELGRA (European Low Gravity Research Association)*, Florence, Italie, 4-7 Septembre 2007
- S. McFadden, L. Sturz, H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, G. Zimmermann, B. Billia, D.J. Browne, D. Voss, D. J. Jarvis, “Validation of a Front-Tracking Model of

- the Columnar to Equiaxed Transition using Solidification Results from the Maxus 7 Microgravity Platform”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
- N. Bergeon, C. Weiss, N. Mangelinck-Noel, B. Billia, H. Singer, B.H. Zhou, “*In situ* characterization of dendrite shape and array dynamics in 3D-solidification of transparent alloys under gravity”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
 - H. Nguyen-Thi, H. Jung, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Hartwig, J. Baruchel, T. Schenk, J. Gastaldi, “*In situ* X-ray monitoring of gravity-driven effects in the dynamical formation of the dendritic microstructure during solidification processing of metallic alloys”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
 - G. Pont, S. Barde, G. Cambon, F. Duclos, B. Zappoli, Y. Garrabos, C. Lecoutre, D. Beysens, B. Billia, N. Bergeon, R. Marcout, “DECLIC- Facility for the study of crystal growth and critical fluids”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
 - D. Voss, O. Minster, M. Martella, T. Peigner, D. Jarvis, L. Ratke, S. Steinbach, B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noel, Ch-A. Gandin, G. Zimmermann, S. Rex, M. Rappaz, F. Kohler, M. Kolbe, H. Lenski, P. Neuhaus, S. Cantaloup, “Directional solidification experiments in the Materials Science Laboratory on the ISS”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
 - D. Voss, P. Behrmann, R. Lindner, S. Vincent-Bonnieu, R. Mathiesen, G. Zimmermann, H. Nguyen-Thi, L. Froyen, M. Kolbe, D.J. Browne, F. Garcia-Moreno, S. Rex, L. Sturz, G. Faivre, N. Mangelinck, S. Bottin-Rousseau, S. Akamatsu, A. Ludwig, J. Morgeritsch, “Future facilities for *in situ* solidification process observation”, *ISPS 2004 – 3rd International Symposium on Physical Sciences in Space*, Nara, Japon, 23-26 Octobre 2007
 - N. Bergeon, C. Weiss, N. Mangelinck-Noel, B. Billia, B.H. Zhou, “Caractérisation *in situ* de la dynamique du réseau dendritique et de la forme des dendrites lors de la solidification à 1g d’alliages transparents en creuset cylindrique (projet DECLIC-DSI)”, GDR CNES-CNRS “Micropesanteur Fondamentale et Appliquée”, Fréjus, 26-28 Novembre 2007
 - H. Nguyen-Thi, H. Jung, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noel, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Hartwig, J. Baruchel, T. Schenk, “Etude *in situ* des effets induits par la gravité sur la dynamique de formation de la microstructure dendritique d’alliages métalliques lors de l’élaboration par solidification”, GDR CNES-CNRS “Micropesanteur Fondamentale et Appliquée”, Fréjus, 26-28 Novembre 2007
 - G. Pont, S. Barde, G. Cambon, F. Duclos, B. Zappoli, Y. Garrabos, C. Lecoutre, D. Beysens, B. Billia, N. Bergeon, R. Marcout, “DECLIC- Facility for the study of crystal growth and critical fluids”, GDR CNES-CNRS “Micropesanteur Fondamentale et Appliquée”, Fréjus, 26-28 Novembre 2007
 - H. Jung, N. Mangelinck-Noël, C. Bergman, B. Billia, “Surfusion de nucléation déterminée par analyse calorimétrique différentielle (DSC) dans des alliages Al-3,5%pds Ni et Al-7,0 %pds Si affinés ou non affinés”, 33^{èmes} Journées d’Etude des Equilibres entre Phases, Lyon, France, 28 - 30 Mars 2007.
 - H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, B. Billia, Adeline Buffet, Jurgen Härtwig, José Baruchel, « Columnar to Equiaxed Transition and fragmentation in Al-Ni and Al-Si

alloys during directional solidification », *TMS Annual meeting*, 25 Février-1^{er} Mars 2007, Orlando, Etats-Unis.

2008

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, G. Reinhart, T. Schenk, J. Baruchel, "Fragmentation in Al-Based alloys studied in real-time by X-ray synchrotron techniques", *Second International Conference on Solidification Processes (ICASP-2)*, Leoben, Autriche, 17-20 Juin 2008
- Ch.-A. Gandin, J. Blaizot, S. Mosbah, M. Bellet, G. Zimmermann, L. Sturz, D. J. Browne, S. McFadden, H. Jung, B. Billia, N. Mangelinck, H. Nguyen Thi, Y. Fautrelle, X. Wang, "Modelling of Heat and Solute Interactions upon Grain Structure Solidification", *Fifth International Conference on Solidification and Gravity*, Miskolc, 1-4 Septembre 2008
- A. Buffet, H. Nguyen Thi, A. Bogno, T. Schenk, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, N. Bergeon, B. Billia, J. Baruchel, "Measurement of solute profiles by means of synchrotron X-ray radiography during directional solidification of Al – 4 wt% Cu alloys", *Fifth International Conference on Solidification and Gravity*, Miskolc, 1-4 Septembre 2008
- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, N. Bergeon, B. Billia, A. Buffet, J. Baruchel, "CET influenced by forced convection and fragmentation in non refined Al-based alloys", *Fifth International Conference on Solidification and Gravity*, Miskolc, 1-4 Septembre 2008
- J. Baruchel, A. Buffet, B. Billia, N. Bergeon, J. Härtwig, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen Thi, G. Reinhart, T. Schenk, "X-ray diffraction topographic 3D-study of the dendritic growth of Al-based alloys", *X-TOP 2008 - 9th Biennial Conference on High Resolution X-Ray Diffraction and Imaging*, Linz, Autriche, 15-19 Septembre 2008
- J.E. Spinelli, K. Sabat Da Cruz, N. Mangelinck-Noël, B. Billia B, H. Nguyen-Thi, G. Zimmermann, L. Sturz, Ch-A. Gandin, "Solidification dirigée d'alliages Al-Si en microgravité et au sol: transition colonnaire-équiaxe et modélisation par la méthode CAFÉ", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, Aussois, 1-3 Décembre 2008.
- A. Buffet, B. Billia, N. Bergeon, J. Härtwig, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-thi, G. Reinhart, T. Schenk, J. Baruchel, "Etude *in situ* par topographie rayons-X synchrotron de la forme 3D de dendrites lors de la solidification d'alliages à base aluminium", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, Aussois, 1-3 Décembre 2008

2009

- A. Bogno, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, E. Boller, J. Baruchel, "Application of Synchrotron X-Ray Radiography to the Study of Dendritic Equiaxed Microstructure Formation in Al – Cu alloys", *E-MRS Spring Meeting*, Strasbourg, 8-12 Juin 2009
- N. Bergeon, C. Weiss, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Interferometric method for the analysis of growth and shape of dendrites of 3D extended patterns in transparent alloys", *4th International Conference on Solidification Science and Processing (ICSSP 4)*, Chennai, Inde, 20-23 Novembre 2009
- K. Sabat da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, B. Billia, "Caractérisation expérimentale et modélisation de la structure de grains lors de la solidification d'alliages Al-7,0 %pds Si affinis", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, Balaruc, 23-25 Novembre 2009
- N. Bergeon, A. Bogno, H. Nguyen-Thi, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, "Etude de la formation de la microstructure équiaxe dendritique d'alliages Al-Cu par

application de l'imagerie X Synchrotron", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, Balaruc, 23-25 Novembre 2009

- J.E. Spinelli, M.V. Cante, N. Cheung, N. Mangelinck-Noël, A. Garcia, "SEM characterization of Al3Ni intermetallics and its influence on mechanical properties of directionally solidified hypoeutectic Al-Ni alloys", *Conférence Materiais*, Portugal, Mars/Avril 2009.
- N. Mangelinck-Noël, "Control of the grain structure and of micro/macro segregation during the metallic alloy solidification. Influence of natural and forced convection", *Colloque de restitution du projet ARCUS (Action en Région de Coopération Universitaire et Scientifique)*, Sao Paulo, Brésil, 5-7 Octobre 2009.

2010

- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, N. Bergeon, A. Bogno, A. Buffet, H. Jung, B. Billia, J. Härtwig, J. Baruchel, "Solidification of Al-based alloys: *in situ* and real-time studies using synchrotron X-ray radiography and topography", *Journées SF2M 2010, Paris, France*, Juin 2010
- A. Bogno, H. Nguyen-Thi, B. Billia, G. Reinhart, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, "Caractérisation de la microstructure et de la structure de grains équiaxes dendritiques d'alliages Al-Cu par application de l'imagerie X Synchrotron", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, La Colle-sur-Loup, 17-20 Octobre 2010
- K. Sabat da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin Ch-A., B. Billia, "Modélisation and caractérisation expérimentale de la microstructure et de la structure de grains obtenue par solidification dirigée d'Al-Si 7,0 %pds", *GDR CNES-CNRS "Micropesanteur Fondamentale et Appliquée"*, La Colle-sur-Loup, 17-20 Octobre 2010
- K. Sabat da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, B. Billia, "Modelling and Experimental Characterization of the Microstructure and Grain Structure of Al-7wt%Si Directionally Solidified", 61st International Astronautical Congress Prague, Czech Republic, 27 September-1 October 2010
- G. Pont, S. Barde, Ph. Bioulez, D. Blonde, B. Zappoli, Y. Garrabos, C. Lecoutre, D. Beysens, N. Bergeon, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, A. Ramirez, R. Trivedi, "DECLIC, FIRST RESULTS ON ORBIT", 61st International Astronautical Congress Prague, Czech Republic, 27 September-1 October 2010
- K. Sabat Da Cruz, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Effect of the ACRT on the solidification microstructure of Al-7,0 wt%Si solidified directionally under Bridgman Furnace", *IX Encontro de SBPMat (Société brésilienne de recherche sur les matériaux)*, Ouro Preto, Brésil, 24-28 Octobre 2010.
- Charles-André Gandin, Bernard Billia, Guillaume Reinhart, Nathalie Mangelinck-Noël, Henri Nguyen-Thi, "Direct simulation of an *in situ* real time X-ray solidification experiment", 75th Annual Meeting of the DPG and DPG Spring Meeting, 13-18 Mars 2010, Dresden, Allemagne.

2011

- J. W. Aveson, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, T.A. Lafford, H.J. Stone, "Grain boundary effects in the solidification of a dilute alloy", *Euromat 2011*, Montpellier, France.
- G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, Ch.-A. Gandin, J. E. Spinelli, H. Nguyen-Thi, B. Billia, J. Baruchel, "Influence of convection on the solidification of a refined Al-3.5wt%Ni alloy: comparison between real-time X-ray observation and direct simulation", *Euromat 2011*, Montpellier, France.
- A. Bogno, H. Nguyen Thi, B. Billia, G. Reinhart, N. Mangelinck Noël, N. Bergeon, T. Schenk, J. Baruchel, "*In situ* and real-time analysis of the growth and interaction of

- equiaxed grains by synchrotron X- ray radiography”, *International conference on advances in solidification processes (ICASP)*, 7-10 Juin 2011, Rolduc/Aix-La-Chapelle, Allemagne.
- N. Mangelinck-Noël, J. E. Spinelli, Ch-A. Gandin, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, B. Billia, “A method to determine the active particle distribution in a refined alloy”, *International conference on advances in solidification processes (ICASP)*, 7-10 Juin 2011, Rolduc/Aix-La-Chapelle, Allemagne.
 - G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, T.Schenk, J. Baruchel, “CET during the solidification of refined Al-3.5wt%Ni alloys and characterization of the subsequent grain structure”, *International conference on advances in solidification processes (ICASP)*, 7-10 Juin 2011, Rolduc/Aix-La-Chapelle, Allemagne.
 - K. Sabat Da Cruz, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, B. Billia, “Distributions of structures and solute in directionally solidified Al – 7.0 wt % Si”, *International conference on advances in solidification processes (ICASP)*, 7-10 Juin 2011, Rolduc/Aix-La-Chapelle, Allemagne.
 - G. Zimmerman, L. Sturz, B. Billia, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, Ch-A. Gandin, D.J. Browne, *4th International Symposium on Physical Sciences in Space (ISPS4)*, 11-15 Juillet 2011, Bonn, Allemagne.
 - A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, B. Billia, “Caractérisation *in situ* et en temps réel de la solidification du silicium multi-cristallin pour les applications photovoltaïques”, *Junior Fédésol*, 4-5 Avril 2011, Lyon, France.
- 2012**
- Ch.-A. Gandin, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, and J. Baruchel, “Direct simulation of an *in situ* and real-time X-ray solidification experiment”, *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XIII*, 17-22 Juin 2012, Schlaldming, Austria.
 - J.W. Aveson, G. Reinhart, B. Billia, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, T.A. Lafford, C.A. Vie, J. Baruchel, H.J. Stone, “Observation of the initiation and propagation of solidification cracks by means of *in situ* synchrotron X-ray radiography”, *Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XIII*, 17-22 Juin 2012, Schlaldming, Austria.
 - A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, J.-J. Furter, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, X. Guichard, “Real time observation of the directional solidification of multi-crystalline silicon: X-ray imaging characterization”, *Silicon PV12*, 3-5 Avril 2012, Leuven, Belgique.
 - H. Nguyen-Thi, B. Billia, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, “Solidification experiments conducted in low-gravity environment on metallic and transparent alloys”, *9th China-Japan-Korea Workshop on Microgravity Sciences*, 29 Octobre-2 Novembre 2012, Guilin, Chine.
 - J. Wang, Y. Fautrelle, ZM. Ren, X. Li, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, G. Salloum Abou Jaoude, YB. Zhong, I. Kaldre, A. Bojarevics, “*In situ* analyzing the Influence of Thermoelectromagnetic Convection on the Nucleation ahead of the Advancing Interface during Directional Solidification”, *7th International Conference on Electromagnetic Processing of Materials EPM2012*, 22-26 Octobre 2012, Beijing, Chine.
 - A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, “Study of the grain structure in multi-crystalline silicon during directional solidification using X-ray synchrotron imaging techniques”, *CSSC6*, 8-11 Octobre 2012, Aix Les Bains/Chambéry, France.

2013

- J.W. Aveson, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, T.A. Lafford, N. D'Souza, B. Billia, H.J. Stone, "X-ray imaging of the solidification of nickel-based superalloy CMSX4", *TMS2013*, Symposium : Characterization of Minerals, Metals and Materials 2013, 3 Mars - 7 Mars 2013, San Antonio, Texas, USA.
- G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, B. Billia, "Analysis by synchrotron X-ray imaging of the equiaxed grain evolution during Columnar-to-Equiaxed Transition in directional solidification", *TMS2013*, Symposium : Frontiers in solidification science, 3 Mars - 7 Mars 2013, San Antonio, Texas, USA.
- J.W. Aveson, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, B. Billia, T.A. Lafford, W. Li, J. Coulson, S.D. Sharples, H.J. Stone, N. D'Souza, "Sliver defects in seeded single crystal castings: insights from *in situ* time resolved X-ray imaging and orientation imaging microscopy", *AeroMat*, 2-5 Avril 2013, Bellevue, Washington, USA.
- A. Tandjaoui, N. Mangelinck-Noël, G. Reinhart, J. Perrin-Toinin, B. Billia, T. Lafford, J. Baruchel, "Grain nucleation and growth in different silicon grades during directional solidification of multi-crystalline silicon", *EMCMRE-2 (2nd Euro-Mediterranean Conference on Materials and Renewable Energies)*, 10-14 Juin 2013, Istres, France.

7 Séminaires invités

2007

- N. Mangelinck-Noël, "Directional solidification of Al-Ni, Al-Si alloys and complex metallic alloys", *Conference awarded by the Gender Mainstreaming action of the "Complex Metallic Alloys" Network of Excellence at ACCESS Materials & Processes* (Independent research center associated with the Technical University of Aachen), Aachen, Allemagne, 19 Mars 2007.

2008

- N. Mangelinck-Noël, "Real-time and *in situ* characterisation of the solidification of Al-based alloys by synchrotron X-ray imaging (radiography and topography): application to the Columnar to Equiaxed Transition issue", *Rolls-Royce Institute Centre Cambridge*, Cambridge, Angleterre, 17 octobre 2008.
- N. Mangelinck-Noël, "Directional solidification of Al-Ni, Al-Si alloys and transparent alloys: Cells, Dendrites and CET", *Université de Campinas, Campinas, Brésil*, 18 Novembre 2008.
- N. Mangelinck-Noël, "Caractérisation *in situ* et en temps réel de la solidification d'alliages à base aluminium par imagerie X synchrotron (radiographie et topographie) : transition colonnaire équiaxe", *SIMAP, Grenoble*, 11 Décembre 2008.

8 Vulgarisation

Intervention : « La métallurgie : une vieille discipline ? »

2008

- N. Mangelinck-Noël, 24 Mars 2009, Collège Viala Coste, Salon de Provence, Fête de la Science 2008, Des Scientifiques dans les classes.
- N. Mangelinck-Noël, 2 Avril 2009, Lycée Professionnel Gustave Eiffel, Aubagne, Fête de la Science 2008, Des Scientifiques dans les classes.

2010

- N. Mangelinck-Noël, 12 Octobre 2010, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de terminale S.

2011

- N. Mangelinck-Noël, 10 Mars 2011, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence).
- N. Mangelinck-Noël, 17 Mars 2011, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence).

2012

- N. Mangelinck-Noël, 22 Mars 2012, Aix-Marseille Université, Journées des futurs bacheliers.
- N. Mangelinck-Noël, 27 Novembre 2012, Maison des Sciences ESCUP (Espace Science et Culture de l'Université de Provence), classe de collège.

9 Communications par affiches

1995

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, "Observation *in situ* de la solidification dirigée d'alliages transparents", *SFP, Congrès de la Société Française de Physique*, Marseille, France, 4-8 Septembre 1995.
- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, "In situ observation of directional solidification of transparent alloys in the multiuser CHEOPS project", *9th European symposium ESA*, Berlin, Allemagne, 2-5 Mai 1995.

1996

- N. Noël, H. Jamgotchian, B. Billia, "Observation *in situ* des premiers stades de la croissance dirigée d'alliages transparents massifs", *SFP, Congrès de la Société Française de Physique, 5èmes journées de la Matière Condensée*, Orléans, France, 28-30 Août 1996.

2004

- L. Sylla, A. Hodroj, N. Mangelinck-Noël, T. Duffar, 19th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, Paris, Juin 2004.
- K. Zaïdat, T.Ouled-Khachroum, G.Vian, C.Garnier, N.Mangelinck-Noël, MD.Dupouy, and R.Moreau, ICCG14, Grenoble, Août 2004.
- T. Schenk, H. Klein, J. Gastaldi, J. Härtwig, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, J. Baruchel and B. Billia, XTOP2004, République Tchèque, 6-10 Septembre 2004.

2005

- J. Gastaldi, T. Schenk, G. Reinhart, H. Klein, J. Härtwig, N. Mangelinck-Noël, B. Grushko, H. Nguyen Thi, P. Pino, B. Billia and J. Baruchel, ICQ9, May 2005, USA

2006

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, Modelling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI, TMS (2006), France.

2007

- H. Jung, N. Mangelinck-Noël, H. Nguyen-Thi, B. Billia, A. Buffet, J. Härtwig, J. Baruchel, "Columnar to Equiaxed Transition and fragmentation in Al-Ni and Al-Si alloys during directional solidification", *2007 TMS Annual Meeting, Orlando, Floride, USA 25 Février-01 Mars 2007*.

2011

- G. Reinhart, N. Mangelinck-Noël, Ch-A. Gandin, J. E. Spinelli, H. Nguyen-Thi, B. Billia, J. Baruchel, « Influence of convection on the solidification of a refined Al-3.5wt%Ni alloy: comparison between real-time X-ray observation and direct simulation », *Euromat 2011*, 12-16 Septembre 2011, Montpellier, France.

- B. Luiz Silva, I. Jefferson Araújo, N. Mangelinck-Noël, A. Garcia, J. E. Spinelli, “*Microstructural features and microhardness of Al-Fe alloys directionally solidified under stationary conditions*” *SBPMAT 2011*, 25-29 Septembre 2011, Gramado, Brésil.

2012

- J.W. Aveson, G. Reinhart, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Noël, A. Tandjaoui, T.A. Lafford, H.J. Stone, N. D’Souza, “Dendrite Bending during directional solidification”, *Superalloys 2012*, 9-13 Septembre 2012, Champion, Etats-Unis.