

Dynamique de solidification biphasée : flottante ou ancrée ?

La solidification de certains mélanges délivre directement des alliages composites, dont les microstructures sont la trace de structures biphasiques auto-organisées à l'interface solide-liquide en cours de propagation. La théorie de cette « morphogénèse » complexe, formulée sous l'hypothèse standard d'une totale isotropie du système, écarte les effets cristallographiques : les interfaces se déforment librement, la dynamique est dite « flottante ». En pratique pourtant, les microstructures peuvent fortement dépendre de l'orientation des cristaux des deux phases solides. Les récents travaux des équipes de l'INSPI et de l'École Polytechnique permettent de formaliser le rôle de l'anisotropie des interfaces entre cristaux (joints interphases) dans un processus d'« ancrage » dynamique de microstructures lamellaires sur des plans d'hétéroépitaxie.

La solidification directionnelle d'un alliage eutectique (Figure 1) produit directement un matériau composite biphasé (eutectique : mélange qui présente un contact triphasique entre deux phases solides distinctes, α et β , et le liquide, à une température donnée, sur une large gamme de concentration). Lors de la solidification, des cristaux α et β croissent simultanément et s'auto-organisent de façon plus ou moins périodique, en particulier en « bandes » alternées (eutectiques lamellaires), dans un plan isotherme. Pour des vitesses de solidification V bien inférieures au mm/s (l'interface solide-liquide est localement à l'équilibre), la taille caractéristique des microstructures, proportionnelle à $V^{-1/2}$, est déterminée par les échanges diffusifs de solutés dans le liquide et les effets de courbure d'interface. Néanmoins, à paramètres de contrôle fixés, la valeur de l'espacement interphase peut varier dans un large intervalle, et plusieurs géométries sont accessibles en croissance stationnaire. Cette complexité, typique des systèmes hors équilibre, est inaccessible à l'analyse théorique directe sans approximation simplificatrice. On a donc recours à des méthodes expérimentales et numériques qui permettent le suivi en temps réel de la forme de l'interface solide-liquide.

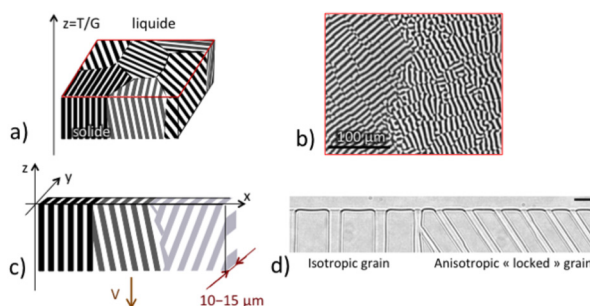


Figure 1

En solidification directionnelle, la croissance du solide est réalisée en déplaçant l'échantillon d'alliage à vitesse constante V ($0.01-10 \mu\text{m/s}$), vers les températures froides, dans un gradient de température ($G \approx 100 \text{ K/cm}$) fixe qui impose une géométrie axiale (axe z), et des isothermes planes. Croissance lamellaire multi-grains :

a) Schéma (le cadre coloré matérialise le plan isotherme de la structure) ;
 b) Coupe d'une microstructure Al-Al₂Cu avec deux grains anisotropes (U. Hecht, Access). Solidification directionnelle en échantillons minces ;

c) Schéma (l'observation se fait dans la direction transverse y) ;

d) Observation en temps réel de la croissance de deux grains eutectiques (alliage transparent CBr₄-C₂Cl₆ ; barre : $20 \mu\text{m}$).

Dans la théorie standard de ce mode de croissance, les effets cristallographiques sont ignorés : les interfaces (non-facettées) sont toutes isotropes, elles peuvent tourner et se déformer librement, par exemple lors de transitoires (dynamique « flottante»). En fait, dans un même échantillon, les microstructures peuvent varier entre différents grains eutectiques – régions du solide où les cristaux α et β ont une orientation cristalline fixe (Figure 1). Le point clé est que l'énergie libre du joint interphase α - β , ainsi que son anisotropie, sont fixées dans un grain donné, mais varient entre grains différents. On appelle anisotropie la dépendance de l'énergie libre d'une interface en son inclinaison. Dans des grains qui présentent une relation d'hétéroépitaxie entre α et β , la croissance est considérablement modifiée : les joints interphase s'alignent sur un plan de coïncidence correspondant à un minimum profond de l'énergie interfaciale et les lamelles croissent avec une certaine inclinaison (Figure 1). Comment un tel « ancrage » cristallographique est-il compatible avec la croissance couplée ?

L'anisotropie des joints interphase entre dans le problème de la croissance eutectique à un seul endroit : la condition d'équilibre local aux trijonctions α - β -L. La loi de Young doit alors être remplacée par la condition de Young-Herring (Figure 2). Des observations expérimentales (Figure 1) suggèrent que, en dépit de la dérive latérale de la structure, les interfaces solide-liquide conservent une forme quasi symétrique. Ceci permet de formuler une condition de « motif symétrique » qui fixe la direction de croissance pour une orientation donnée du grain eutectique (Figure 2). Nous en avons testé la validité par simulations numériques 2D (intégrale de frontière dynamique et champ de phase). Un bon accord entre les angles d'inclinaison simulés et calculés a été trouvé, et l'effet d'ancrage lamellaire dynamique confirmé.

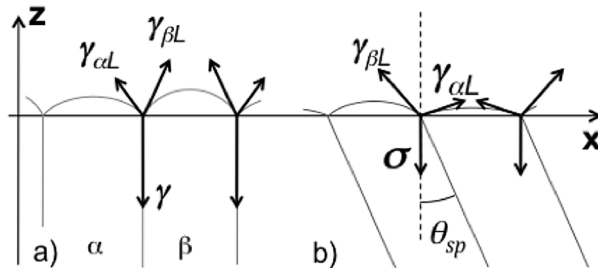


Figure 2

Structures lamellaires eutectiques (schémas) en 2D. a) Grain isotrope (loi de Young aux trijonctions). b) Structure lamellaire ancrée sur des joints interphase très anisotropes (loi de Young-Herring), dans l'approximation de motif symétrique. The vecteur tension de surface de Hoffmann-Cahn σ du joint interphase anisotrope est défini par $\sigma = \gamma t + \gamma' n$ (t et n : vecteurs unitaires tangent et normal au joint interphase ; γ' : dérivée angulaire de l'énergie libre d'interface γ).

D'après ces résultats, on peut obtenir des informations quantitatives sur l'anisotropie (γ -plot) du joint interphase par une méthode de solidification directionnelle en rotation mise au point à l'INSP, et dans laquelle l'échantillon est mis en rotation par rapport au gradient de température. Des travaux supplémentaires seront nécessaires pour l'analyse de la dynamique de solidification à grande échelle. Les expériences et simulations numériques seront étendues à la solidification en volume. Un projet collaboratif européen (ANPHASES, M-era.Net; PI : S. Bottin-Rousseau, INSP) amorcé en 2015 (INSP; École Polytechnique; Access ev, Aachen; HHUD, Dusseldorf) inclut des calculs à l'échelle atomique (J. HORBACH, HHUD) des propriétés d'interface, outre les méthodes expérimentales et numériques mentionnées ci-dessus.

Références

- S. Ghosh, A. Choudhury, M. Plapp, S. Bottin-Rousseau, G. Faivre, S. Akamatsu, "Interphase anisotropy effects on lamellar eutectics: A numerical study", *Phys. Rev. E*, 91, 022407 (2015).
- S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Serefoğlu, G. Faivre, "A theory of thin lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries", *Acta Materialia* 60, 3199 (2012).
- S. Akamatsu, S. Bottin-Rousseau, M. Serefoğlu, G. Faivre, "Lamellar eutectic growth with anisotropic interphase boundaries: Experimental study using the rotating directional solidification method", *Acta Materialia* 60, 3206 (2012).

Contacts

Sabine Bottin-Rousseau : bottin@insp.jussieu.fr

Silvère Akamatsu : akamatsu@insp.jussieu.fr