

Influence d'un champ magnétique sur la solidification d'alliages métalliques

Thierry ALBOUSSIÈRE, René MOREAU et Denis CAMEL

Résumé — Nous étudions l'influence d'un champ magnétique permanent sur la solidification dirigée d'un alliage Pb-Sn (47 % at. Pb) et d'un alliage Bi-Sn (60 % at. Bi). Il s'avère que la microstructure dendritique est affectée et que la ségrégation solutale est augmentée en présence de champ magnétique. Nous expliquons comment des courants électriques d'origine thermo-électrique créent des forces de Laplace dans la zone dendritique elle-même et peuvent ainsi renforcer la convection solutale.

Influence of a magnetic field on the solidification of metallic alloys

Abstract — We study the directional solidification of a Pb-Sn alloy (47 at. % Pb) and a Bi-Sn alloy (60 at. % Bi) under an imposed permanent magnetic field: we observe that the microstructure is affected and that the solute segregation is enhanced with the magnetic field. We point out that thermoelectric currents generated in the dendritic zone could create Laplace forces able to increase the solutal convection.

Abridged English Version — During the directional solidification of an alloy, in a destabilising solute gradient, one can observe the formation of a dendritic pattern linked to solute diffusion (Mullins, Sekerka, 1964 [1]). Next, this regular dendritic zone may itself become unstable and convective movements develop through particular structures called freckles (Dupouy, Camel, 1989 [2]); Sarazin, Hellawell, 1988 [3]; Poirier, 1987 [4].

If a uniform permanent magnetic field \mathbf{B} is present, a reduction of the above mentioned convection is usually expected: the electrical currents due to the fluid velocity in the magnetic field lead then to Laplace forces opposed to the initial movement (Moreau, 1990 [5]). But electric currents in the fluid come also from the Seebeck effect (Favier, 1977 [6]). If P denotes the relative thermo-electric power of the fluid and the solid, σ_1 , σ_2 the electrical conductivities, G the vertical thermal gradient and f_s the solid surface fraction in a horizontal plane, a vertical electric current density appears in each medium (upward in solid j_1 , downward in liquid j_2), which may be estimated as follows (Shercliff, 1979 [7]):

$$(1) \quad j_1 = + \frac{PG \sigma_1 \sigma_2 (1 - f_s)}{f_s \sigma_1 + (1 - f_s) \sigma_2},$$

$$(2) \quad j_2 = - \frac{PG \sigma_1 \sigma_2 f_s}{f_s \sigma_1 + (1 - f_s) \sigma_2},$$

Of course, in a global representation, the current lines bend near the dendrites' extremities (Lielausis *et al.*, 1984 [8]). A magnetic field does not disturb this electric current in the dendritic zone until the related Hartmann number becomes greater than one. As our magnetic field is weak enough, the resulting Laplace force is of magnitude $\sigma_{\min} PGB$ where σ_{\min} denotes the minimum of σ_1 and σ_2 . This force may be greater than the typical buoyancy force: $\Delta\rho g$, where g denotes the gravity vector and $\Delta\rho$ the specific mass difference of the fluid between the initial and the eutectic compositions.

We performed upward solidification experiments in conditions thermally stable and solutally unstable, and we exhibited a greater solutal convection in the presence of the magnetic field than in its absence. This effect was not observed with a Pb-Sn alloy ($P \sim 0.1 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$). We used then a concentrated Bi-Sn alloy (60%at. Bi; $P \sim 70 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$) which allowed us to validate our above estimate on forces balance, and observed this striking effect.

The parameters of the five experiments on the Bi-Sn alloy are given in the table (*see* French version). In each case, the initial solidification is dendritic and ends up in an eutectic pattern as the excess of bismuth is stocked in the dendrites. Figure 1 shows photographs of longitudinal views of the solidified alloy: dendrites (white, nearly pure bismuth) are more numerous and massive with the magnetic field, and eutectic growth starts earlier. The structure is always axisymmetric except when a transverse magnetic field is applied: in this case, the eutectic zone develops first on one side of the sample in a direction orthogonal to both the magnetic field and the growth axis (*see* Fig. 1). We also made composition analyses for several pieces of the samples which also support the fact that the solute segregation is more intense when a magnetic field is applied (*see* Fig. 2).

An interesting phenomenon is the way the eutectic zone replaces the dendritic one when solidification proceeds in a longitudinal magnetic field. We observe several disappearances and reappearances of dendrites before they finally vanish.

Different mechanisms are responsible for such an increase of the convection under the magnetic field. First, with a transverse magnetic field, we easily see on formula (2) that the Laplace force has the same direction and sense in the whole liquid contained in the dendritic zone whereas there is no Laplace force in the above bulk fluid. So a circulation of the fluid appears in the plane orthogonal to \mathbf{B} .

Then, in the case of a longitudinal magnetic field, as we pointed out, the electric current density has a great centripetal component near the dendrite tips so that little vortices appear on each tip. These vortices induce a secondary flow in the azimuthal plane which brings low solute concentration fluid towards the dendrite tips. These vortices also create high pressure between dendrite tips, which enhances the upward flow through the freckles.

Finally, whatever the orientation of the magnetic field, due to the actual geometry of the dendrites, the electric current is more complex than the rough estimate (1) and (2). Complex Laplace forces are thus generated at the scale of the secondary ramifications, which stir the fluid. These movements homogenize the constitutional undercooling, and so allow for a greater distance between primary dendrites and for an increase of the Darcy permeability of the dendritic zone; this also tends to enhance convection.

La structure d'un alliage métallique de composition assez différente de la composition eutectique, solidifié directionnellement vers le haut en configuration solutalement déstabilisante, en présence d'un gradient thermique assez élevé et d'une faible vitesse de tirage, peut s'interpréter de la façon suivante. Une première instabilité purement diffusivo du front de solidification (Mullins-Sekerka, 1964 [1]) forme des dendrites, qui elles-mêmes, sont porteuses de ramifications secondaires engendrées par le même mécanisme. Une seconde instabilité due à la convection solutale (Dupouy et Camel, 1989 [2]); Sarazin et Hellawell, 1988 [3]) forme des canaux ségrégués à l'intérieur du réseau dendritique. Le mouvement du fluide est ascendant dans ces canaux et descendant dans la zone dendritique, ainsi le fluide qui alimente les canaux provient de la zone dendritique où il s'est enrichi en soluté. D'une part ce fluide trop riche en soluté ne peut se solidifier dans les

TABLEAU

Paramètres des cinq expériences réalisées avec l'alliage Bi-Sn (60 % at. Bi).
Solidification conditions of the five samples of Bi-Sn alloy (60 at % Bi).

Exp.	V interf. ($\mu\text{m/s}$)	G (K/cm)	B_{\perp} (T)	$B_{//}$ (T)	Long. liq. initiale (mm)	% solidifié sous B
a.	20	100	0	0	154	—
b.	20	100	0	0,08	154	35
c.	20	100	0,2	0	154	100
d.	67	100	0	0	210	—
e.	67	100	0	0,55	210	100

canaux, d'autre part, à une côte donnée, le fluide contenu dans les canaux est plus riche en soluté que le fluide interdendritique, donc moins dense. Le mouvement annoncé est donc entretenu par la poussée d'Archimède et résulte de l'équilibre de cette poussée et du freinage visqueux principalement dans la région dendritique, que l'on peut sans doute modéliser comme un milieu poreux avec une loi de Darcy (Poirier, 1987 [4]).

Lorsque l'expérience se déroule en présence d'un champ magnétique uniforme permanent **B**, l'effet attendu *a priori* serait un freinage électromagnétique de la convection. En effet, les courants électriques dus au champ électromoteur $\mathbf{u} \wedge \mathbf{B}$ (\mathbf{u} désigne la vitesse locale du fluide) s'opposent toujours au mouvement qui leur a donné naissance, et chaque unité de volume de fluide de conductivité électrique σ est soumise à la force $-\sigma \mathbf{B}^2 \mathbf{u}$ (Moreau, 1990 [5]).

Toutefois, il existe un autre mécanisme générateur de courant électrique au voisinage d'une interface solide-liquide, liée à l'effet Seebeck (Favier, 1977 [6]). Lorsque la différence P entre les pouvoirs thermo-électriques absolus des deux phases est suffisante, et lorsque l'interface n'est pas isotherme (ce qui est le cas pour les alliages considérés), les composantes tangentielles locales de la densité de courant électrique de part et d'autre de l'interface j_{1s} et j_{2s} vérifient sur tout arc s tracé sur cette même interface la relation (Shercliff, 1979 [7]) :

$$(1) \quad \frac{j_{2s}}{\sigma_2} - \frac{j_{1s}}{\sigma_1} = -P \frac{\partial T}{\partial s},$$

où T désigne la distribution de température sur l'interface. Celle-ci force un courant électrique à circuler dans la région dendritique, en première approximation dans la direction des axes dendritiques primaires mais d'amplitude différente entre le solide et le liquide. Si l'on modélise les dendrites par des cylindres parallèles infinis, en imposant, en plus de (1), une condition de courant électrique global nul, et en désignant par G le gradient de température imposé et par f_s la fraction solide dans un plan horizontal, on trouve des densités de courant électrique uniformes dans le milieu 1 (le solide) et dans le milieu 2 (le liquide) :

$$(2a) \quad j_1 = + \frac{PG \sigma_1 \sigma_2 (1-f_s)}{f_s \sigma_1 + (1-f_s) \sigma_2},$$

$$(2b) \quad j_2 = - \frac{PG \sigma_1 \sigma_2 f_s}{f_s \sigma_1 + (1-f_s) \sigma_2}.$$

En fait, ces relations ne conduisent qu'à des ordres de grandeur typiques, car les dendrites ont une forme beaucoup plus complexe, et les lignes de courant électrique ne sont pas rectilignes (*voir* Lielausis et coll., 1984 [8]).

En présence du champ magnétique, ces courants électriques engendrent une force de Laplace dont l'ordre de grandeur est $\sigma_{\min} \text{PGB}$ (σ_{\min} désigne le minimum de σ_1 et de σ_2). Compte tenu des valeurs typiques du nombre de Hartmann construit avec l'espacement interdendritique moyen d ($\text{Ha} \cong 10^{-1}$ à 1 avec $B \cong 10^{-1}$ à 1 T et $d \cong 10^{-4}$ m), cette force peut être nettement supérieure à la force de freinage électromagnétique (celle-ci, qui croît comme B^2 , devient significative dès que B atteint quelques Teslas). Elle peut aussi devenir du même ordre de grandeur, voire nettement plus importante que la poussée d'Archimède dont l'ordre de grandeur est le produit de l'accélération de la pesanteur par la différence de masse volumique entre le fluide lointain et le fluide à la composition eutectique, soit $g \Delta \rho$.

Ces conjectures sur la possibilité de créer un mouvement dans la zone dendritique en imposant un champ magnétique, ont été vérifiées à l'aide d'expériences de solidification dirigée par la méthode Bridgman en configuration verticale thermiquement stable et solutalement instable. Le diamètre intérieur des creusets de quartz utilisés est de 6 mm, la longueur liquide initiale de l'échantillon d'environ 200 mm. Une première série d'expériences réalisées avec un alliage Pb-Sn ($P \sim 0,1 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$) n'a permis de déceler aucune influence du champ magnétique sur la structure solidifiée. Ensuite, nous avons eu recours à un alliage Bi-Sn (60 % at. Bi), choisi en raison du pouvoir thermo-électrique très élevé du bismuth solide ($P = 70 \mu\text{V} \cdot \text{K}^{-1}$), et nous avons utilisé des champs magnétiques de 0,08, 0,2 et 0,55 T. Nous avons alors nettement mis en évidence l'influence du champ magnétique appliqué.

Les paramètres caractéristiques des cinq expériences effectuées sur l'alliage Bi-Sn sont indiqués sur la table ci-jointe. Le gradient de température imposé et la vitesse de tirage sont tels que le régime de solidification soit dendritique pour la concentration nominale.

Des micrographies effectuées sur des coupes transversales et longitudinales des échantillons solidifiés ont permis d'observer la structure de l'alliage formé. Dans tous les cas, la solidification s'effectue d'abord en régime dendritique, et finit pour aboutir à une solidification de type eutectique lorsque l'excès de bismuth est emmagasiné dans les dendrites déjà formées. On observe que ces dendrites, composées de bismuth presque pur (blanches sur les micrographies), sont nettement plus massives lorsqu'elles se forment en présence d'un champ magnétique. Toutefois, aucune analyse quantitative de la morphologie de ces dendrites facettées et très irrégulières n'a été effectuée.

Les micrographies de la figure 1 montrent que la transition à la croissance eutectique est plus rapide sous champ magnétique. Lorsque le champ magnétique est longitudinal, l'échantillon conserve globalement une symétrie cylindrique. Au contraire, lorsque le champ magnétique est transversal, on note que la zone dendritique commence à se développer d'un côté de l'échantillon dans une direction orthogonale à la direction du champ appliqué. Cette dissymétrie cylindrique ne peut être imputée qu'à l'influence du champ magnétique.

Enfin, on note deux observations intéressantes. Lors de l'expérience *b*, le réseau dendritique est remplacé par une structure eutectique (avec quelques cristaux isolés de bismuth) de façon très brutale, au moment même où l'on supprime le champ magnétique. Dans l'expérience *e*, réalisée en totalité en présence du champ magnétique, la transition s'effectue en une succession quasi périodique de destructions puis de réapparitions du réseau

dendritique. La longueur d'onde caractéristique de ces oscillations est de l'ordre de 5 mm, et l'on observe six à sept longueurs d'onde avant que le régime eutectique s'installe seul.

De l'ensemble de ces observations on tire les conclusions suivantes : en présence du champ magnétique (longitudinal ou transversal), la ségrégation solutale longitudinale a été accrue, et il apparaît même une ségrégation transversale orthogonale au champ magnétique transversal. Ceci indique que l'efficacité de la convection solutale, c'est-à-dire l'aptitude des mouvements de convection à mélanger le soluté rejeté par le front dendritique avec le fluide lointain, a été augmentée en présence du champ magnétique. Nous interprétons l'action du champ magnétique en considérant les forces de Laplace qui naissent au sein même de la zone dendritique. L'explication de l'influence du champ magnétique sur la convection solutale dans le cas où il est transversal est immédiate. Le courant d'origine thermo-électrique (2b) et le champ magnétique sont orthogonaux, la force de Laplace ainsi engendrée a la même direction et le même sens dans toute la zone dendritique alors qu'une telle force n'existe pas dans le liquide au-dessus des dendrites. Une boucle de convection apparaît qui apporte d'un côté du fluide contenant du bismuth en excès, alors que de l'autre côté le fluide qui arrive s'est déjà appauvri en bismuth : on comprend que la solidification eutectique apparaisse d'abord sur ce côté.

Lorsque le champ magnétique est longitudinal, près des pointes des dendrites, où j doit avoir une composante radiale importante, la force de Laplace doit posséder une composante orthoradiale qui met le fluide en rotation autour de la dendrite. A cette rotation est associée une force centrifuge, et par conséquent une aspiration du fluide lointain près de la pointe (ce qui favorise sa croissance) et une surpression entre les pointes (ce qui contribue à la convection par canaux ségrégés).

Enfin un dernier mécanisme valable pour toutes les directions de champ magnétique est le suivant. Au sein du réseau dendritique, où la densité de courant est loin d'être strictement parallèle à \mathbf{B} , la force de Laplace $\mathbf{j} \wedge \mathbf{B}$ brasse localement le fluide au niveau des dendrites et homogénéise la distribution de surfusion constitutionnelle. Ceci explique un accroissement de la distance interdendritique et de la taille des dendrites.

Cette action extérieure passe par le contrôle du mouvement du métal liquide au voisinage et au sein même du réseau dendritique. Cet ensemble d'expériences, associées à celles qui avaient déjà mis en évidence la force électromagnétique d'origine thermo-électrique dans l'alliage Bi-Sn ([6], [8]), montre donc qu'il est possible d'agir à l'aide d'un champ magnétique sur la solidification de certains alliages. L'effet du champ magnétique ne s'exerce pas uniquement en freinant les mouvements de convection solutale, il peut aussi être moteur lorsqu'un courant d'origine thermo-électrique est présent.

Nous remercions Robert Bolcato (Madylam), Pierre Contamin et Françoise Herbillon (S.E.S.C.) pour la conception et la mise en place des moyens expérimentaux adaptés et pour leurs judicieuses suggestions et remarques sur la conduite des expériences.

Note remise le 13 mai 1991, acceptée après révision le 22 juillet 1991.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] W. W. MULLINS et R. F. SEKERKA, *Journal of applied physics*, 35, n° 2, 1964, p. 444-451.
- [2] M. D. DUPOUY, D. CAMEL et J. J. FAVIER, *Acta Metallurgica*, 37, n° 4, 1989, p. 1143-1157.
- [3] J. R. SARAZIN et A. HELLAWELL, *Metallurgical Transactions A*, 19 A, 1988, p. 1861-1871.
- [4] D. R. POIRIER, *Metallurgical Transactions B*, 18 B, 1987, p. 245-255.
- [5] R. MOREAU, *Magnetohydrodynamics*, Kluwer academic publishers, 1990.
- [6] J. J. FAVIER, *Thèse*, C.E.N.G., 1977.

[7] J. A. SHERCLIFF, *Journal of fluid mechanics*, 91, part 2, 1979, p. 231-251.

[8] O. LIELAUSIS, A. MIKELSONS, E. SHCHERBININ et Yu. GELFGAT, *Proceeding of the I.U.T.A.M. symposium « Metallurgical applications of M.H.D. »*, 1984, p. 234-244.

T. A. et R. M. : *I.N.P.G., Laboratoire Madylam, U.A.-C.N.R.S. n° 1326, E.N.S.H.M.G., B.P. n° 95, 38402 Saint-Martin-d'Hères Cedex;*

D. C. : *C.E.A./C.E.R.E.M./D.E.M., Section d'Étude de la Solidification et de la Cristallogénèse, Centre d'Étude nucléaire de Grenoble, 85 X, 38041 Grenoble Cedex.*

EXPLICATIONS DE LA PLANCHE

Fig. 1. — Exemple de l'influence du champ magnétique sur la microstructure des échantillons des expériences *a* et *c* (*f* représente la fraction solidifiée de la longueur initiale de liquide).

Fig. 1. — *Example of the influence of the magnetic field on microstructure: longitudinal micrographies of samples of experiments a and c (f denotes the solidified fraction of the initial liquid length).*

Fig. 2. — Influence du champ magnétique sur la ségrégation longitudinale.

Fig. 2. — *Influence of the applied magnetic field on the longitudinal segregation.*

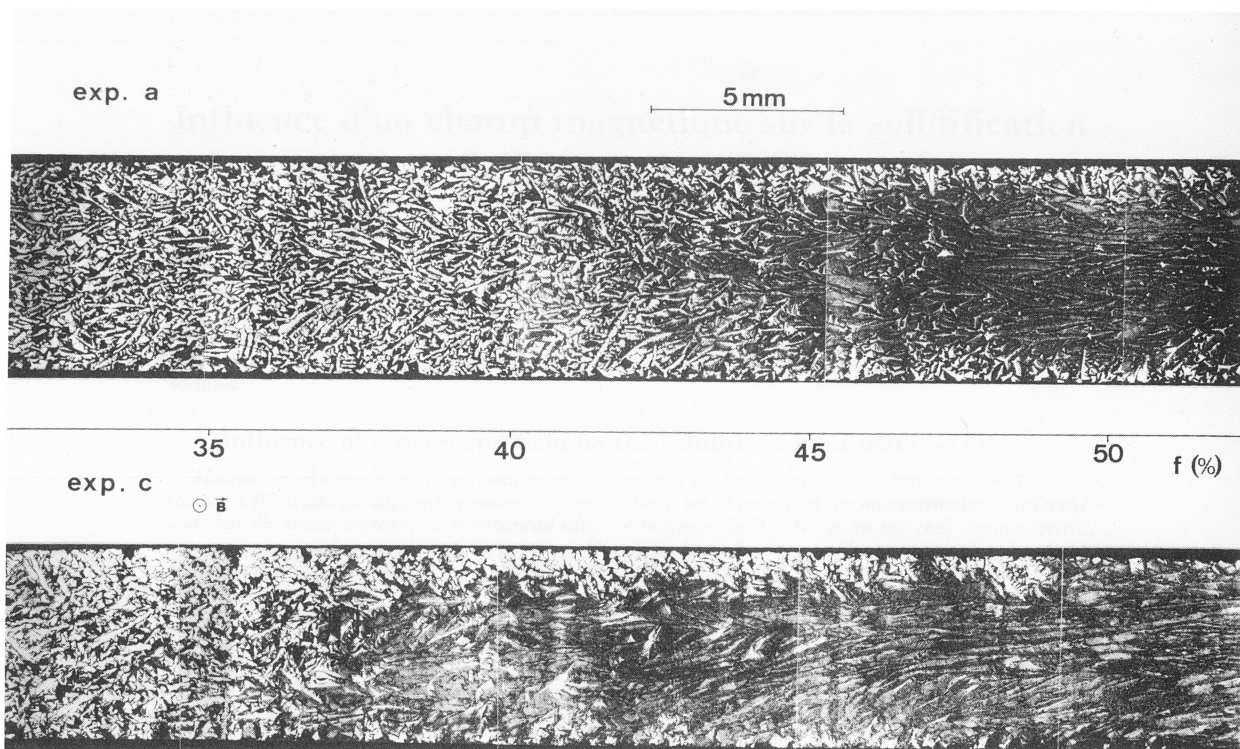


Fig. 1

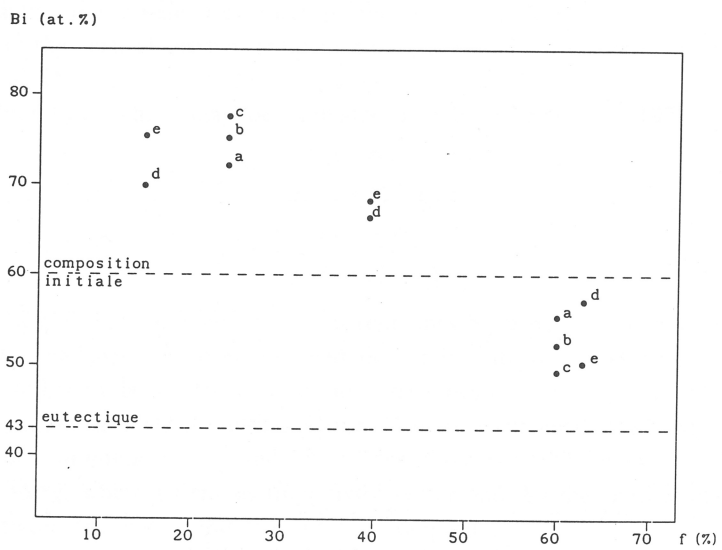


Fig. 2