



**HAL**  
open science

## Dynamique de solidification et science en micropesanteur

Mathis Plapp, Sabine Bottin-Rousseau, Silvère Akamatsu

► **To cite this version:**

Mathis Plapp, Sabine Bottin-Rousseau, Silvère Akamatsu. Dynamique de solidification et science en micropesanteur. Flash X - La revue scientifique de l'Ecole polytechnique, 2014, 16, pp.63-67. hal-01468998

**HAL Id: hal-01468998**

**<https://hal.science/hal-01468998v1>**

Submitted on 20 Feb 2017

**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.

## Dynamique de solidification et science en micropesanteur

**M. Plapp**

Physique de la Matière Condensée, Ecole Polytechnique, CNRS, 91128 Palaiseau

**S. Bottin-Rousseau et S. Akamatsu**

Institut des Nanosciences de Paris, UMR 7588, CNRS, Sorbonne Universités/UPMC, 4 place Jussieu, 75005 Paris

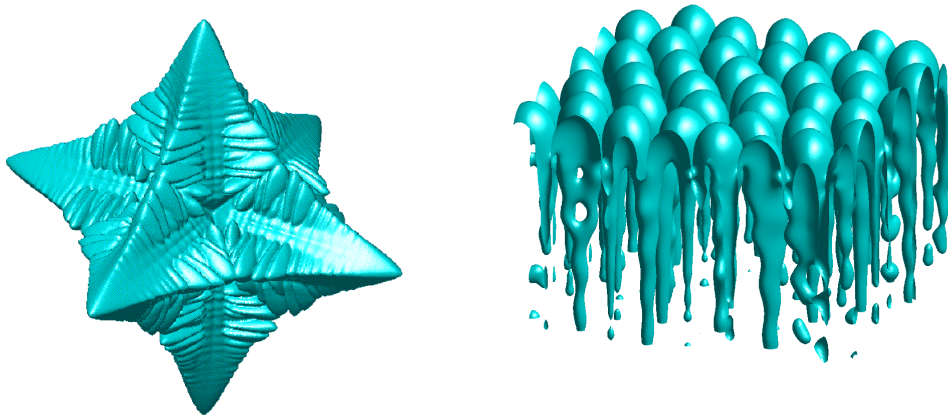
**L'étude de la formation des *microstructures de solidification* est étroitement liée, depuis plus d'une vingtaine d'années, aux programmes de *science en micropesanteur* des grandes agences spatiales. Il s'agit de s'affranchir des effets des mouvements de convection dans le liquide et de garantir une dynamique de solidification gouvernée par la seule diffusion thermique et chimique. En France, le CNES a soutenu, par un effort continu, une activité de recherche stimulante et rigoureuse, qui a jeté une lumière neuve sur des problèmes de sélection morphologique, de production de défauts topologiques et d'effets cristallographiques, dans un cadre théorique combinant la science des matériaux et la physique non-linéaire (*nonequilibrium pattern formation*). Le développement et l'appui mutuel de l'expérimentation *in situ* et de la simulation numérique résolue en temps jouent un rôle clé dans cette entreprise.**

### Formation de structures en solidification

La solidification est le processus de cristallisation des mélanges liquides le plus fréquent dans notre environnement. C'est une étape majeure dans les procédés d'élaboration de matériaux métalliques et céramiques, dont la maîtrise est un enjeu industriel important pour l'optimisation des propriétés d'usage (mécaniques, optiques, électroniques) des produits solidifiés. En bref, la solidification se produit par propagation de l'interface entre un solide et un liquide métastable. Donnons-en un exemple qui vient de la métallurgie : quand on verse un mélange métallique liquide dans un moule, on doit le refroidir pour le solidifier. Puisque l'extraction de la chaleur se fait par les parois, ces dernières sont les parties les plus froides du système. En conséquence, la cristallisation commence aux parois, et se poursuit vers le centre du moule, dans un gradient de température qui est créé par le flux de chaleur. Plus tard, quand le centre de l'échantillon s'est suffisamment refroidi, de nouveaux cristaux peuvent aussi apparaître dans le liquide (germination) et croître à température quasiment constante.

Pour des raisons thermodynamiques, le solide et le liquide en contact n'ont ni la même composition chimique, ni la même teneur en énergie interne. Pour croître, le cristal doit donc évacuer la chaleur latente de transition de phase, incorporer certains composants du liquide, et en rejeter d'autres. Cette dynamique crée des gradients dans le liquide, qui engendrent un transport par diffusion. Le couplage du mouvement de l'interface avec ces gradients de diffusion conduit à la formation de ramifications : le transport diffusif est plus efficace autour d'une aspérité (tel un effet de pointe) que devant une interface plane, qui devient ainsi morphologiquement instable. Le développement de structures de plus en plus fines est empêché par les forces capillaires, qui pénalisent la création de nouvelles interfaces trop courbées. Des structures régulières et stables peuvent se former comme résultat de l'antagonisme entre ces deux effets. Deux exemples de structures typiques des deux modes de croissance déjà décrits ci-dessus sont montrés dans la figure 1. La croissance d'un cristal isolé dans un liquide de température et composition initialement homogènes produira une *dendrite*. C'est une structure ramifiée, avec des bras principaux dont les directions de croissance sont déterminées par la structure cristalline (plus précisément, les effets capillaires sont *anisotropes*), et des bras secondaires dont la croissance résulte de fluctuations aléatoires. Il s'agit, en quelque sorte, d'un « cousin » du flocon de neige (avec une symétrie différente :

hexagonale pour les cristaux de glace, cubique pour la plupart des métaux). L'image de droite dans la figure 1 montre des structures dites cellulaires, fréquentes dans un alliage binaire solidifié en présence d'un fort gradient de température. Ici, la direction des pointes, la forme et l'espacement typique entre cellules résultent de l'interaction du gradient de température avec la diffusion chimique et les effets capillaires et cristallographiques.



**Figure 1.** A gauche : croissance libre d'un monocristal de Nickel. A droite : croissance directionnelle (vers le haut de la page) d'un front d'alliage binaire dans un gradient de température. Simulations par la méthode du champ de phase, effectuées au laboratoire PMC de l'X [1,2].

### Convection naturelle et intérêt d'expériences en micropesanteur

Les structures montrées ci-dessus sont un exemple pour un processus de formation spontanée de motifs (*pattern formation* en anglais) hors d'équilibre. Toute la dynamique du système se produit près des interfaces en cours de propagation. Les microstructures observées dans les matériaux totalement solidifiés sont une trace de cette dynamique, figée à l'arrière du front de solidification sous la forme de modulations de composition, d'une dispersion de différentes phases cristallines, ou d'arrangements de défauts de réseau. Ce phénomène d'auto-organisation produit des régimes spatio-temporels complexes, très fluctuants et multistables. La compréhension théorique de cette dynamique est un problème de physique nonlinéaire, très difficile techniquement. Ainsi, le développement d'une théorie cohérente et complète de la croissance d'une dendrite (la microstructure la plus simple et la plus répandue) a nécessité plus de quatre décennies.

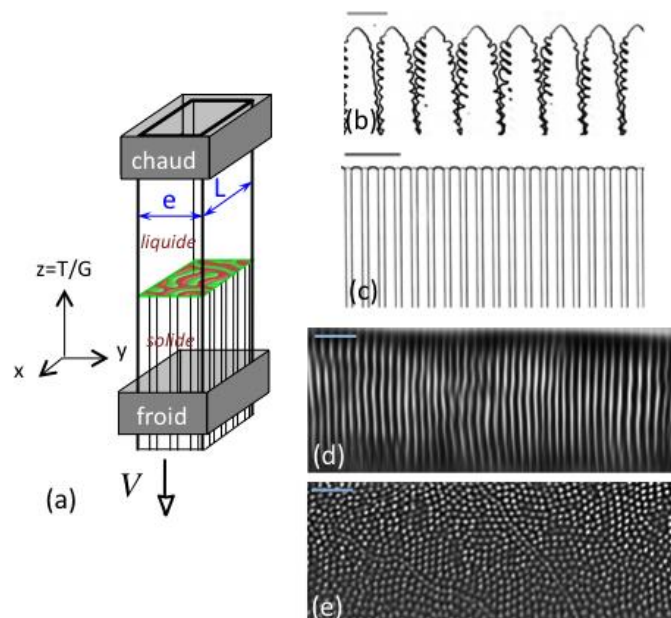
Une difficulté majeure pour le domaine est que la comparaison directe entre expériences et théories de croissance par diffusion est rendue impossible par la présence de la convection naturelle. En effet, nous avons déjà mentionné que la croissance s'accompagne nécessairement de gradients de composition chimique et/ou de température dans le liquide. Or, puisque la densité d'un mélange dépend à la fois de la température et de la composition, ces gradients déclenchent des mouvements convectifs du liquide, qui peuvent être assez violents pour engendrer même des déformations plastiques des branchements du solide. En outre, le solide n'a pas la même densité que le liquide, ce qui conduit à la sédimentation de cristaux isolés dans le liquide. De tels phénomènes sont extrêmement difficiles à prendre en compte dans des théories et modèles numériques.

Des expériences dans un environnement de micropesanteur, où la convection est absente ou du moins fortement réduite, sont donc d'un intérêt majeur pour une meilleure compréhension de la solidification. C'est pourquoi il existe une longue tradition d'expériences de solidification dans l'espace. Une expérience pionnière en micropesanteur (dans la navette Columbia) est celle de Glicksman, aux USA, qui, le premier, a établi expérimentalement les

lois de la croissance dendritique libre en régime diffusif [3]. Très récemment, une série d'expériences remarquables ont été menées par l'équipe de B. Billia (Université d'Aix-Marseille) dans la station orbitale internationale ISS (dispositif DECLIC) sur la dynamique des fronts cellulaires [4].

### Solidification in situ

Les deux expériences spatiales mentionnées ci-dessus sont des exemples d'observations de solidification in situ. On utilise des composés transparents organiques à croissance non-facettée, analogue à celle des métaux (par opposition à celle, par exemple, des semi-conducteurs et des minéraux), dans des échantillons à parois de verre. Les deux expériences-types, correspondant aux deux situations déjà décrites ci-dessus, sont la croissance isotherme d'un monocristal dans un liquide uniformément sous-refroidi, et la solidification directionnelle, durant laquelle l'échantillon est déplacé à vitesse constante  $V$  vers le côté froid d'un gradient thermique axial fixe  $G$  (figure 2). Dans le deuxième cas, en régime stationnaire (vitesse de solidification égale à  $V$ ), l'interface solide-liquide suit, en moyenne, une isotherme, en principe plane et perpendiculaire à l'axe de tirage. Des résultats très importants ont été obtenus en solidification directionnelle en échantillons minces (d'épaisseur  $\approx 10 \mu\text{m}$ ). La solidification s'effectue alors en géométrie quasi bidimensionnelle (l'interface solide-liquide apparaît comme une simple ligne au microscope optique) et la convection est bloquée par effets de couche visqueuse. Des exemples de structures observées par cette méthode sont également montrés dans la figure 2. L'observation de structures de solidification in situ en échantillons massifs est un défi technique bien supérieur. Pour la croissance de structures cellulaires, le dispositif DECLIC utilise des échantillons cylindriques de diamètre centimétrique, avec observation de face (optique immergée). Pour la solidification eutectique (voir plus loin), la méthode mise au point à l'INSP permet l'observation en échantillons semi-massifs ( $\approx 500 \mu\text{m}$ ) de section rectangulaire, avec un fort contraste entre les deux phases solides en croissance couplée [5].



**Figure 2.** (a) Solidification directionnelle (schéma). Un échantillon d'alliage (de section rectangulaire ;  $L$  est centimétrique) est déplacé à vitesse fixe  $V$  d'une zone chaude vers une zone froide. Colonnes de droite : structures de solidification observées in situ dans des alliages transparents modèles (barres d'échelle :  $100 \mu\text{m}$ ). Échantillons minces ( $e \approx 10 \mu\text{m}$ ) en vue de côté (axe  $y$ ) : (b) dendrites ; (c) lamelles eutectiques. Échantillons semi-massifs (la hauteur de l'image correspond à l'épaisseur  $e = 350 \mu\text{m}$  de l'échantillon) en vue de dessus (axe  $z$ ) : (d) lamelles, et (e) fibres eutectiques.

## Simulations numériques par la méthode du champ de phase

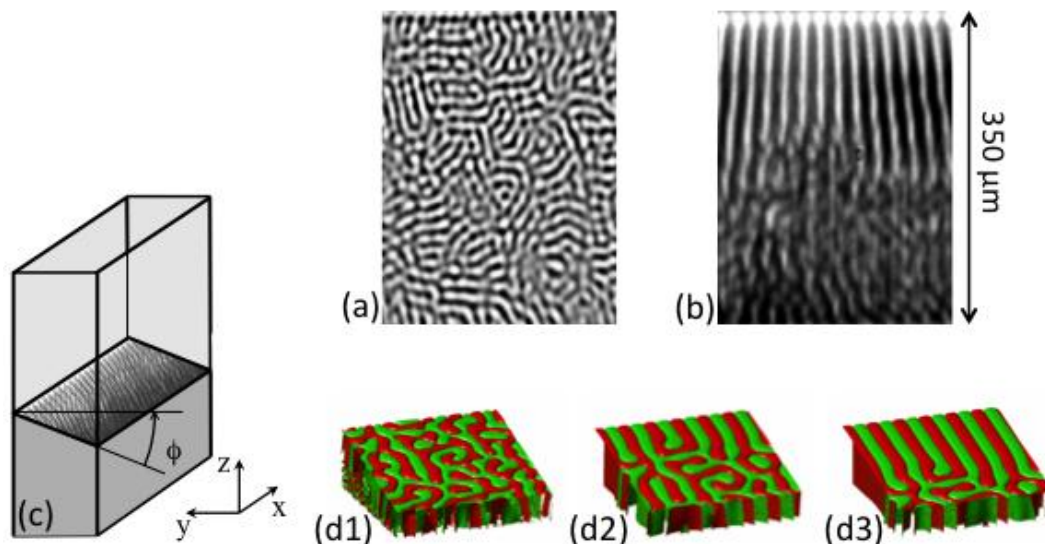
Pour des raisons mathématiques profondes, les théories analytiques explicites de la solidification n'existent que pour quelques situations particulièrement simples, et font souvent appel à des approximations drastiques. Une bonne compréhension de la solidification nécessite donc une comparaison entre expériences et modèles phénoménologiques ou numériques. Depuis une vingtaine d'années, la méthode dite de champ de phase s'est de fait établie comme la meilleure technique pour simuler numériquement les problèmes de solidification. Elle permet de contourner un problème épineux, à savoir le suivi pas à pas des interfaces. Pour cela, on introduit une fonction auxiliaire, le champ de phase (appelé ainsi car il indique dans quelle phase – solide ou liquide – se trouve chaque point de l'espace), définie de manière à ce que les interfaces correspondent à une surface de niveau particulière. On peut identifier ce champ avec le paramètre d'ordre de la transition solide-liquide. Ceci permet de déduire l'équation d'évolution du champ de phase des lois de la thermodynamique hors d'équilibre. En pratique, on doit résoudre un système d'équation aux dérivées partielles nonlinéaires couplées. Au laboratoire PMC de l'X, nous développons des modèles de champ de phase depuis 15 ans. Pour faire des simulations numériques de systèmes étendus en trois dimensions, nous utilisons des techniques de calcul parallèle sur des « grappes de calcul » : une trentaine d'ordinateurs multi-processeurs reliés par un réseau rapide.

## Croissance eutectique

Nos équipes à l'INSP (expériences in situ) et à l'X (simulations) travaillent ensemble depuis de longues années. Ici, nous donnons un exemple d'un travail récent qui nous a permis de comprendre un mécanisme de sélection de structures dans la croissance eutectique [6]. Un alliage eutectique binaire se solidifie directement sous la forme d'un mélange de deux phases cristallines différentes ( $\alpha$  et  $\beta$ ). En solidification directionnelle stationnaire, les cristaux  $\alpha$  et  $\beta$  croissent simultanément, formant des arrangements plus ou moins périodiques, en bandes (eutectiques lamellaires) ou en hexagones (eutectiques fibreux), dans le plan isotherme du front de solidification, comme illustré dans la figure 2. Cependant, les expériences à l'INSP ont montré qu'il peut aussi y avoir d'autres morphologies : des « labyrinthes » dans lesquels on aperçoit des régions lamellaires, mais sans ordre d'orientation à longue portée (figure 3). Dans les simulations de champ de phase, de telles structures apparaissent naturellement si nous partons d'une condition initiale « aléatoire », c'est-à-dire un mélange désordonné des deux solides. Elles sont mêmes très stables : dans les simulations, le système ne montre jamais une transition spontanée vers un état lamellaire régulier. Comment on peut alors expliquer l'apparition de tels états dans les expériences (figure 2) ?

La réponse est venue d'une analyse plus détaillée des images expérimentales, et de simulations supplémentaires. Nous avons constaté que l'établissement d'une structure lamellaire se fait toujours par un processus d'« invasion » à partir d'un côté de l'échantillon (figure 3). Ceci s'explique par un léger désalignement (d'un angle  $\phi$ , figure 3) du gradient de température par rapport à la direction de croissance, ce qui correspond à un gradient de température « latéral » dans l'échantillon, donc à une petite inclinaison du front de solidification. Des lamelles alignées perpendiculairement à la paroi se forment du côté « en surplomb » et se propagent latéralement jusqu'à couvrir intégralement la structure de cristallisation. De fait, après l'ajout d'un gradient latéral dans les simulations, nous avons observé exactement le même phénomène, comme le montre la figure 3 [6].





**Figure 3.** Expériences (vues de dessus) : (a) structure eutectique en « labyrinthe » désordonné, (b) formation de lamelles régulières par effet de désalignement entre le gradient de température (normal au front) et la direction de tirage ; cf schéma (c). (d1) à (d3) : simulations de champ de phase de la transition morphologique à trois instants successifs (angle  $\phi = 12^\circ$ ).

## Perspectives

Jusqu'ici, les expériences de solidification eutectique de l'INSP ont été faites au sol, dans des alliages thermosolublement stables. Cette configuration était suffisante pour étudier la transition labyrinthes-lamelles, mais d'autres phénomènes sont hors de portée au sol. Par exemple, dans les simulations nous avons commencé à étudier la transition entre lamelles et fibres (les deux morphologies les plus courantes, figure 2), qui peut être déclenchée par une variation de la composition. Nous varions lentement la composition avec le temps, ce qui correspond à un gradient de composition faible dans la direction de croissance. En métallurgie, on voit de telles transitions le long du front, ce qui correspond à un gradient parallèle au front. Aucune des deux situations ne peut être créée de façon contrôlée dans des expériences au sol, à cause de la convection. Un projet européen en micropesanteur dans l'ISS (Transparent Alloys), piloté par l'ESA, utilisant un dispositif conçu sur le même principe que celui mis au point à l'INSP, est en cours de finalisation [7].

[1] J. Bragard, A. Karma, Y.H. Lee, M. Plapp, *Linking phase-field and atomistic simulations to model dendritic solidification in highly undercooled melts*, Interface Science **10**, 121 (2002).

[2] Y. Ma, M. Plapp, *Phase-field simulations and geometrical characterization of cellular solidification fronts*, J. Cryst. Growth **385**, 140 (2014).

[3] M. E. Glicksman, M. B. Koss, E. A. Winsa, *Dendritic growth velocities in microgravity*, Phys. Rev. Lett. **73**, 573 (1994).

[4] N. Bergeon, D. Tournet, L. Chen, J.-M. Debierre, R. Guérin, A. Ramirez, B. Billia, A. Karma, R. Trivedi, *Spatiotemporal dynamics of oscillatory cellular patterns in three-dimensional directional solidification*, Phys. Rev. Lett. **110**, 226102 (2013).

[5] S. Bottin-Rousseau, M. Perrut, C. Picard, S. Akamatsu, G. Faivre, *An experimental method for the in situ observation of eutectic growth patterns in bulk samples of transparent alloys*, J. Cryst. Growth, **306**, 465 (2007)

[6] M. Perrut, A. Parisi, S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, M. Plapp, *Role of transverse temperature gradients in the generation of lamellar eutectic solidification patterns*, Acta Materialia **58**, 1761 (2010).

[7] A. Ludwig, et al., *Advanced Solidification Studies on Transparent Alloy Systems: A New European Solidification Insert for Material Science Glovebox on Board the International Space Station*, JOM, **64**, 1097 (2012).

## Remerciements

Nous remercions le CNES, et en particulier M. Bernard Zappoli, responsable du programme « sciences de la matière en micropesanteur », pour leur soutien pluriannuel.