SIMULATION DE LA CROISSANCE DE GRAINS DANS L'OLIVINE PAR UNE APPROCHE CHAMP COMPLET DE TYPE LEVEL-SET

Jean Furstoss[a, b], Marc Bernacki[b], Carole Petit[a], Daniel Pino-Munoz[b], Clément Ganino[a]
[a] Geoazur, 250 rue Albert Einstein, 06560 Valbonne, France ;
[b]MINES ParisTech, PSL Research University, CEMEF-Centre de mise en forme des matériaux, CNRS UMR 7635, CS 10207 rue Claude Daunesse, 06904 Sophia Antipolis Cedex, France ;
jean.furstoss@mines-paristech.fr

Mots-clefs : Croissance de grains, olivine, modélisation en champ complet, méthode level-set.

1 Introduction

Le phénomène de croissance de grains peut être vu comme une migration des interfaces entre grains pilotée par la minimisation de l'énergie surfacique du réseau de joints de grains. Ces interfaces séparent deux domaines d'orientations cristallographiques différentes et possèdent une énergie par unité de surface dépendant du matériau considéré, des directions cristallographiques des grains voisins à l'interface considérée et de sa normale. On parle d'énergie interfaciale γ. En général, lorsque la mesure de la désorientation entre deux grains voisins est faible, le joint de grains peut être décrit comme une succession de dislocations et son énergie peut être calculée à partir de l'énergie des dislocations. En étudiant les angles dièdres formés par les joints à l'équilibre, il est possible d'établir des relations entre les énergies interfaciales. Le déplacement de ces interfaces met en jeu des déplacements atomiques (diffusion) et est largement favorisé par l'agitation thermique. L'étude de ces déplacements en fonction la température permet de quantifier, à travers un paramètre M appelé la mobilité, la « facilité » qu'a un joint de grains à se mouvoir dans la microstructure.
Ces deux paramètres, γ et M, sont nécessaires à la description de la croissance de grains par capillarité. Ce sont des paramètres anisotropes mais qui peuvent être approchés par des constantes (fonction de la température pour la mobilité) lorsque le matériau considéré est peu texturé et contient peu de joints de grains spéciaux. Cette hypothèse a pour effet de simplifier la détermination expérimentale de ces quantités et les simulations numériques. Cette hypothèse, réaliste dans le cas de l'olivine pure considérée dans ce travail, sera utilisée dans la suite.
Le but principal de ce travail est de tester en 2D l'adaptabilité du code de simulation en champ complet DIGIMU [1] développé par le CEMEF (Mines-ParisTech), pour un matériau non-métallique tel que l'olivine, dans le cadre d'un cas de croissance de grains par capillarité. La discussion des résultats pourra également permettre d'aiguiller un futur travail dont le but sera de modéliser les évolutions microstructurales des péridotites, roches du manteau terrestre, composées majoritairement d'olivine. La modélisation de ces évolutions pourra s'inscrire, à plus long terme, dans des problématiques géologiques diverses, telle que la localisation de la déformation à l'échelle des plaques tectoniques par des structures héritées [2].

2 Valeurs des paramètres M et γ pour l'olivine

La mobilité et l'énergie interfaciale des joints de grains sont cruciaux pour décrire la croissance de grains, en effet on décrit généralement la vitesse ($\vec{v}$) d'une interface pour un cas de croissance de grain par capillarité par la loi [3] :

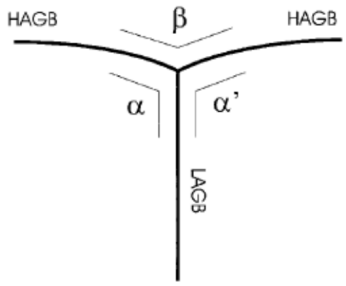
$$\vec{v} = -M\gamma\kappa\vec{n} \tag{1}$$

où κ est la courbure moyenne du joint (sommes des courbures principales) et $\vec{n}$ est la normale sortante unitaire au joint.

2.1 Énergie interfaciale des joints de grains

L'énergie interfaciale des joints de grains utilisée ici a été déterminée par Duyster et Stöckhert [4] sur un échantillon d'olivine naturelle. La méthodologie employée pour déterminer ce paramètre est la même que celle mise en place par Cooper et Kohlstedt [5] 20 ans plus tôt sur un échantillon d'olivine synthétique. Cette méthode consiste à repérer dans la microstructure des sites où un joint de grains faiblement désorienté (LAGB) rencontre

deux joints de grains fortement désorientés (HAGB). Lorsque le système est à l'équilibre, les angles dièdres entre ces différents joints (voir fig. 1) sont alors reliés aux énergies interfaciales de ceux-ci par la relation (2) issue de l'équation d'Herring. Le calcul de l'énergie interfaciale du LAGB et la mesure des angles permet de remonter à l'énergie interfaciale des joints de grains (HAGB).



$$\frac{\gamma_{HAGB}}{sin(\alpha\prime)} = \frac{\gamma_{HAGB}}{sin(\alpha)} = \frac{\gamma_{LAGB}}{sin(\beta)} \qquad (2)$$

FIGURE 1 – Représentation des angles dièdres entre les joints de grains

Le calcul de l'énergie des LAGB est réalisé en utilisant le modèle de Read et Shockley [6] considérant le joint comme un empilement de dislocations dépendant de la désorientation entre les sous-grains. Cette désorientation est mesurée expérimentalement grâce à la technique EBSD (Electron Back Scatter Electron) qui permet de dresser la cartographie des orientations cristallographiques d'un polycristal.
La valeur finale est obtenue en moyennant les valeurs obtenues sur 25 sites de l'échantillon jugés adéquats pour cette étude et vaut $1.4 \pm 0,4 J.m^{-2}$.

2.2 Mobilité des joints de grains

La mobilité d'un joint de grains peut être exprimée (dans une certaine gamme de température) comme une loi d'Arrhenius [7] :

$$M = M_0 e^{-Q/RT} \qquad (3)$$

avec M_0 la mobilité de référence, Q l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits et T la température en Kelvin. Cette loi traduit le fait que la diffusion atomique et donc le transport d'un joint de grains est un mécanisme thermiquement activé, l'augmentation de la température entraîne une augmentation de la mobilité et une croissance de grains plus rapide. Cette équation peut être enrichie, en général pour étendre sa plage de validité en température, en considérant la mobilité comme une fonction linéaire de $1/T$.
La mobilité et l'énergie d'activation utilisées ici ont été déterminées par Karato [7] dont l'expérience servira également d'élément de comparaison avec les simulations réalisées. Il s'agit d'une expérience de recuit d'une poudre d'olivine préparée à partir de grains d'olivine naturelle. La taille des grains de cette poudre est volontairement prise très fine (taille moyenne de l'ordre du μm) pour permettre d'observer la croissance des grains dans un temps raisonnable. Cette poudre subit un traitement thermique particulier et une étape de compactage à chaud élaborés par Karato [8]. Les échantillons ainsi obtenus sont alors recuits à température et pression constantes. Après un certain temps de traitement thermique, une lame mince est découpée au centre de l'échantillon et la microstructure est observée pour déterminer la taille de grains moyenne. Cette procédure permet alors de déterminer l'évolution de la taille moyenne des grains dans le temps au cours du recuit.
Cette évolution est généralement décrite par une loi du type Burke et Turnbull [9, 1] :

$$< R >^2 - < R_0 >^2 = \alpha M \gamma t^n \qquad (4)$$

avec $< R >$ (m) la taille moyenne de grain à l'instant t (s), $< R_0 >$ (m) la taille moyenne de grain à l'instant initial. L'utilisation de ce modèle sous entend que seule la force motrice de croissance par capillarité est considérée. Dans cette étude, les paramètres n et α ont été respectivement choisis à 1 et 0.5. En réalité n et α peuvent être fortement dépendants de la distribution initiale de taille de grains et du temps de maintien considéré [1, 12]. L'exposant portant sur la taille de grains moyenne, ici défini comme égal à 2 en régime de croissance de grains, varie en fait entre 2 et 5 dans la littérature pour permettre de rendre compte de la présence de secondes phases ou d'eau dans l'échantillon, ou encore de la forme irrégulière des grains [10]. On considère la mobilité

et l'énergie interfaciale comme isotropes et le traitement thermique comme isotherme. L'évolution mesurée de la taille moyenne des grains en fonction du temps, connaissant l'énergie interfaciale, permet de déduire la mobilité à la température du recuit considérée. L'obtention de la mobilité pour différentes températures permet quant à elle de déterminer la mobilité de référence (M_0) et l'énergie d'activation (Q, voir eq. (3)). Les valeurs obtenues par Karato [7] sont celles utilisées dans la suite, c'est à dire $M_0 = 4.10^{-8} m^4.J^{-1}.s^{-1}$ et une énergie d'activation entre 160 et 200kJ/mol (en fonction des conditions expérimentales).

3 La simulation de croissance de grain

Pour décrire la microstructure dans la simulation, le code éléments finis (EF) utilisé s'appuie sur le formalisme level-set (LS) [1, 11, 12]. Dans le cas d'une croissance sans énergie stockée, le problème à résoudre peut s'écrire sous la forme d'un problème de diffusion pure avec un coefficient de diffusion égal au produit $M\gamma$. La microstructure évolue par l'intermédiaire de l'évolution des fonctions level-set qui représentent les grains du polycristal. La mobilité est calculée par le code comme une loi d'Arrhenius (1) à partir de la donnée de M_0, d'une énergie d'activation et de la température du système. L'énergie interfaciale γ est considérée isotrope, non dépendante de la température et sa valeur est ici fixée à $1.4\ J.m^{-2}$. Le domaine de calcul est un domaine de forme carré dont nous avons fait varier les dimensions. La microstructure initiale est générée par un algorithme de Laguerre-Voronoï qui est capable de générer des cellules polyédriques respectant une distribution de taille de grains donnée [13]. Les conditions aux limites utilisées sont des conditions aux limites libres ce qui sous entend, en formalisme LS, l'orthogonalité des joints de grains aux bords du domaine de calcul au cours de l'évolution dans le temps.

3.1 Distribution initiale de taille de grain et taille du domaine de calcul

Afin de pouvoir comparer la simulation avec des résultats expérimentaux, nous avons utilisé une distribution initiale de taille de grains se rapprochant d'une des poudres d'olivine de l'expérience de Karato [7] (fig. 2). La distribution utilisée peut être approximée par une loi log-normale dont la moyenne vaut 1.72, l'écart-type 0.84 et donc le rapport σ/μ 0.49.

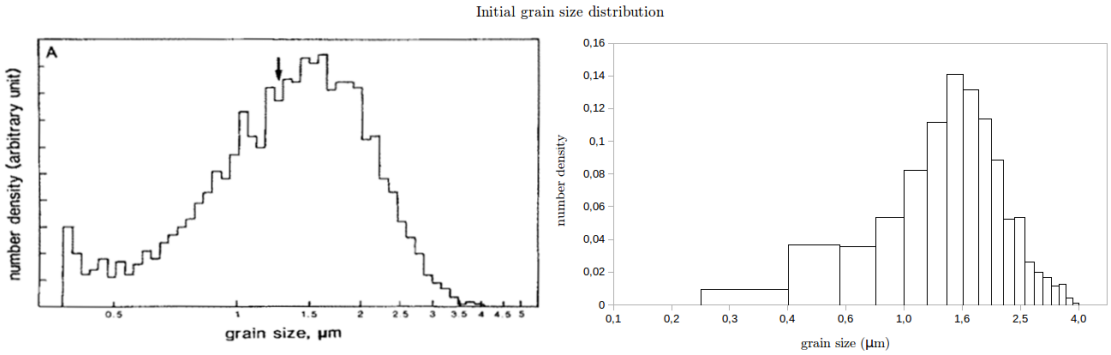


FIGURE 2 – A gauche, distribution de taille de grains d'une des poudres de l'expérience de Karato [7], à droite, distribution initiale de taille de grains utilisée dans la simulation.

Pour les valeurs de température des recuits expérimentaux, soit 1473K et 1573K, 3 énergies d'activations différentes, 160, 185 et 200kJ/mol ont été testées. Les courbes d'évolution de la taille moyenne des grains au cours des recuits étant présentées (sur une durée de 10h) dans l'article de référence de Karato [7], elles serviront d'éléments de comparaison avec les résultats de nos simulations. Cette comparaison permettra de sélectionner une énergie d'activation optimale qui reproduit au mieux les résultats expérimentaux. Une autre méthode aurait pu être d'évaluer l'écart entre les résultats d'une première simulation et les résultats expérimentaux et d'en déduire une nouvelle énergie d'activation pour laquelle les résultats expérimentaux seraient mieux reproduits.

3.1.1 Influence de la taille du domaine de simulation

Pour le système considéré ici, l'évolution de la taille moyenne des grains en fonction du temps peut être décrite par une loi de Burke et Turnbull (4). Ce modèle possède une solution analytique auto- similaire, quelque soit l'échelle à laquelle on se place, si on normalise les distances, l'évolution de la taille moyenne des grains peut être décrite par une seule et même fonction monotone.
Lors de la simulation, le nombre de grains dans le domaine diminue petit à petit et la proportion de joints de grains en contact avec les bords augmente. L'évolution de ces joints de grains est dictée par les conditions aux limites que l'on impose mais n'est pas représentative d'un mécanisme physique en particulier. Lorsque le nombre de grains dans le domaine de calcul n'est plus suffisant, le mécanisme de croissance de grains n'est plus bien représenté et l'évolution de la taille moyenne des grains s'écarte du modèle de Burke et Turnbull. Pour que le nombre de grains reste significatif plus longtemps, un domaine plus grand doit alors être considéré.
Des domaines de calcul 2D (carrés) de tailles croissantes ont été testés afin de déterminer jusqu'à quand le système présentait une évolution de taille de grains monotone modélisable par une loi de Burke et Turnbull. La figure 3 présente les résultats obtenus pour 3 tailles de domaines différents au cours d'un recuit à 1573K pour une énergie d'activation de 200kJ.

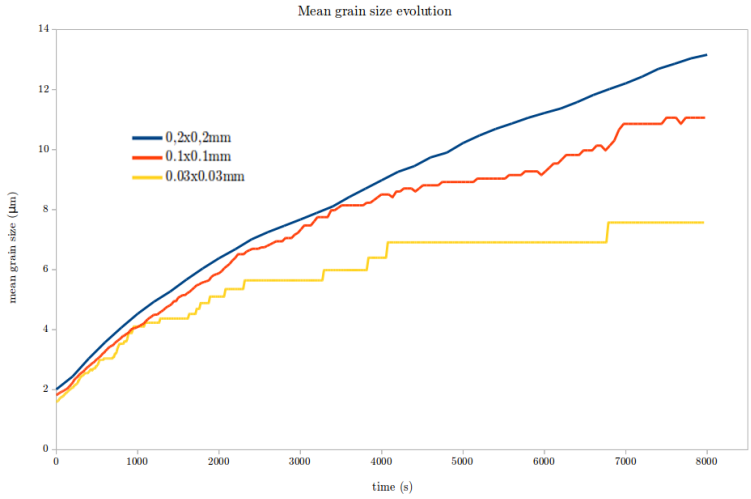


FIGURE 3 – évolution de la taille moyenne de grains au cours du recuit à 1573K, pour une énergie d'activation de 200kJ et pour des domaines carrés de dimensions 0,2x0,2, 0,1x0,1 et 0,03x0,03mm contenant initialement 3700, 960 et 110 grains.

La difficulté, dans le cas d'une distribution initiale aussi fine, est que l'évolution de la taille de grains est très rapide. Au bout de quelques heures, un domaine contenant initialement près de 1000 grains n'en contient plus qu'une dizaine et les effets de bords jouent alors un rôle important. La courbe d'évolution de la taille moyenne des grains ne suit plus une croissance monotone, on observe des paliers (fig. 3) et l'évolution ne peut plus être décrite par une loi de Burke et Turnbull. Il faut donc faire un compromis entre limiter le coût numérique et avoir des résultats que l'on peut décrire sur une durée comparable à celle de l'expérience. On considère que lorsque l'on commence à observer des paliers sur la courbe d'évolution (on parlera de temps critique dans la suite), les résultats de la simulations sont affectés par les effets de bords et ne peuvent plus être considérés pour le reste de l'analyse. Comme la vitesse de croissance est fortement dépendante de la température et de l'énergie d'activation, le temps critique est également dépendant de ces deux paramètres. Le tableau 4 résume ces différents temps critiques pour la taille de domaine choisi (0,2x0,2mm) et pour les différentes valeurs de température et énergies d'activation utilisées.

3.2 Résultats

Les courbes d'évolution de la taille moyenne des grains dans le temps sont présentées en figure 5 sous la forme $log(< R >^2 - < R_0 >^2) = f(log(t))$. La pente de cette courbe représente ainsi le paramètre n du modèle de

Temperature (K)	1473			1573		
Energie d'activation (kJ/mol)	160	185	200	160	185	200
Temps critique (s)	4300	10400	14500	2300	8400	11000

FIGURE 4 – Récapitulatif des temps critiques pour un domaine de 0,2x0,2mm pour les différentes valeurs de température et énergies d'activation utilisées.

Burke et Turnbull. L'ordonnée à l'origine permet d'évaluer le paramètre α du même modèle à partir du produit $M\gamma$ considéré ici comme connu.

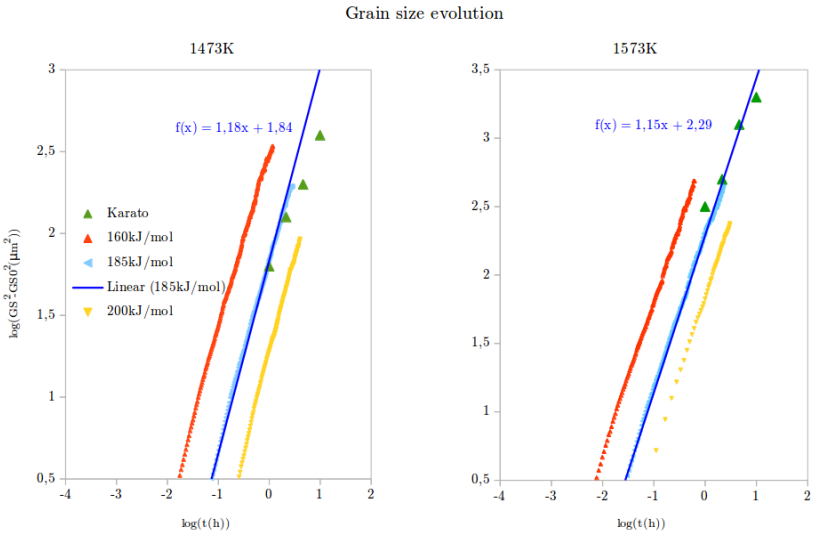


FIGURE 5 – courbes expérimentales et simulées, de $log(< R >^2 - < R_0 >^2) = f(log(t))$, à gauche à 1473K et à droite à 1573K.

Les simulations pour les énergies d'activations de 160 et 200kJ/mol sont éloignés des résultats expérimentaux d'au moins un demi ordre de grandeur ce qui n'est pas négligeable. Pour une énergie d'activation de 185kJ/mol, la simulation reproduit bien l'évolution de la taille moyenne des grains obtenue pendant les recuits expérimentaux. Cette évolution peut être modélisée par une loi du type Burke et Turnbull avec $\alpha = 0.29$ et $n = 1.18$ à 1473K et $\alpha = 0.4$ et n=1.15 à 1573K. Karato [7] avait considéré $\alpha = 0.5$ et n=1 ce qui semble en première approximation cohérent avec les résultats de la simulation et la distribution de taille de grains utilisée.
On peut observer sur la figure 6 que la microstructure expérimentale est similaire à la microstructure simulée après deux heures de recuits. La taille de grain et les angles formés par les joints (120°) sont globalement identiques. La valeur de ces angles sur la microstructure expérimentale permet en première approximation de valider l'hypothèse d'isotropie de la mobilité et de l'énergie interfaciale.

4 Conclusion

La comparaison des évolutions de taille de grains expérimentales et simulées a permis de cibler une énergie d'activation pour laquelle le modèle est au plus proche de l'expérience. Cette énergie d'activation pourra être utilisée dans des prochains modèles plus complexes. La confrontation des résultats de la simulation avec l'expérience a en tout cas permis de valider le modèle de croissance de grains de l'olivine pure par capillarité lors d'un recuit isotherme.
Dans les deux cas (simulation et expérience) la vitesse de croissance de grain est relativement élevée, et les grains d'olivine peuvent croître de quelques micromètres jusqu'à une centaine de micromètres en une dizaine d'heures. Une des raisons de cette croissance rapide est la pureté des échantillons considérés. Les joints de grains ne rencontrent aucun obstacle à leur migration de même qu'aucune réaction chimique n'est susceptible de limiter la croissance des grains. Un échantillon naturel de péridotite contient en fait d'autres minéraux qui

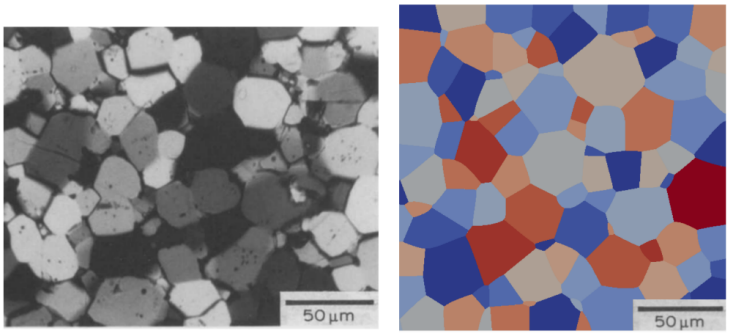


FIGURE 6 – A gauche, microstructure expérimentale [7] et à droite, microstructure simulée après deux heures de recuit à 1573K pour une énergie d'activation de 185kJ/mol.

interagissent avec la croissance des grains d'olivine. Bercovici et Ricard [14] ont montré que les secondes phases agissaient fortement sur la vitesse de croissance et que leur présence pouvait limiter la taille maximale des grains dans un échantillon. Cette limitation pourrait être modélisée par un mécanisme de pinning de Smith-Zener dont l'implémentation dans notre code EF est déjà effective [15]. La prise en compte du pinning serait dans un premier temps une manière de modéliser l'influence des particules de secondes phases et ainsi de se rapprocher des conditions naturelles. Dans un second temps, il serait intéressant de considérer des particules de secondes phases possédant leurs propres mobilités, énergies interfaciales, et pouvant elles aussi évoluer.

Références

[1] A.L. Cruz-Fabiano, R. Logé, M. Bernacki, Assessment of simplified 2D grain growth models from numerical experiments based on a level-set framework *Computational Materials Science*, 92 :305–312, 2014.

[2] P. J. Heron, R. N. Pysklywec, R. Stephenson Lasting mantle scars lead to perennial plate tectonics *Nature Communications*, 7 :11834, 2016.

[3] F.J. Humphreys, A unified theory of recovery, recrystallization and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures-I. The basic model. *Acta mater.*, 45(10) :4231–4240, 1996.

[4] J. Duyster, B. Stöckhert, Grain boundary energies in olivine derived from natural microstructures *Contrib Mineral Petrol*, 140 :567–576, 2001.

[5] R.P. Cooper, D.L. Kohlstedt Interfacial energies in the olivin ± basalt system *Advances in Earth and planetary sciences*, 12 :217–228, 1982.

[6] W.T. Read, W. Shockley, Dislocation models of crystal grain boundaries *Phys. Rev.*, 78(3) :275–289, 1950.

[7] S. Karato, Grain growth kinetics in olivine aggregates *Tectonophysics*, 168 :255–273, 1989.

[8] S. Karato, M.S. Paterson, J.D. FitzGerald, Rheology of synthetic olivine aggregates : Influence of grain size and water. *J. Geophys Res.*, 91 :8151–8176, 1986.

[9] J.E. Burke, D. Turnbull, Recrystallization and grain growth *Progress in Metal Physics*, 3 :220–244, 1952.

[10] B. Evans, J. Renner, G. Hirth, A few remarks on the kinetics of static grain growth in rocks *Int J Earth Sciences (Geol Rundsch)*, 90 :83–103, 2001.

[11] M. Bernacki, R.E. Logé, T. Coupez, Level set framework for the finite-element modelling of recrystallization and grain growth in polycrystalline materials *Scripta Materialia*, 64(6) :525–528, 2011.

[12] L. Maire, B. Scholtes, C. Moussa, D. Pino Munoz, N. Bozzolo, and M. Bernacki, Improvement of 3-D mean field models for pure grain growth based on full field simulations. *Journal of Materials Science*, 51(24) :10970–10981, 2016.

[13] K. Hitti, M. Bernacki, Optimized Dropping and Rolling (ODR) method for packing of poly-disperse spheres *Applied Mathematical Modelling*, 37 :5715–5722, 2013.

[14] D. Bercovici, Y. Ricard, Mechanisms for the generation of plate tectonics by two-phase grain-damage and pinning *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 202-203 :27–55, 2012.

[15] A. Agnoli, N. Bozzolo, R. Loge, J.-M. Franchet, J. Laigo, and M. Bernacki, Development of a level-set methodology to simulate grain growth in the presence of real secondary phase particles and stored energy - Application to a nickel-base superalloy *Computational Materials Science*, 89 :233–241, 2014.