



**HAL**  
open science

# Formation de structures de grains dans des Alliages a solidification dendritique - Modélisation couplée automates cellulaires et éléments finis

Gildas Guillemot

► **To cite this version:**

Gildas Guillemot. Formation de structures de grains dans des Alliages a solidification dendritique - Modélisation couplée automates cellulaires et éléments finis. Matériaux. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004. Français. NNT: . tel-01445968

**HAL Id: tel-01445968**

**<https://minesparis-psl.hal.science/tel-01445968>**

Submitted on 31 Jan 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.

**THESE DE DOCTORAT  
DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

Spécialité : Science et Ingénierie des Matériaux  
Ecole Doctorale Energie Mécanique Matériaux

*Réalisée au*

Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie à  
l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Nancy

Présentée par

Gildas GUILLEMOT

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

---

**FORMATION DE STRUCTURES DE GRAINS DANS DES  
ALLIAGES A SOLIDIFICATION DENDRITIQUE**

-

**MODELISATION COUPLEE  
AUTOMATES CELLULAIRES ET ELEMENTS FINIS**

---

*Soutenue le 7 Juillet 2004*

*Devant le jury composé de :*

M. M. Bellet	Rapporteur
M. Y. Fautrelle	Rapporteur
M. M. Bobadilla	Examineur
M. A. Jacot	Examineur
M. Ch.-A. Gandin	Co-directeur de Thèse
M. H. Combeau	Directeur de Thèse

## *Remerciements*

Le travail de recherche présenté ici s'est réalisé dans le cadre des projets CETSOL 1 et CETSOL 2, financés par l'Agence Spatiale Européenne (ESA). Ces deux projets ont regroupé de nombreux partenaires, tant au niveau académique (Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie (Nancy), Laboratoire Matériaux et Microélectronique de Provence (Marseille), Commissariat à l'Energie Atomique (Grenoble), Centre National d'Etudes Spatiales, ACCESS (D), University College de Dublin (IR), Département des Matériaux de l'Université d'Oxford (GB), Institut für Theoretische Physik/Computerorientierte Theor. Physik de l'Université de Magdeburg (D), Département d'Etudes Mathématiques de l'Université de Southampton (GB)) qu'au niveau industriel (ABB (CH), Alcan International Ltd (GB), Pechiney (F), ASCOMETAL-CREAS (F), Aubert & Duval (F), British Steel (GB), Calcom S.A. (CH), Federal Mogul (D), Helmholtz-Institut für Biomedizinische Technik (D), S&CC (F), Snecma (F), VAW aluminium (D), Honeywell International Technologies Ltd., Waterford (IR), Hydro Aluminium Deutschland GmbH (D), Industeel (F), Arcelor Research (F), Snecma (F)). Je tiens à remercier l'ensemble de ces différents partenaires pour le soutien qu'ils ont apportés à ces deux projets.

Je suis reconnaissant à Monsieur Jean-Marie DUBOIS, directeur de recherche au CNRS et directeur du LSG2M, pour m'avoir accueilli dans ce laboratoire durant toutes ces années et avoir permis que ce travail se déroule dans les meilleures conditions possibles.

Je tiens à remercier Monsieur Gérard LESOULT, Professeur à l'Ecole des Mines de Nancy, pour avoir accepté que j'intègre le groupe de recherche "Solidification" qu'il dirige au LSG2M et pour m'avoir donné les moyens matériels de réaliser l'ensemble de mon travail de recherche.

Je souhaite également adresser tous mes remerciements à Messieurs Michel BELLET, Maître de Recherche à l'Ecole des Mines de Paris, et Yves FAUTRELLE, Professeur à l'ENSHMG, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse et pour l'intérêt qu'ils ont manifesté envers celle-ci. De même, je souhaite remercier Messieurs Manuel BOBADILLA et Alain JACOT pour avoir accepté d'en être les examinateurs. Je leur suis reconnaissant de leurs nombreuses questions et du regard critique qu'ils ont su apporter à mon travail.

Je voudrais manifester toute ma gratitude à Monsieur Hervé COMBEAU, Professeur à l'Ecole des Mines de Nancy, pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse et pour la liberté qu'il m'a accordée dans ma recherche au cours de toutes ces années. Je tiens à le remercier également pour les nombreuses remarques pertinentes qu'il m'a faites lors de nos réunions.

Je voudrais vivement remercier Monsieur Charles-André GANDIN, Chargé de Recherche au CNRS, qui a été le co-directeur de cette thèse. Sa connaissance du sujet et l'encadrement qu'il m'a fourni m'ont donné la possibilité de progresser constamment. Lorsque j'en ai eu besoin, sa disponibilité m'a également été précieuse. Je souhaite aussi le remercier pour les nombreuses lectures qu'il a faites de ce travail de rédaction et les corrections qu'il m'a permis d'y apporter.

Je voudrais également remercier les autres membres du LSG2M sans lesquels ce travail n'aurait pu se dérouler dans d'aussi bonnes conditions. Je pense notamment à Monsieur Francesco GIANNANGELI, responsable informatique du LSG2M, qui a toujours été présent pour m'aider lors de mes problèmes informatiques. Je souhaiterais également exprimer toute ma gratitude à Monsieur Bernard DUSSOUBS, Ingénieur Calcul du LSG2M, pour les conseils avisés qu'il m'a donnés lors de nos nombreuses discussions.

Enfin, je tiens à remercier mes parents pour m'avoir donné la possibilité de faire des études et les moyens de réussir. Je leur suis reconnaissant du soutien qu'ils m'ont apporté tout au long de ces années.



## Table des matières

<b><u>I. Introduction</u></b>	1
<b><u>II. Revue Bibliographique</u></b>	5
II.1. Présentation générale du phénomène de solidification	5
II.1.1. Aspect thermodynamique de la solidification	5
II.1.1.a. Phénomènes de transformation solide/liquide	5
II.1.1.b. Ecart à l'équilibre à l'interface de solidification	7
➤ <i>Ecart à l'échelle macroscopique</i>	8
➤ <i>Ecart à l'échelle microscopique</i>	10
➤ <i>Bilans des écarts</i>	12
II.1.2. Présentation des structures finales de solidification	13
II.2. Loi de croissance d'une pointe de dendrite en surfusion	14
II.2.1. Croissance en régime purement diffusif	14
II.2.1.a. Relation d'Ivantsov	14
II.2.1.b. Critère de stabilité marginale	15
➤ <i>Longueur d'onde déstabilisante</i>	17
➤ <i>Cas du corps pur</i>	19
➤ <i>Cas des alliages</i>	21
➤ <i>Application</i>	22
II.2.2. Croissance en régime de convection	24
II.2.2.a. Aspects généraux sur la croissance en présence de convection	24
II.2.2.b. Calcul des cinétiques de croissance	27
II.3. Formation des structures de grains dendritiques	31
II.3.1. Structure colonnaire	31
II.3.1.a. Expériences	31
II.3.1.b. Modélisation	33
II.3.2. Structure équiaxe	35
II.3.2.a. Expériences	39
➤ <i>Etude globale de la croissance équiaxe</i>	39
➤ <i>Etude de grains fixes isolés</i>	40
➤ <i>Etude de grains sédimentants</i>	40

II.3.2.b. Modélisation	43
➤ <i>Croissance de grains</i>	43
➤ <i>Sédimentation</i>	45
II.3.3. Transition colonnaire/équiaxe	50
II.3.3.a. Expériences	50
II.3.3.b. Prédiction de la position de la CET	52
➤ <i>Critère de Hunt</i>	52
➤ <i>Approche stochastique</i>	54
➤ <i>Approche thermique</i>	55
➤ <i>Critère solutal</i>	56
II.4. Ségrégations dans les alliages métalliques	57
II.4.1. Mesures de l'enrichissement en soluté du lingot	57
II.4.1.a. Caractéristiques générales	57
II.4.1.b. Ségrégation inverse	59
II.4.1.c. Les dispositifs type Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74]	59
II.4.2. Modélisation de la ségrégation	61
II.4.2.a. Microségrégation	62
II.4.2.b. Macroségrégation	64
<b>III. <u>Modèles microscopiques</u></b>	69
III.1. Présentation de la méthode des automates cellulaires	69
III.1.1. Approche stochastique de la modélisation	69
III.1.2. Informations propres aux cellules	70
III.1.2.a. Position et interpolation	70
III.1.2.b. Voisinage et croissance	71
III.1.2.c. Etat	72
➤ <i>Pour <math>I_v^S</math> :</i>	72
➤ <i>Pour <math>I_v^G</math> :</i>	72
III.1.2.d. Grandeurs caractéristiques	72
III.2. Capture des cellules	73
III.2.1. Germination	73
➤ <i>Cellule libre</i>	73
➤ <i>Température de liquidus atteinte</i>	73
➤ <i>Surfusion de germination atteinte</i>	74

III.2.2. Croissance	75
III.2.2.a. Initialisation de la forme de croissance d'une cellule capturée	76
III.2.2.b. Modèle géométrique et validation	79
III.2.3. Déplacement	82
III.3. Cinétique de capture des cellules	85
III.3.1. Germination	85
III.3.2. Croissance	86
III.3.2.a. Méthode en couche limite	89
III.3.2.b. Comparaison avec les résultats de Glicksman	95
III.3.3. Déplacement	98
III.4. Micro pas de temps	100
IV. <u>Couplage micro-macro</u>	103
IV.1. Equations macroscopiques	103
IV.2. Couplage avec phases fixes (thermique)	106
IV.2.1. Rétrocession de la température et de la fraction solide	106
➤ <i>Cellule liquide</i>	108
➤ <i>Cellule pâteuse</i>	108
➤ <i>Cellule eutectique</i>	109
➤ <i>Cellule solide</i>	110
IV.2.2. Validation du couplage thermique	111
IV.3. Couplage avec phases en mouvement (macroségrégation)	116
IV.3.1. Hypothèses principales	116
IV.3.2. Transport des variables thermodynamiques $H$ , $w$ , $T$ , $g^s$	117
IV.3.3. Transport de la vitesse liquide / Conservation de la masse	118
IV.3.4. Modification du terme de friction volumique	119
IV.3.4.a. Calcul de la force de friction volumique $\mathbf{M}$	120
IV.3.4.b. Détermination des paramètres	122
IV.3.5. Calcul de $w^{1n}$	123
IV.3.6. Loi de solidification	124
IV.4. Algorithme général détaillé	125
IV.5. Validation du couplage CAFE	127
IV.5.1. Colonne liquide	127
IV.5.2. Macroségrégation	129

<b>V. <u>Comparaisons expérimentales</u></b>	135
V.1. Sédimentation de cristaux équiaxes	135
V.1.1. Présentation de l'expérience	135
V.1.1.a. Dispositif	135
V.1.1.b. Compositions	135
V.1.1.c. Propriétés	137
V.1.2. Simulation de la chute de cristaux équiaxes	142
V.1.2.a. Chute à vitesse imposée sans couplage	142
V.1.2.b. Chute libre sans couplage	145
V.1.2.c. Influence de $g^{sm}$	150
V.1.2.d. Chute libre avec couplage	151
V.1.3. Bilan et perspectives	152
V.2. Expérience de solidification d'Hebditch et Hunt	154
V.2.1. Structures colonnaires	154
V.2.1.a. Monograin	155
➤ <i>Instabilités</i>	157
➤ <i>Ségrégation</i>	158
➤ <i>Comparaison expérimentale</i>	160
➤ <i>Rôle de l'orientation</i>	162
V.2.1.b. Croissance de plusieurs grains	164
➤ <i>Structure</i>	164
➤ <i>Ségrégation</i>	165
V.2.2. Structures colonnaires et équiaxes	166
V.2.2.a. Grains fixes	166
➤ <i>Comparaison de la structure et de la ségrégation</i>	167
➤ <i>Profil de composition</i>	169
V.2.2.b. Grains libres	169
➤ <i>Comparaison de la structure et de la ségrégation</i>	170
➤ <i>Profil de composition</i>	173
V.2.3. Bilan et perspectives	174
<b>VI. <u>Conclusion et Perspectives</u></b>	177

<u>Références bibliographiques</u>	180
<u>Annexes</u>	191
Annexe 1 - Principaux Symboles et Notations	191
Annexe 2 - Cinétique de croissance en régime diffusif	197
Annexe 2 - Cinétique de croissance en régime convectif	201
Annexe 3 - Lois de sédimentation	206
Annexe 4 - Equations macroscopiques	214
Annexe 6 - Calcul des concentrations d'aire interfaciale	216

# **I. Introduction**

Les entreprises industrielles font un grand usage des métaux et de leurs dérivés. Depuis la seconde révolution industrielle, qui a débuté à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle, cette consommation n'a cessé de progresser et de se diversifier. Ainsi de 35 millions de tonnes (Mt) en 1900 la production mondiale d'acier, principal produit métallurgique élaboré industriellement, est passée à 341 Mt en 1960 jusqu'à atteindre près de 800 Mt en 1997 [Qui00]. La progression de l'aluminium est encore plus spectaculaire, passant de 7300 t en 1900 à 3,7 Mt en 1960 pour atteindre près de 22 Mt à la fin du vingtième siècle [Lar82]. D'autres métaux tels que le cuivre, le zinc ou le plomb ont également connu des progressions similaires au cours du siècle passé pour atteindre des productions comprises entre 5 et 15 Mt en 1997 [Qui00]. L'ajout d'autres éléments, métalliques ou non, à des métaux purs permet de créer des alliages avec des propriétés d'usage améliorées par rapport au corps pur dont ils sont issus. Les conditions de solidification ou d'usinage des métaux purs peuvent également être modifiées de cette manière.

Le travail de métallurgie qui va permettre de passer du minerai brut au produit fini passe par diverses étapes. Lorsque le métal ou l'alliage métallique doit être mis en forme, l'une des opérations possibles est la coulée du métal liquide. Cette coulée peut se faire dans une lingotière fermée, pouvant contenir jusqu'à quelques centaines de tonnes de métal, ou à travers un moule sans fond (procédé de coulée continue).

Lors du processus de solidification de l'alliage métallique, on observe l'apparition de structures à l'orientation cristallographique déterminée, appelées 'grains' qui, en se développant, vont recouvrir progressivement les domaines encore liquides. Les conditions particulières de croissance de ces structures permettent généralement l'apparition d'instabilités à l'interface solide/liquide, formant des structures ramifiées nommées dendrites (du grec 'dendros' signifiant 'arbre'). Deux types de grain de structure dendritique sont alors discernables selon leur morphologie. Ainsi les grains allongés, généralement formés depuis les parois du moule sont qualifiés de 'grains colonnaires' à la différence des grains de morphologie plus isotrope apparus dans le bain liquide et libres de leur mouvement, nommés 'grains équiaxes'. Les croissances compétitives de ces deux types de structures de grains vont faire apparaître deux zones bien distinctes dans le volume solide formé, la 'zone colonnaire', développée à partir de la paroi de la lingotière occupée par les grains colonnaires, et la 'zone équiaxe' présente généralement au centre du volume et regroupant les grains équiaxes. La transition, de taille étroite, et permettant une distinction claire entre les deux domaines est couramment nommée transition colonnaire-équiaxe ou CET, (*Columnar-to-Equiaxed Transition*). De même, les hétérogénéités de composition sont dépendantes des structures formées. Ainsi, le raffinement des grains équiaxes, provoqué par inoculation, tend à augmenter les écarts de composition à l'intérieur des lingots [Les01].

Un grand nombre de recherches ont été menées depuis une cinquantaine d'années afin de comprendre comment ces deux types de structures se développent et interagissent avec le liquide environnant, jusqu'à aboutir au métal solidifié. L'une des manifestations principales de ces recherches au cours des vingt dernières années a été le développement de codes de calculs performants, grâce notamment aux progrès informatiques, qui ont permis l'étude des phénomènes de solidification à des échelles spatiales de plus en plus fines et sur des échelles de temps de plus en plus grandes. Ces travaux ont notamment permis d'améliorer la prédiction du processus de ségrégation. Celui-ci se manifeste aux différentes échelles caractérisant le phénomène de solidification. Il débute à l'échelle des bras dendritiques, sous la forme de microségrégations, avec le rejet du soluté dans le domaine liquide, dû au changement de phase. Partant de la périphérie des bras, la composition locale, relativement élevée, diminue, sur une distance de l'ordre de plusieurs dizaines de microns, lorsque l'on se rapproche du cœur de la dendrite. A ce niveau, on retrouve la composition de la phase solide formée aux premiers instants de la solidification. A une échelle supérieure de l'ordre du millimètre, au niveau des grains, apparaissent également des évolutions de la composition qualifiées de mésoségrégations. Le soluté rejeté dans le milieu liquide hors du grain, enrichi le liquide extradendritique. Le grain a alors tendance à se développer dans un milieu de composition plus importante, ce qui modifie également la composition du domaine solide formé. Enfin, à l'échelle de l'ensemble du procédé, dont la taille très variable, évolue entre plusieurs centimètres et quelques mètres, on retrouve également des hétérogénéités de composition qualifiées de macroségrégations. Le transport du soluté par le liquide ou le déplacement des grains sont les causes de ce phénomène.

Le travail de recherche que nous avons mené s'inscrit dans le cadre du projet CETSOL (*Columnar to Equiaxed Transition in SOLidification processing*) dont le but est l'étude de la formation des structures dendritiques dans les alliages métalliques et de la transition entre les structures équiaxes et colonnaires. Dans ce but, il a regroupé plusieurs laboratoires et industriels européens. L'une des particularités de ce projet de recherche a été de travailler sur plusieurs échelles, à la fois microscopique et macroscopique et sur des aspects tant expérimentaux que de modélisation, avec pour ambition de mener une confrontation des simulations avec les observations.

Dans le cadre de ce projet, nous nous sommes notamment intéressés à l'étude du déplacement des cristaux équiaxes qui, dans le bain liquide, sont libres de sédimenter ou d'être transportés par le mouvement du liquide. Nous avons ainsi étendu à la modélisation de ce déplacement la méthode des automates cellulaires. Le modèle développé se base sur un couplage entre les deux approches, à la fois microscopique, où nous nous intéressons au développement et aux déplacements possibles des grains, et macroscopique, où sont résolues les équations de conservations moyennées de la chaleur, de la masse, du soluté et de la quantité de mouvement du liquide. Ce modèle nous a permis d'étudier l'influence du déplacement des grains sur l'évolution temporelle de la composition moyenne, de la température et des fractions de solide. Le principal objectif de ce travail était notamment l'étude de l'influence de la sédimentation sur la mésoségrégation.

Dans une première partie, nous présenterons différentes considérations générales sur la solidification des alliages dendritiques métalliques, notamment les principes physiques guidant le phénomène de transformation de phase. Nous nous intéresserons ensuite aux lois de croissance d'une pointe de dendrite dans un liquide en surfusion et à l'influence du mouvement du liquide sur celles-ci. Cela nous permettra d'étudier la formation des structures de grains, leur développement et les moyens de déterminer la position de la CET. Nous décrirons également les lois qui guident le déplacement des cristaux équiaxes. Enfin, une dernière partie de cette revue bibliographique sera consacrée à l'étude du phénomène de ségrégation et des différentes échelles spatiales auxquelles il se produit.

En seconde partie, nous détaillerons le modèle microscopique que nous avons développé afin de prédire le développement des grains équiaxes et colonnaires. Pour cela, nous ferons d'abord une description de l'utilisation que nous faisons de la technique des automates cellulaires. Nous présenterons ensuite les algorithmes de capture des cellules qui permettent la modélisation des processus de germination, de croissance des structures dendritiques et de déplacement des grains équiaxes. Nous nous intéresserons ensuite au calcul des cinétiques de capture utilisées par ces algorithmes. Ainsi, nous décrirons les lois de germination utilisées. Nous détaillerons également le modèle de cinétique de croissance des pointes de dendrite que nous avons développé, en utilisant une méthode en couches limites solutales, et sa validation à l'aide d'expériences menées sur des matériaux transparents [Gli82]. Le modèle de déplacement des grains équiaxes sera aussi présenté. Enfin, nous étudierons et préciserons le calcul de l'échelle temporelle à laquelle sera réalisée cette modélisation en automates cellulaires.

Après cette étude menée à l'échelle de la structure, dans une troisième partie, nous avons choisi de présenter l'aspect 'couplage' de notre travail. Les informations recueillies de la modélisation microscopique sont utilisées à une échelle spatiale supérieure correspondant au maillage en éléments finis. Afin de différencier le couplage en microségrégation de celui propre à la modélisation de la macroségrégation, nous avons successivement étudié et validé les deux aspects de façon indépendante, en en donnant parallèlement des algorithmes détaillés. Nous présenterons ainsi l'amélioration apportée, par l'introduction d'une variable supplémentaire, au modèle de couplage en microségrégation qui existait au début de cette étude pour la prédiction de courbes de refroidissement [Gan94]. En ce qui concerne la macroségrégation, celle-ci se produisant notamment par le déplacement relatif des phases solide et liquide en présence, nous étudierons ces déplacements et les interactions qui existent entre-elles. La méthode de résolution de l'équation de conservation de la masse à l'échelle microscopique que nous proposons sera validée à l'aide d'une solution analytique. La validation du couplage complet sera faite en comparant nos propres résultats à ceux donnés par un calcul purement macroscopique [Jal00], simulant une expérience de solidification d'un alliage Pb-48%pds Sn [Heb73, Heb74].

Finalement, la validation et les limites de notre modèle seront montrées en confrontant les résultats qu'il nous permet d'obtenir à ceux résultant de deux séries d'expériences. La première concerne les expériences de sédimentation de cristaux équiaxes de chlorure d'ammonium menées par Gérardin [Ger02]. L'évolution du diamètre des grains permettra de valider notre modèle de



cinétique de croissance, alors que l'étude des profondeurs atteintes au cours du temps nous obligera à une discussion plus critique et à la proposition d'améliorations. La confrontation avec les résultats expérimentaux du lingot Pb-48%pds Sn [Heb73, Heb74] constituera la seconde partie de cette confrontation expérimentale. Nous étudierons progressivement les résultats obtenus par notre modèle. Nous montrerons le résultat de la simulation du développement de structures colonnaires et l'existence, dans les conditions de cette expérience, d'une instabilité au front de solidification. Ses conséquences sur le champ de ségrégation seront montrées. L'étude de la croissance et de la sédimentation des grains équiaxes dans le bain liquide nous montrera alors le lien existant entre la taille des structures observées et l'évolution des profils de composition. La formation de canaux ségrévés sera également observée.

Ces confrontations expérimentales seront autant d'éléments qui nous permettront de conclure quant à la validité de notre démarche mais également à ses limites et aux perspectives d'améliorations futures à apporter.

## II. Revue Bibliographique

Lors de la solidification des alliages industriels, différents types de structures de grains peuvent apparaître et se développer. Comme il a été présenté en introduction, ces structures sont généralement composées de grains qualifiés d'équiaxes ou de colonnaires. La connaissance de l'importance et de la localisation de ces structures demeure primordiale dans la prédiction des propriétés du matériau élaboré. Une structure de grains équiaxes présente généralement de meilleures propriétés mécaniques qui, en raison du caractère non orienté des grains, sont également plus isotropes. Il est donc nécessaire de connaître les principes généraux gouvernant la solidification des alliages. Nous nous proposons dans une première partie de présenter ces principes généraux. Dans une seconde partie, nous discuterons des lois gouvernant la cinétique de croissance de la pointe d'une dendrite. Nous détaillerons ensuite de quelle manière la structure de grains se forme. Enfin, nous étudierons le phénomène de ségrégation à la fois par une approche microscopique (microségrégation) et macroscopique (macroségrégation).

### II.1. Présentation générale du phénomène de solidification

Certains aspects sont généraux au phénomène de solidification. Dans une première partie, nous allons nous attacher à décrire les principes thermodynamiques qui guident le phénomène de solidification, notamment les écarts à l'équilibre existant à la frontière entre les deux phases en présence. Dans une seconde partie, nous nous intéresserons à l'aspect structural de la solidification en présentant les différents types de grains observables.

#### II.1.1. Aspect thermodynamique de la solidification

##### II.1.1.a. *Phénomènes de transformation solide/liquide*

Lorsqu'un alliage liquide est refroidi à partir d'une température initiale  $T_0$ , sa solidification n'est pas immédiate. Au-dessus d'une certaine température  $T_L$ , appelée température de liquidus, le mélange est entièrement liquide (l). En dessous d'une autre température  $T_S$ , inférieure à  $T_L$ , appelée température de solidus, le mélange est solide (s). Entre ces températures, il passe par un état intermédiaire qualifié de pâteux (m), où les deux phases coexistent (Fig.II.1).

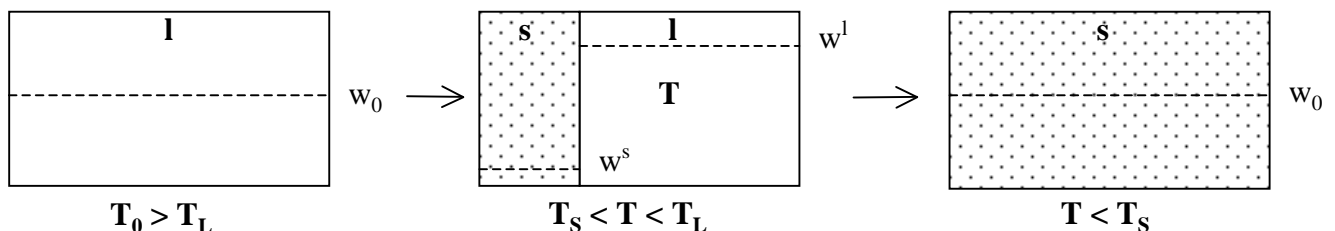


Fig. II.1: Evolution, à l'équilibre thermodynamique et en système fermé, d'un alliage binaire de composition  $w_0$  entre la température initiale  $T_0$ , supérieure à  $T_L$ , et la température finale, inférieure à  $T_S$ . Les titres en soluté dans le solide,  $w^s$ , et dans le liquide,  $w^l$ , évoluent selon les valeurs données par le diagramme de phases propre à l'alliage.

Cette évolution est due à la minimisation de l'enthalpie libre du système,  $G$ . Entre  $T_S$  et  $T_L$ , lorsque la température  $T$ , la pression  $P$  et la composition du système  $w_0$ , sont fixées, la minimisation de l'enthalpie libre ne conduit pas à avoir un système entièrement solide ou liquide mais à une coexistence des deux états dans des proportions fixées. Cette coexistence traduit le fait que le mélange des deux phases est effectivement plus stable que les phases liquides ou solides prises isolément. Dans le cas simplifié d'un alliage binaire, cette proportion s'exprime simplement à partir de la 'règle des leviers' selon l'équation suivante :

$$f^s = \frac{w^l - w_0}{w^l - w^s} \quad (\text{II.1})$$

où  $f^s$  représente la fraction massique de solide,  $w_0$  la composition massique moyenne en soluté et  $w^s$  et  $w^l$  les compositions massiques, à la température  $T$  du mélange, du solide et du liquide, respectivement.

Afin de faciliter la compréhension de l'évolution d'un système binaire, on représente traditionnellement son état thermodynamique le plus stable, à pression donnée, en fonction de sa composition et de sa température dans un diagramme appelé diagramme de phases. On a schématisé un tel diagramme à la figure II.2 dans le cas d'un alliage binaire, constitué des éléments A et B. Il permet de déterminer, lorsque les valeurs initiales de la concentration en élément B,  $w$ , et de la température sont connues, l'état vers lequel le système doit évoluer.

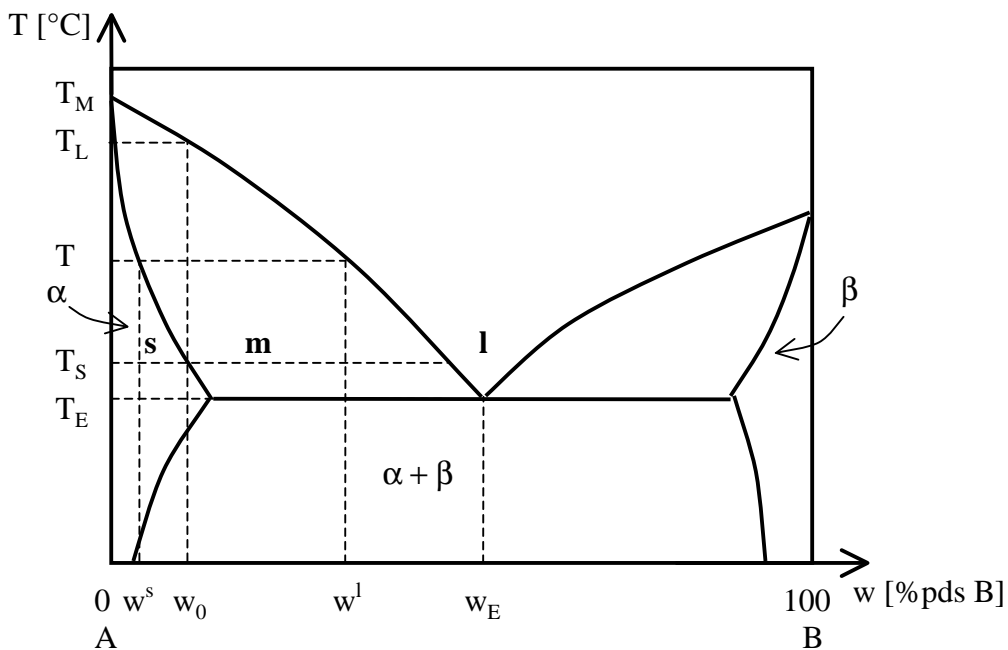


Fig. II.2 : Portion d'un diagramme représentant les phases en présence en fonction de la température et de la composition pour un système binaire A-B. A la température  $T$ , pour une composition moyenne du système en élément B,  $w_0$ , les phases liquide ( $l$ ) et solide ( $s$ ) en présence ont respectivement des compositions  $w^l$  et  $w^s$ . Le phénomène de solidification a débuté lorsque la température est descendue en dessous de  $T_L$  et se poursuit jusqu'à atteindre  $T_S$ . La phase  $\alpha$  est riche en élément A (la composition  $w$  est faible) et la phase  $\beta$  riche en élément d'alliage B (la composition  $w$  est élevée). Pour une concentration nulle en élément d'alliage B, la transformation s'opère à une température constante, la température de fusion  $T_M$  du corps pur A. Pour une concentration en élément d'alliage  $w_E$ , le liquide se solidifie, à température eutectique  $T_E$ , en une structure diphasique  $\alpha + \beta$  dénommée eutectique.

Ce diagramme permet également de définir le coefficient de partage,  $k$ , égal, à une température donnée,  $T$ , au rapport entre les compositions des phases solide et liquide en présence :

$$k = \frac{w^s}{w^l} \quad (\text{II.2})$$

Cette valeur positive est très fréquemment inférieure à 1 [Les86], comme représenté sur la figure II.2. On définit, de même, la pente locale,  $m$ , de la courbe de liquidus par la dérivée de la température  $T_L$  en fonction de  $w$  :

$$m = \frac{\partial T_L}{\partial w} \quad (\text{II.3})$$

Il est fréquent que des alliages ne poursuivent pas leur solidification jusqu'aux températures ambiantes en faisant disparaître progressivement la phase liquide avec laquelle ils sont en présence. Habituellement, il existe une température, appelée 'température eutectique',  $T_E$ , en dessous de laquelle le liquide cesse d'être une phase thermodynamiquement stable. A cette température correspond, d'après le diagramme de phase, une concentration, dénommée eutectique,  $w_E$ , pour laquelle le liquide se dissocie en deux phases solides, l'une riche en composé B dans la phase  $\beta$ , l'autre riche en composé A dans la phase  $\alpha$  (Fig. II.2). Cette nouvelle microstructure se présente sous une forme fibreuse ou lamellaire, plus ou moins régulière comme présentée à la figure II.3.

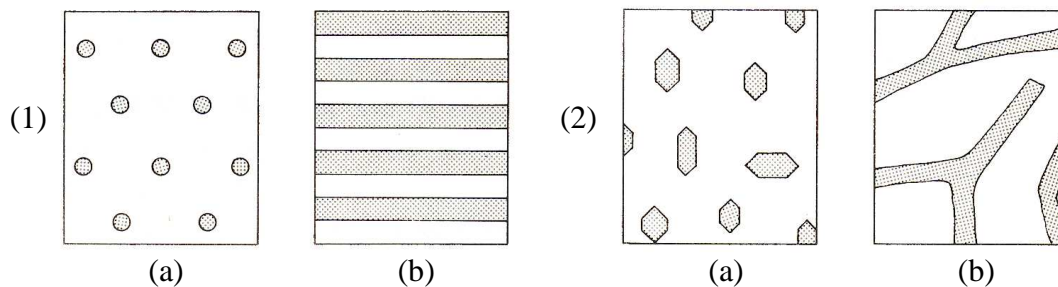


Fig. II.3: Présentation de microstructures formées à l'eutectique. La zone blanche correspond à la phase  $\alpha$  et la zone grisée à la phase  $\beta$ . Les structures régulières observées en 1) sont dues au fait que les deux phases présentent de basses entropies de fusion permettant aux structures formées d'être régulières. A l'opposée, si la phase  $\beta$  possède une entropie de fusion plus élevée, on observe les structures facettées irrégulières présentées en 2) [Kur92]. Les figures (a) correspondent à de faibles fractions volumiques de phases  $\beta$  et les figures (b) à des fractions volumiques importantes.

### II.1.1.b. Ecarts à l'équilibre à l'interface de solidification

Nous venons de voir comment traiter la solidification d'alliages à l'équilibre thermodynamique. En fait, la présentation de la figure II.2 n'est valide que si les éléments de solutés diffusent parfaitement et la solidification débute à la température de liquidus pour se terminer à la température de solidus ou d'eutectique. Cependant, tant du point de vue expérimental que théorique, le phénomène de transformation liquide  $\rightarrow$  solide est plus complexe et ce à plusieurs échelles.

➤ **Ecart à l'échelle macroscopique**

Il n'est pas possible de considérer qu'un alliage se solidifie de façon isotherme en conservant une concentration uniforme. Il existe des évolutions de la température et de la composition plus ou moins marquées à l'interface solide-liquide dues à l'existence de phénomènes de diffusion et de convection. Dans le cas de la chaleur, il est possible de caractériser ces phénomènes en considérant deux zones dans le domaine liquide devant la phase solide. La première commence au front de solidification et se prolonge, dans le liquide, sur une épaisseur  $\delta_{th}^l$ , jusqu'à atteindre une température  $T^{l\infty}$ . En son sein se déroule le phénomène de conduction thermique, prépondérant sur de petites distances. La seconde se développe ensuite pour s'étendre au reste du liquide et correspond à un transport de la chaleur par convection, sur de grandes distances [Les86]. De même, il est possible de définir une distance caractéristique  $\delta_c^l$  avant laquelle le soluté est diffusé et au-delà de laquelle il est transporté par convection. A la frontière entre ces deux domaines, on trouve une composition  $w^{l\infty}$ . La figure II.4 illustre ces phénomènes dans le cas simple d'une interface plane en solidification dirigée.

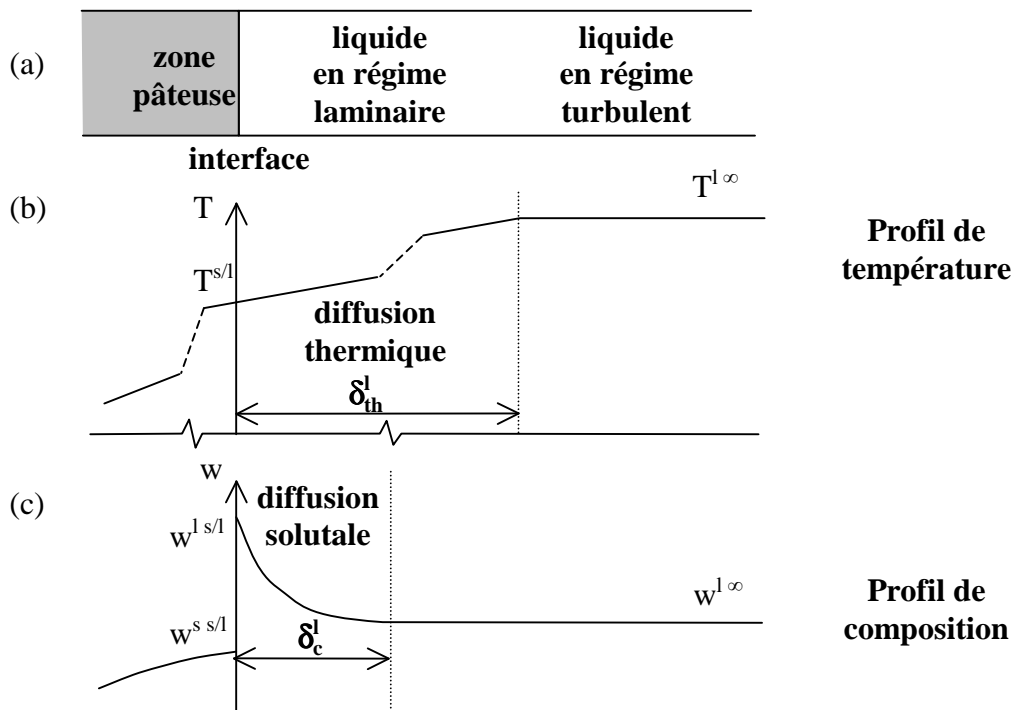


Fig. II.4: Profil d'évolution, d'après [Les86], de la température b) et de la composition c) à la frontière solide/liquide,  $s/l$ , dans le cas d'une interface plane en croissance dirigée. Dans la couche limite thermique, d'épaisseur  $\delta_{th}^l$ , la température augmente de  $T^{s/l}$  à  $T^{l\infty}$ . Dans la couche limite solutale, d'épaisseur  $\delta_c^l$ , la composition décroît de  $w^{l\infty}$  à  $w^{s/l}$ . Dans ces deux domaines, on considère que seuls se déroulent des phénomènes de diffusion.

Il peut être utile dans le cas des métaux, de donner un ordre de grandeur à ces couches limites. La diffusivité thermique dans le liquide,  $D_{th}^l$ , est définie par le rapport entre  $\kappa^l$ , la conductivité thermique du milieu et  $C_p^l$  sa capacité calorifique volumique :

$$D_{th}^l = \frac{\kappa^l}{C_p^l} \quad (II.4)$$

Dans le cas d'une vitesse d'avancée d'un front de solidification,  $v_f$ , de  $100 \mu\text{m s}^{-1}$ , on trouve ainsi une longueur caractéristique de diffusion thermique  $\delta_{th}^l$  de l'ordre de plusieurs centimètres. On utilise pour cela la relation II.5, qui permet de quantifier la longueur sur laquelle se fait l'échange de chaleur dans le cas d'un régime purement diffusif :

$$\delta_{th}^l = \frac{D_{th}^l}{v_f} \quad (II.5)$$

Il est habituel de trouver des rapports entre les coefficients de diffusion thermique,  $D_{th}^l$ , et solutale,  $D_c^l$ , dans le liquide, de l'ordre de 100 à 1000. Ceci implique, dans les mêmes proportions, des épaisseurs de couches limites thermiques  $\delta_{th}^l$  plus grandes que les épaisseurs de couches limites solutales  $\delta_c^l$ , ces dernières étant définies de manière similaire par :

$$\delta_c^l = \frac{D_c^l}{v_f} \quad (II.6)$$

La prise en considération de ces couches limites permet de définir deux surfusions. La première,  $\Delta T_{th}$ , appelée surfusion thermique, est l'écart entre la température interfaciale  $T^{s/l}$  et la température  $T^{l\infty}$  à laquelle le phénomène de diffusion thermique cesse d'être prédominant (Fig. II.4 b)) :

$$\Delta T_{th} = T^{s/l} - T^{l\infty} \quad (II.7)$$

La seconde,  $\Delta T_c$ , est la surfusion chimique associée aux éléments présents en solution. Dans le cas d'un alliage binaire (Fig. II.4 c)), elle est égale à :

$$\Delta T_c = m [w^{l\infty} - w^{l s/l}] \quad (II.8)$$

Les surfusions constituent les forces motrices assurant le développement du front de solidification. Leurs amplitudes traduisent le caractère plus ou moins rapide du phénomène de solidification.

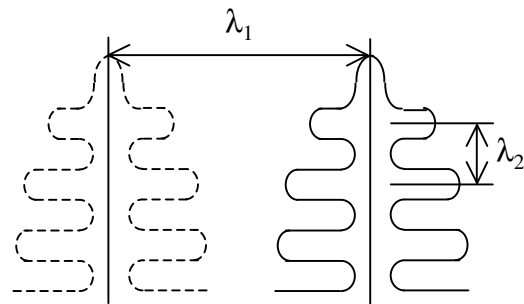
Il est à noter que la surfusion thermique telle qu'elle peut être calculée à partir de la figure II.2 est négative. Cependant, cette figure caractérise la croissance colonnaire, pour laquelle la température loin de la pointe est supérieure à la température interfaciale. L'équation II.7 ne prend véritablement son sens que dans la croissance des grains équiaxes pour laquelle le gradient thermique au front de solidification est négatif dans le liquide et  $\Delta T_{th}$  positif. De même, la surfusion chimique est positive dès lors que la pente du liquidus,  $m$ , est négative et la composition dans le liquide, à l'interface  $s/l$ ,  $w^{l s/l}$ , plus importante que la composition considérée à l'infini,  $w^{l\infty}$ .

➤ **Ecarts à l'échelle microscopique**

Afin de déterminer la relation cinétique liant la valeur des surfusions à la vitesse  $v_f$ , il est nécessaire de se placer à l'échelle de l'interface et de préciser les phénomènes limitant.

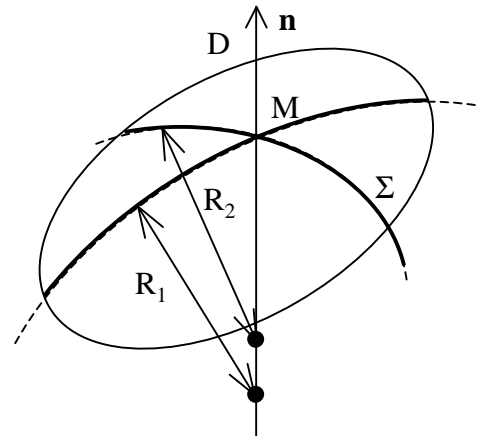
Tout d'abord, une interface de solidification n'est généralement pas plane et présente des irrégularités importantes, notamment dans le régime de croissance dendritique. Celui-ci se caractérise par l'existence d'une structure fine au front se présentant sous la forme de branches de faibles dimensions, parallèles, les bras primaires, sur lesquels se développent des bras secondaires. L'ensemble constitue une dendrite, nommée ainsi en raison de sa forme ramifiée rappelant celle d'un arbre (en grec 'dendros' signifiant 'arbre'). Les phénomènes interfaciaux qui se déroulent à l'échelle de ces structures de faibles tailles ont des conséquences importantes à l'échelle macroscopique du procédé.

Fig. II.5 : Schéma d'une dendrite (trait plein). Le bras principal nommé 'bras primaire' est espacé de son voisin (traits pointillés) par une distance primaire, notée  $\lambda_1$ . Les bras secondaires, orthogonaux, sont séparés par la distance secondaire,  $\lambda_2$ , dont la valeur est d'environ un ordre de grandeur inférieure à celle de  $\lambda_1$ . Dans un procédé de coulée continue,  $\lambda_1$  est de l'ordre de plusieurs dizaines de microns.



Les différentes irrégularités interfaciales permettent de définir des rayons de courbure principaux. En un point M de l'interface, ceux-ci correspondent aux rayons de deux cercles orthogonaux approximant cette interface.

Fig. II.6 : Représentation des rayons de courbure principaux en un point M d'une interface. Les deux cercles tracés partiellement (traits gras) se croisent orthogonalement en M. Leur rayon valent  $R_1$  et  $R_2$  et leur centre (points gras) se trouvent sur la droite (D), portée par la normale  $\mathbf{n}$  à l'interface en M [Les00].



Ces rayons,  $R_1$  et  $R_2$ , définissent la courbure  $\kappa$  de l'interface en M :

$$\kappa = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \tag{II.9}$$

L'existence d'une courbure à l'interface de solidification est un phénomène limitant pour la propagation de cette interface. Pour une interface plane, c'est à dire une courbure nulle ( $R_1$  et  $R_2$  sont infinis), la solidification se réalise à une température  $T_{\kappa=0}^c$ , correspondant, dans le cas d'un corps pur, à la température de fusion. Lorsque l'interface présente une courbure, il est nécessaire

de fournir un travail supplémentaire pour attacher les atomes à l'interface. La température diminue et atteint la valeur  $T_{\kappa}^e$ . La différence entre  $T_{\kappa=0}^e$  et  $T_{\kappa}^e$  constitue la surfusion de courbure  $\Delta T_{\kappa}$ . Elle peut être approximée par la relation de Gibbs-Thomson, soit, dans le cas d'une tension interfaciale solide/liquide  $\gamma^{s/l}$  isotrope [Les86] :

$$\Delta T_{\kappa} = T_{\kappa=0}^e - T_{\kappa}^e = \Gamma \kappa \quad (\text{II.10})$$

où  $\Gamma$  désigne le coefficient de Gibbs-Thomson [Kur92] :

$$\Gamma = \frac{\gamma^{s/l}}{\Delta_s^l S_f} \quad (\text{II.11})$$

avec  $\Delta_s^l S_f$  l'entropie volumique de fusion.

Comme le précise Lesoult [Les86], l'écart,  $\Delta T_{\kappa}$ , entre  $T_{\kappa=0}^e$  et  $T_{\kappa}^e$ , semble faible en comparaison des valeurs de  $\Delta T_{th}$  et  $\Delta T_c$ , voisines de quelques degrés, que l'on trouve habituellement en métallurgie. Le coefficient de Gibbs-Thomson, de l'ordre de  $10^{-7}$  m K, permet, pour une courbure de  $10^6 \text{ m}^{-1}$  d'obtenir des écarts de température de 0,1 K. Ce terme explique pourtant l'existence de la surfusion nécessaire à la germination des cristaux ainsi que la stabilité morphologique des interfaces de croissance dendritique. Néanmoins, le coefficient  $\Gamma$  reste relativement difficile à mesurer, tant dans les alliages métalliques que transparents [Ram97].

A l'interface, la réaction d'attachement des atomes de la phase liquide dans la structure cristallisée solide nécessite une force motrice exprimée en terme d'écart à la température d'équilibre correspondant à une vitesse nulle d'avancée du front [Les86]. Cette surfusion cinétique  $\Delta T_K$  peut être approximée par la relation suivante, notamment dans le cas des métaux purs :

$$\Delta T_K = T_{v_f=0}^e - T_{v_f}^e = \frac{v_f}{\mu_0} \quad (\text{II.12})$$

$T_{v_f=0}^e$  représente la température d'équilibre local, c'est à dire la température de l'interface solide/liquide plane, telle que donnée par le diagramme de phase de la figure II.2. Elle s'identifie à la valeur  $T_{\kappa=0}^e$  précédente et est supérieure à la température  $T_{v_f}^e$  de l'interface avançant à la vitesse  $v_f$ . Le coefficient  $\mu_0$  a pour valeur approchée :

$$\mu_0 \approx \frac{D^l \Delta_s^l S_f V_m^s}{a R_g T_M} \quad (\text{II.13})$$

avec  $D^l$ , coefficient d'autodiffusion dans le liquide  
 $V_m^s$ , volume molaire de la phase solide  
 $a$ , distance de saut assimilée à une distance interatomique  
 $R_g$ , constante molaire des gaz parfaits égale à  $8,314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$



Généralement, le coefficient  $\mu_0$ , est de l'ordre de  $0,01 \text{ m K}^{-1} \text{ s}^{-1}$  [Les86]. En considérant une vitesse d'avancée du front de  $100 \text{ }\mu\text{m.s}^{-1}$ , on aboutit à des surfusions cinétiques de  $0,01 \text{ K}$ . Cette valeur paraît négligeable, au regard des surfusions précédentes, et ne sera pas prise en compte pour les calculs développés dans la suite de ce travail. Il faut cependant noter qu'il existe d'autres substances, notamment les polymères, pour lesquelles l'interface de croissance solide/liquide, lisse, à la différence des métaux, rend difficile l'attachement des atomes [Mer99]. Pour ces substances, on retrouve alors des surfusions de croissance nettement plus élevées.

Les écarts à la température d'équilibre, données par le diagramme de phases, s'interprètent comme des décalages de la courbe de liquidus. Pour une composition du liquide à l'interface solide/liquide,  $w^{l/s/1}$ , la température de liquidus,  $T_L^{s/1}$ , est diminuée des valeurs  $\Delta T_\kappa$  et  $\Delta T_K$ , fonctions de la courbure de l'interface et de sa vitesse d'avancée. La température interfaciale  $T^{s/1}$  est donc égale à cette nouvelle température (Eq. II.14) où, dans un diagramme linéarisé,  $T_L^{s/1}$  est donné par II.15 :

$$T^{s/1} = T_L^{s/1} - \Delta T_\kappa - \Delta T_K \quad (\text{II.14})$$

$$T_L^{s/1} = T_M + m w^{l/s/1} \quad (\text{II.15})$$

Cette dernière valeur correspond à la température d'une interface plane croissant à la concentration liquide  $w^{l/s/1}$  avec une surfusion cinétique négligeable.

### ➤ Bilans des écarts

Finalement, la surfusion totale est définie comme :

$$\Delta T_T = T_L - T^{l/\infty} \quad (\text{II.16})$$

où la température de liquidus,  $T_L$ , fait référence à la composition du liquide,  $w^{l/\infty}$ , au-delà de la couche limite de diffusion.

Le bilan des relations (II.7), (II.8), (II.14) et (II.15) permet d'exprimer  $\Delta T$  comme somme des différentes surfusions intervenant à l'interface de solidification, tant à l'échelle macroscopique que microscopique :

$$\Delta T_T = \Delta T_\kappa + \Delta T_K + \Delta T_c + \Delta T_{th} \quad (\text{II.17})$$

De ce bilan, on retient que la cinétique des pointes de dendrites est directement liée à la valeur de la surfusion totale. En effet, il s'agit de la somme des différentes forces motrices intervenant dans la transformation de phases.

### II.1.2. Présentation des structures finales de solidification

Lors de la solidification industrielle d'un alliage métallique, que ce soit par un procédé de coulée continue ou à l'intérieur d'une lingotière utilisée en fonderie, on observe habituellement trois zones bien distinctes dans le solide formé (Fig. II.7).

La première, d'une taille de l'ordre de quelques millimètres, située sur les parois du métal solidifié est constituée d'un ensemble de petits grains [Kur92]. Ce domaine, appelé 'zone de peau', apparaît lors des premiers instants de la solidification, dans les premières zones du liquide à se refroidir. Si les grains qui se sont formés n'ont pas encore d'orientation de croissance privilégiée, celle-ci apparaît au-delà d'une épaisseur de quelques millimètres.

Ce phénomène est expliqué par la cinétique de croissance des grains. Les grains dont l'une des directions cristallographiques de croissance ( $\langle 100 \rangle$  pour les métaux cristallisant dans un système cubique) est parallèle au gradient de température tendent à se développer au détriment des autres grains. On observe ainsi rapidement après la zone de peau un ensemble de grains parallèles de formes allongées, alignés selon une direction cristallographique voisine. Il s'agit de grains 'colonnaires' qui se sont développés approximativement en suivant la normale aux parois du moule, c'est à dire la direction du gradient de température.

Enfin, un troisième domaine est observable au centre du lingot. Il est constitué de grains 'équiaxes' ayant germés dans le bain liquide. Ces grains, sans orientation de croissance privilégiée, ont, en se développant, bloqués mécaniquement la progression du front de croissance colonnaire. La zone de transition entre ces deux domaines, nommée transition colonnaire-équiaxe (CET), permet de définir les limites entre ces domaines.

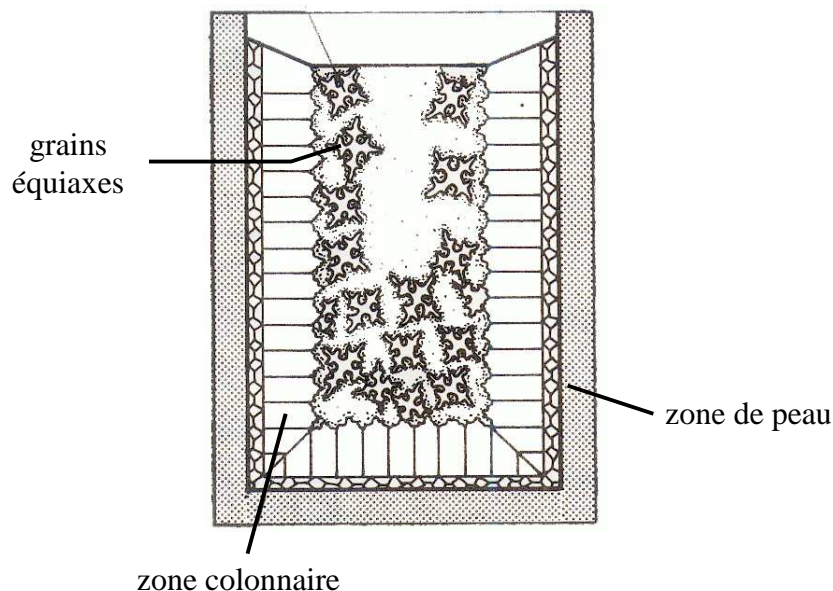


Fig. II.7: Représentation schématique d'un lingot en cours de solidification, avec les trois types de macrostructure observables. La zone de peau est déjà formée, la structure colonnaire est en cours de développement et commence à rencontrer les grains équiaxes [Kur92].

## II.2. Loi de croissance d'une pointe de dendrite en surfusion

L'étude précédente a décrit les forces motrices intervenant dans le développement du front de solidification. Les relations liant ces dernières aux propriétés physiques des alliages ainsi qu'aux conditions de croissance doivent cependant être précisées. Dans cette partie, nous allons donner, selon les hypothèses émises, les expressions permettant le calcul de la vitesse du front.

### II.2.1. Croissance en régime purement diffusif

#### II.2.1.a. *Relation d'Ivantsov*

Il est maintenant communément admis que la pointe d'une dendrite est assimilable à un paraboloïde de révolution, comme l'avait observé Papapetrou il y a près de 70 ans [Pap35]. Cette hypothèse simplificatrice présente des avantages certains. Après les changements de repère appropriés, il est possible d'obtenir des expressions simples des équations de conservation pour une telle géométrie. En négligeant les phénomènes interfaciaux, Ivantsov résolut ainsi l'équation de la conduction de la chaleur [Iva47] devant la pointe d'une dendrite de frontière isotherme, croissant en régime de surfusion thermique dans un milieu pur infini, sans phénomène de retrait (cf. Annexe 2). Sous ces hypothèses, la température à l'infini est alors constante et on aboutit à la relation :

$$\Omega_{th} = Iv(Pe_{th}) \quad (II.18)$$

où :  $\Omega_{th}$  représente la surfusion adimensionnelle du liquide : 
$$\Omega_{th} = \frac{\Delta T}{\Delta_s^1 h_f / c_p^1} \quad (II.19)$$

$Pe_{th}$  est le nombre de Péclet thermique relatif à la pointe : 
$$Pe_{th} = \frac{r_p v_p}{2 D_{th}^1} \quad (II.20)$$

$\Delta T$  correspond à la surfusion thermique  $\Delta T_{th}$  donnée par II.7

$\Delta_s^1 h_f$  est l'enthalpie massique de fusion

$c_p^1$  la capacité calorifique massique du liquide

$r_p$  le rayon de courbure de la pointe et  $v_p$  sa vitesse de croissance

Les phénomènes de diffusion thermiques et solutaux étant comparables, en redéfinissant les termes, la solution II.18 est applicable à une dendrite solutale croissant dans un milieu isotherme :

$$\Omega_c = Iv(Pe_v) \quad (II.21)$$

où :  $\Omega_c$  représente la sursaturation chimique de l'élément : 
$$\Omega_c = \frac{w^{1s/l} - w^{l\infty}}{w^{1s/l} - w^{s/l}} \quad (II.22)$$

$w^{1s/l}$  et  $w^{s/l}$  les compositions des phases liquide et solide à la pointe de la dendrite

$w^{l\infty}$  la composition dans le liquide à l'infini.

$Pe_v$  est le nombre de Péclet chimique relatif à la pointe : 
$$Pe_v = \frac{r_p v_p}{2 D_c^1} \quad (II.23)$$

La fonction d'Ivantsov, notée  $Iv$ , est définie pour  $x > 0$  par :

$$Iv(x) = x \exp(x) E_1(x) \quad (II.24)$$

où  $E_1$  est la fonction exponentielle intégrale, dont la valeur, définie par intégration, peut être approchée numériquement de manière très précise [Abr72].

Le calcul de la cinétique de croissance d'une pointe de dendrite isotherme en régime de diffusion pure nécessite de faire apparaître la surfusion  $\Delta T_T$  à laquelle se déroule la transformation de phase dans la relation II.22. Dans le cas simplifié où la surfusion est négligée ainsi que les phénomènes microscopiques intervenant pour abaisser la température de liquidus,  $\Delta T_T$  est égal à la surfusion chimique  $\Delta T_c$  (Eq. II.8). Le milieu étant supposé infini, la concentration  $w^{1\infty}$  permet d'exprimer  $\Delta T_T$  à partir des relations (II.23) et (II.22) :

$$\Delta T_T = m w^{1\infty} \left( 1 - \frac{1}{1 - (1 - k) \Omega_c} \right) \quad (II.25)$$

La connaissance de la température moyenne et de la concentration à l'infini permet d'obtenir une relation où apparaît la vitesse de croissance recherchée  $v_p$ , par l'intermédiaire du nombre de Péclet chimique  $Pe_v$  lié à  $\Omega_c$  par l'équation II.21. Cependant, la résolution de cette équation pose un problème. Une deuxième inconnue, le rayon de courbure à la pointe de la dendrite,  $r_p$ , y apparaît. Les solutions du problème de la diffusion se présentent alors sous la forme de couples de valeurs  $(r_p, v_p)$  désignant l'ensemble des conditions de croissance possibles (Fig. II.8). Il est nécessaire de trouver une seconde relation liant ces deux termes pour résoudre complètement le problème du calcul de la cinétique de croissance.

### II.2.1.b. Critère de stabilité marginale

Depuis les calculs développés par Ivantsov [Iva47], de nombreuses recherches ont été réalisées afin de déterminer quelle vitesse adopte une pointe de dendrite croissant en régime de diffusion pure. L'une des premières hypothèses émises a été celle de l'adoption d'une vitesse maximale. Ainsi, la prise en compte des effets de capillarité à la pointe de la dendrite [Sek67] dans l'équation (II.19) conduit à diminuer la température de fusion du terme de surfusion de courbure conduisant à l'équation :

$$\Omega_{th} = \frac{\Delta T - \Delta T_c}{\Delta_s^1 h_f / c_p^1} = Iv(Pe_{th}) \quad (II.26)$$

De même, il a été suggéré que l'interface paraboloidale ne pouvait être considérée comme isotherme [Tem60, Bol61], cette hypothèse simplificatrice ne tenant compte ni de la courbure variable de la dendrite, ni des effets cinétiques. En effet, les écarts que ces effets induisent dans la surfusion totale jouent un rôle important aux faibles rayons de courbure et aux fortes vitesses d'interface, comme cela a déjà été précisé. La résolution complète des équations de conservation

de la chaleur avec ces nouvelles conditions aux frontières a été menée par Trivedi [Tri70], à partir des équations présentées par Temkin [Tem60]. L'intérêt de ces travaux a été de faire apparaître une diminution rapide de la vitesse de croissance pour les bas rayons de courbure. La figure II.8 montre cette diminution en représentant l'évolution du nombre de Péclet thermique,  $Pe_{th, l_c}$ , relatif à la longueur de capillarité,  $l_c$ , en fonction du rapport du rayon de courbure à cette même longueur. La longueur de capillarité est un paramètre propre à un corps donné, défini par :

$$l_c = \frac{\Gamma}{\Delta_s^l h_f / c_p^l} \quad (II.27)$$

On a alors :

$$Pe_{th, l_c} = \frac{l_c v_p}{2 D_{th}^l} \quad (II.28)$$

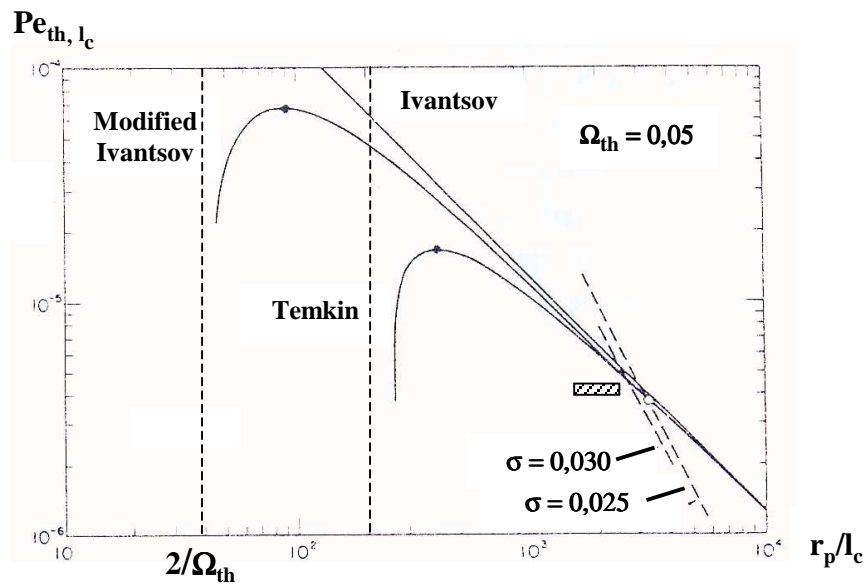


Fig. II.8 [Lan77]: Evolution, selon différents modèles, du nombre de Péclet thermique  $Pe_{th, l_c}$  relatif à  $l_c$ , en fonction du rapport  $r_p/l_c$ , pour une surfusion thermique,  $\Omega_{th}$ , fixée à 0,05. Dans ce graphique logarithmique, une droite en trait plein continu représente la résolution de l'équation d'Ivantsov (Eq. II.18) qui conduit à un produit  $r_p v_p$  constant. La prise en compte de la capillarité à la pointe (Eq. II.26) ('Modified Ivantsov') ou des effets de courbure et de cinétique interfaciaux ('Temkin') donnent des courbes présentant un maximum pour une valeur particulière du rayon. Les deux droites verticales, correspondant à des valeurs constantes du rapport  $r_p/l_c$ , représentent les limites inférieures au delà desquelles le rayon de la pointe n'est plus stable. A la différence de l'équation d'Ivantsov modifiée, la valeur limite du modèle de Temkin, plus complexe à établir, n'a pas été indiquée. Les résultats expérimentaux de Glicksman [Gli76] sont indiqués par le rectangle hachuré et les points de fonctionnement théoriques selon le critère de vitesse maximale par les cercles noirs. Le cercle blanc correspond au critère de Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77].

La lecture des courbes de la figure II.8 montre que la vitesse de croissance présente un maximum pour une valeur particulière du rayon, autant pour la solution d'Ivantsov tenant compte de la capillarité à la pointe [Sek67] que pour la solution, plus précise, faisant intervenir les phénomènes interfaciaux [Tem60, Bol61]. Il a longtemps été considéré que la pointe de dendrite tendait naturellement à adopter cette valeur particulière du rayon. D'une certaine manière, la vitesse de croissance maximale était alors supposée surpasser l'ensemble des autres vitesses

possibles et donc l'emporter. Les différents calculs théoriques menés jusqu'à la fin des années soixante-dix ont donc consisté à chercher en quel point particulier la valeur de la dérivée de la vitesse  $v_p$  par rapport au rayon  $r_p$  était nulle.

Cependant cette hypothèse ne s'accorde pas aux résultats expérimentaux. Les valeurs mesurées par Glicksman et al. [Gli76] (Fig. II.8) montrent que le rayon de courbure de la pointe est beaucoup plus grand que ne le prévoit cette théorie, que ce soit en utilisant la relation d'Ivantsov modifiée (Eq. II.26) ou les calculs menés par Trivedi [Tri70]. Ce désaccord a conduit Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77] à formuler un nouveau critère basé sur le développement des instabilités présentes à la pointe de la dendrite.

Les calculs menés par Mullins et Sekerka [Mul63, Mul64] sur les domaines de stabilité des perturbations générées sur des fronts de solidification hémisphérique ou plan avaient conduit ces auteurs à définir une valeur critique de longueur d'onde à partir de laquelle ces perturbations peuvent se développer. Ce travail a ensuite été étendu par Trivedi et Kurz [Tri86] au cas des fortes vitesses d'avancée de l'interface où les épaisseurs des couches de diffusion thermique ou solutale sont faibles. Les calculs théoriques et les simulations informatiques menés par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77, Lan78], sous l'hypothèse d'une diffusion parfaite de la chaleur dans le solide, concluent que la valeur de  $r_p$  est voisine de la valeur limite de déstabilisation d'un front plan,  $\lambda_s$  :

$$r_p \approx \lambda_s \quad (\text{II.29})$$

### ➤ *Longueur d'onde déstabilisante*

Trivedi et Kurz [Tri86], reprenant le travail de Mullins et Sekerka [Mul64], considèrent un front de croissance plan, se déplaçant à la vitesse  $v_f$ , de température  $T_0$  et de composition de la phase liquide  $\omega_0^{l/s/l}$ . Si une perturbation sinusoïdale infinitésimale, d'amplitude  $\delta$  et de longueur d'onde  $\lambda$ , naît à l'interface entre les deux milieux, deux évolutions sont envisageables. Lorsque  $\lambda$  est inférieure à la valeur seuil  $\lambda_s$ , la perturbation se résorbe et disparaît. A l'inverse, si cette valeur dépasse  $\lambda_s$ , la perturbation se développe. La différence entre les deux régimes s'étudie par le rapport de la dérivée temporelle de l'amplitude de la perturbation, à sa propre valeur. Lorsque ce rapport est nul et, par conséquent,  $\lambda$  est égal à  $\lambda_s$ , on obtient :

$$-\Gamma \omega^2 - \left[ \bar{\kappa}^l G_{th}^l \xi^l + \bar{\kappa}^s G_{th}^s \xi^s \right] + m G_c^l \xi_c = 0 \quad (\text{II.30})$$

où les termes intervenant valent respectivement :

$$\bar{\kappa}^l = \frac{\kappa^l}{\kappa^l + \kappa^s} \quad (\text{II.31})$$

$$\bar{\kappa}^s = \frac{\kappa^s}{\kappa^l + \kappa^s} \quad (\text{II.32})$$

$$\xi^l = \frac{\omega^l - v_f / D_{th}^l}{\bar{\kappa}^s \omega^s + \bar{\kappa}^l \omega^l} \quad (\text{II.33})$$

$$\xi^s = \frac{\omega^s + v_f / D_{th}^s}{\bar{\kappa}^s \omega^s + \bar{\kappa}^l \omega^l} \quad (\text{II.34})$$

$$\xi_c = \frac{\omega_c - v_f / D_c^l}{\omega_c - v_f (1-k) / D_c^l} \quad (\text{II.35})$$

$$\omega^l = \frac{v_f}{2 D_{th}^l} + \sqrt{\left(\frac{v_f}{2 D_{th}^l}\right)^2 + \omega^2} \quad (\text{II.36})$$

$$\omega^s = -\frac{v_f}{2 D_{th}^s} + \sqrt{\left(\frac{v_f}{2 D_{th}^s}\right)^2 + \omega^2} \quad (\text{II.37})$$

$$\omega_c = \frac{v_f}{2 D_c^l} + \sqrt{\left(\frac{v_f}{2 D_c^l}\right)^2 + \omega^2} \quad (\text{II.38})$$

où :  $\omega$  est le nombre d'onde de la perturbation, égal à  $2\pi/\lambda_s$ ,  
 $\omega^l$ ,  $\omega^s$  et  $\omega_c$ , les nombres d'onde de la perturbation associés respectivement à la diffusion thermique dans le liquide, le solide et à la diffusion chimique dans le liquide,  
 $\kappa^l$  et  $\kappa^s$ , les conductibilités thermiques des phases liquide et solide,  
 $D_{th}^l$  et  $D_{th}^s$ , les diffusivités thermiques des phases liquide et solide,  
 $G_{th}^l$  et  $G_{th}^s$ , les gradients de températures dans les phases liquide et solide à l'interface,  
 $G_c^l$  le gradient de concentration dans le liquide à l'interface,  
 $D_c^l$  la diffusivité solutale dans la phase liquide,  
 $m$  la pente du liquidus dans le diagramme de phase de l'alliage.

La résolution menée par Mullins et Sekerka [Mul64] considérait les longueurs d'onde des perturbations inférieures aux distances caractéristiques de diffusion thermique et donnait la même équation (II.30), exception faite des termes  $\xi_l$  et  $\xi_s$ , égaux à 1. Comme le montre Trivedi et Kurz [Tri86], cette hypothèse n'est plus valide aux fortes vitesses d'avancée du front et la démarche présentée ici généralise le travail de Mullins et Sekerka [Mul64]. La résolution de l'équation démontre qu'il existe une valeur de vitesse seuil, nommée vitesse absolue,  $v_{abs}$ , au-delà de laquelle le front de solidification est inconditionnellement stable, valeur dont la composante solutale avait précédemment été donnée par Mullins et Sekerka [Mul64]. Toute perturbation y naissant tend à disparaître en raison des effets de capillarité et le front de solidification reste plan. En conséquence, aucune ségrégation n'est visible sur l'alliage solidifié. Dans le cas particulier de la croissance équiaxe où le gradient thermique dans le domaine solide est négligeable, cette vitesse stabilisante est la somme de deux composantes, l'une solutale,  $v_{abs}^C$ , et l'autre thermique,  $v_{abs}^T$  :

$$v_{abs} = v_{abs}^C + v_{abs}^T \quad (\text{II.39})$$

$$\text{où : } v_{abs}^C = \frac{D_c^l \Delta T^C}{\Gamma k} \quad (\text{II.40})$$

$$v_{abs}^T = \frac{D_{th}^l \Delta T^T}{\Gamma} \quad (\text{II.41})$$

avec les surfusions  $\Delta T^C$  et  $\Delta T^T$  définies par :

$$\Delta T^C = \sqrt{k \Gamma m G_c^l} \quad (\text{II.42})$$

$$\Delta T^T = \frac{\Delta_s^l h_f}{c_p^l} \quad (\text{II.43})$$

L'étude menée par Trivedi et Kurz [Tri86] aux grands nombres de Péclet montre que la surfusion augmentant, la vitesse de croissance tend vers la valeur stabilisante  $v_{abs}$ . Ce résultat améliore celui de Langer et al. [Lan78], résultat des travaux de Mullins et Sekerka [Mul63, Mul64], valable aux faibles vitesses d'avancée du front et qui ne permettait pas la prédiction de la vitesse  $v_{abs}^T$ . Cette prise en considération d'une vitesse stabilisante limite également la décroissance du rayon de courbure  $r_p$  lorsque la surfusion augmente.

Le critère de stabilité marginale, représenté par l'égalité (II.29) fournit la seconde relation liant le rayon de courbure,  $r_p$ , et la vitesse de croissance de la pointe,  $v_p$ . La résolution simultanée des équations (II.29) et (II.30) avec (II.18) ou (II.21) permet d'obtenir un unique couple de solution  $(r_p, v_p)$ .

Dans le cadre de notre travail de recherche, les valeurs des nombres de Péclet ainsi que des vitesses d'avancée du front de solidification (de l'ordre de  $100 \mu\text{m s}^{-1}$ ) étant faibles, nous ferons l'hypothèse que  $\xi_{th}^l$ ,  $\xi_{th}^s$  et  $\xi_c$  sont proches de l'unité. La formulation du critère de stabilité marginal (II.29) conduit alors à appliquer dans l'équation II.30 des conditions thermiques moyennées à la pointe [Tri86]. Cependant, le gradient thermique moyen  $\bar{G}_{th}$ , défini par l'équation (II.44), sera négligé dans la suite de ce travail, son effet sur la longueur d'onde déstabilisante minimale étant nettement inférieur à celui du gradient de soluté.

$$\bar{G}_{th} = \frac{\kappa^s G_{th}^s + \kappa^l G_{th}^l}{\kappa^s + \kappa^l} \quad (II.44)$$

➤ **Cas du corps pur**

Dans le cas d'un front de solidification plan croissant en régime permanent dans un corps pur et en supposant nul le gradient thermique dans le solide,  $\lambda_s$  est donnée [Mul64], par la relation :

$$\lambda_s = 2 \pi \sqrt{2 \delta_{th} l_c} \quad (II.45)$$

où  $\delta_{th}$  est la longueur de diffusivité thermique propre à la vitesse de croissance de la pointe dendritique (Eq. II.5) et  $l_c$  la longueur de capillarité donnée par l'équation (II.27)

Le critère de stabilité marginal s'écrit généralement sous la forme [Lan78] :

$$\sigma^* = \left( \frac{\lambda_s}{2 \pi r_p} \right)^2 \quad (II.46)$$

$\sigma^*$  est une constante de stabilité dont l'approximation (II.29) permet de donner une valeur voisine :

$$\sigma^* \approx \frac{1}{4 \pi^2} \approx 0,02533 \quad (II.47)$$

Dans le cas du corps pur, les relations (II.27) et (II.46) permettent d'écrire une relation entre  $\sigma^*$  et les différents paramètres de croissance :

$$\sigma^* = \frac{2 D_{th}^l l_c}{v_p r_p^2} \quad (II.48)$$

Plus précisément, les calculs analytiques et les simulations informatiques réalisés par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77, Lan78] en trois dimensions aboutissent à obtenir la valeur approchée :

$$\sigma^* = 0,025 \pm 0,007 \quad (II.49)$$



La valeur de 0,02533 (Eq. II.47) correspondant au front plan est voisine de celle de l'encadrement (II.49). Ceci permet fréquemment de retenir comme critère de croissance la relation approchée (II.28) et de confondre la valeur exacte de  $\sigma^*$ , dont on ne connaît qu'une approximation, avec celle du front plan donnée par l'équation II.47.

De nombreuses mesures ont été réalisées par la suite afin de valider ce critère de stabilité marginale, notamment par Huang et al. [Hua81] sur du succinonitrile (SCN), ces auteurs aboutissant à une valeur  $\sigma^*$  de 0,0195. Les mesures expérimentales de cette constante de stabilité pour différentes surfusions aboutissent de plus à une valeur évoluant peu de part et d'autre de sa valeur moyenne, montrant par la même son caractère athermique (Fig. II.9). L'augmentation constatée aux basses surfusions est expliquée par la prépondérance des phénomènes convectifs. Les calculs réalisés à partir de cette valeur de constante en reprenant les modèles de croissance d'Ivantsov [Iva47] et de Temkin [Tem60] montrent également une excellente concordance. Plus récemment, Glicksman et al. [Gli04] ont rassemblé les mesures réalisées au cours de différentes expériences sur terre et en micro-gravité sur des cristaux de succinonitrile (SCN) et d'acide pivalique (PVA). Dans les deux conditions expérimentales et pour les deux corps, ils montrent la pertinence de la relation exprimant le produit  $v_p r_p^2$  sous la forme d'une constante (Eq. II.48) et la proximité des valeurs mesurées du coefficient  $\sigma^*$ . Les valeurs moyennes de ce terme, de 0,025 et 0,021, relevées respectivement pour la croissance de cristaux de SCN et de PVA sont également relativement voisines.

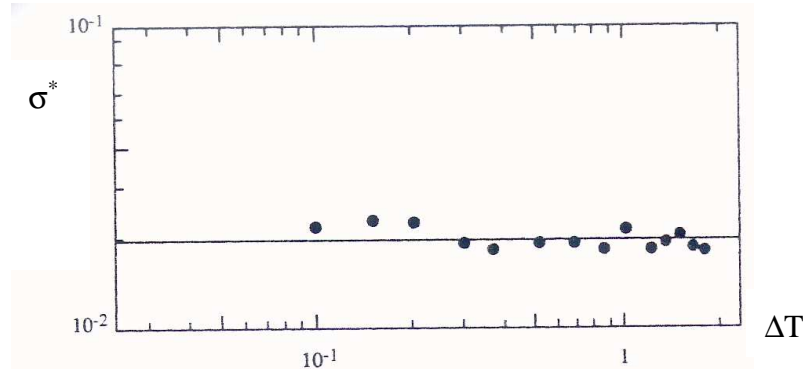


Fig. II.9 : [Hua81] Evolution de la mesure de  $\sigma^*$  en fonction de la surfusion  $\Delta T$  pour une dendrite de succinonitrile pure. Les valeurs se répartissent autour de la valeur moyenne de 0,0195 indiquée par le trait horizontal.

Trivedi et Kurz [Tri94] ont présenté un ensemble de mesures expérimentales de la valeur de ce paramètre sur des substances très diverses. A l'exception de la valeur correspondant au mélange  $\text{NH}_4\text{Br}-\text{H}_2\text{O}$ , l'ensemble de ces mesures est compris entre 0,019 et 0,027. Ces résultats expérimentaux sont en bon accord avec l'encadrement donné en (II.49), ce qui constitue une preuve supplémentaire validant la théorie de Langer et Müller-Krumbhaar.

Une autre théorie, dite de 'micro-solubilité', a également été développée récemment afin de lever l'indétermination existant sur la valeur de la vitesse de croissance. La recherche d'une solution préservant les champs de température ou de soluté en tenant compte des effets de capillarité a fait l'objet de plusieurs recherches présentées par Trivedi et Kurz [Tri94]. Le principal résultat de ces travaux a été de montrer la nécessité d'une anisotropie de l'énergie interfaciale  $\gamma^{s/l}$  afin que des formes de croissance dendritique puissent exister.

Les différentes théories présentées que ce soit celle de la ‘micro-solubilité’ ou le critère de stabilité marginale de Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77, Lan78], que nous utiliserons par la suite, conduisent toutes à exprimer une relation liant  $r_p$  à  $v_p$  sous la forme de l’équation II.48. En ce sens, elles constituent la seconde égalité cherchée permettant de lever l’incertitude existant sur la valeur de ces termes dans les équations (II.18) ou (II.21) et d’exprimer  $v_p$ . Ainsi, dans le cas d’une dendrite croissant dans un corps pur en surfusion adimensionnelle de  $\Omega_{th}$ , on a :

$$v_p = \frac{2 D_{th}^l \sigma^* \Delta_{shf}^l}{\Gamma c_p^l} [Iv^{-1}(\Omega_{th})]^2 \quad (II.50)$$

➤ *Cas des alliages*

La démarche de résolution de Trivedi et Kurz [Tri86] est appliquée aux alliages binaires et peut être reprise directement. Dans le cas de la solidification des alliages métalliques industriels, les gradients thermiques sont souvent faibles en comparaison des gradients chimiques, dans la phase liquide. Ceci se révèle notamment exact en régime de diffusion pure, le rapport  $D_{th}^l / D_c^l$  étant de l’ordre de  $10^2$  à  $10^4$  [Kur86]. Pour cette raison, il est possible de négliger le gradient moyen obtenu par  $\xi_{th}^l = \xi_{th}^s = 1$  dans l’équation (II.30) et d’exprimer  $\lambda_s$  sous la forme :

$$\lambda_s = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{m G_c^l}} \quad (II.51)$$

On peut écrire l’équation de conservation du soluté à l’interface sous une forme permettant d’exprimer le terme  $G_c^l$  :

$$(w^{l/s/l} - w^{s/s/l}) v_p = - D_c^l G_c^l \quad (II.52)$$

On définit également la longueur capillaire, propre aux phénomènes de transport solutaux, par :

$$l_c = \frac{\Gamma}{m (w^{l/s/l} - w^{s/s/l})} \quad (II.53)$$

Les relations (II.51), (II.52) et (II.53) conduisent à écrire une égalité similaire à (II.48), relative à la croissance de la pointe, contrôlée par la diffusion solutale, et reliant rayon et vitesse :

$$\sigma^* = \frac{D_c^l l_c}{v_p r_p^2} \quad (II.54)$$

De même que dans le cas de la croissance d’un corps pur, cette seconde équation lève l’incertitude sur les valeurs de  $r_p$  et  $v_p$  en fixant un unique point de fonctionnement à la pointe de la dendrite.

➤ **Application**

 ▪ **Solidification rapide**

La résolution simultanée des équations précédentes dans le cas de la croissance colonnaire des dendrites a été proposée par Kurz et al. [Kur86] sur un large domaine de variation de la vitesse. Elle montre l'évolution du nombre de Péclet, et par la même de la sursaturation, en fonction de la vitesse d'avancée de la pointe, selon le gradient thermique imposé (Fig. II.10 a). Si celui-ci est non nul, on remarque qu'il existe une vitesse faible  $v_c$ , pour laquelle  $Pe_v$  augmente rapidement et en dessous de laquelle on ne trouve pas de solution à l'équation (II.28). Cette vitesse correspond à la vitesse minimale pour laquelle le front plan se déstabilise, le gradient thermique assurant sa stabilité en dessous de cette valeur seuil. De même, aux fortes vitesses d'avancée du front, on montre l'existence d'une valeur limite,  $v_a$ , pour laquelle le rayon  $r_p$  et le nombre de Péclet  $Pe_v$  augmentent rapidement. Cette vitesse limite correspond à la vitesse de stabilité absolue,  $v_{abs}^C$ , donnée dans (II.40) et prédite par Mullins et Sekerka [Mul64]. Le raisonnement développé par Trivedi et Kurz [Tri86] montre que pour les forts gradients de température, il existe également une vitesse limite stabilisante au-delà de laquelle la pointe dendritique paraboloidale ne correspond pas à une solution stable. Cependant, cette vitesse varie peu en fonction du gradient et reste voisine de la vitesse de stabilité absolue,  $v_{abs}^C$ , ce qui permet généralement de confondre ces deux termes.

Sur la figure II.10 a), il est ainsi possible de distinguer les différentes formes de croissance du front de solidification. En-dessous de la vitesse de déstabilisation,  $v_c$ , et au-dessus de celle restabilisant le front dendritique,  $v_a$ , la croissance se réalise avec un front de solidification plan (fp). Au voisinage de chacune de ces vitesses on trouve un domaine caractérisé par une évolution rapide du nombre de Péclet  $Pe_v$  et dans lequel le régime de croissance est cellulaire (rc). Les structures apparaissant au front sont alors hémisphériques. Enfin, le large domaine encadré par ces différents régimes, où le nombre de Péclet évolue selon la racine de la vitesse de croissance ( $Pe_v \sim \sqrt{v_p}$ ), est caractéristique du régime dendritique (rd).

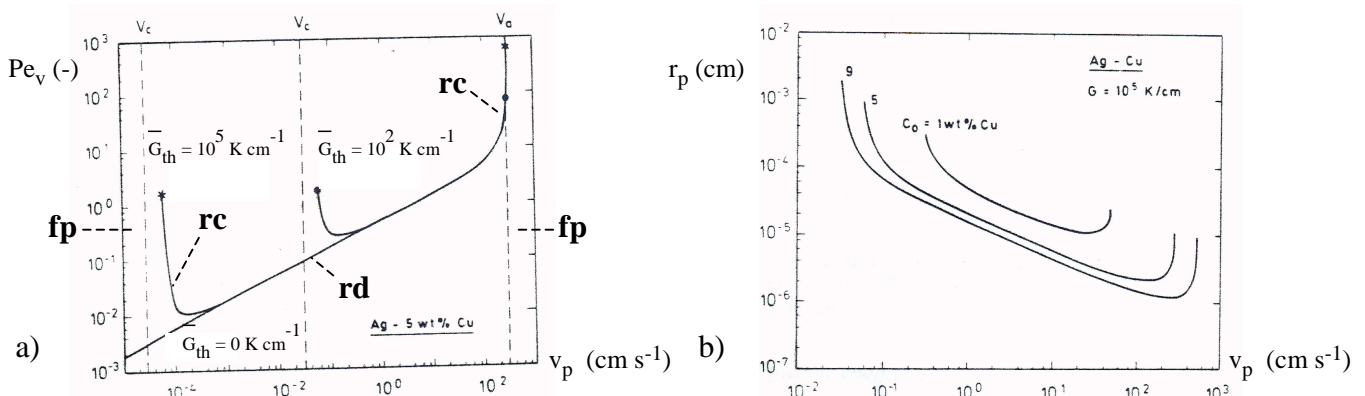


Fig. II.10 [Kur86]: a) Evolution du nombre de Péclet chimique  $Pe_v$  en fonction de la vitesse de croissance pour l'alliage Ag-5%pts Cu à différents gradients de température  $\bar{G}_{th}$ . Les vitesses seuils  $v_c$  et  $v_a$  encadrent le domaine d'instabilité du front plan pour  $\bar{G}_{th} = 10^5$  K cm $^{-1}$  et  $\bar{G}_{th} = 10^2$  K cm $^{-1}$ . Les régimes de croissance adoptés par l'interface de solidification selon la valeur de  $v_p$  sont également indiqués : front plan (fp), régime cellulaire (rc), régime dendritique (rd). b) Evolution du rayon de courbure d'une pointe de dendrite en fonction de la vitesse de croissance pour différentes compositions nominales, dans un gradient thermique de  $10^5$  K cm $^{-1}$ .

De même, la résolution proposée permet d'étudier l'évolution du couple de valeurs  $(r_p, v_p)$  en fonction de la composition nominale en élément d'alliage (Fig. II.10 b). On remarque qu'une décroissance de la composition de l'alliage mène à un resserrement du domaine de vitesse pour lequel le front plan est déstabilisé.

▪ **Solidification à faible surfusion**

L'application du critère de stabilité marginale comme méthode de sélection du rayon de courbure d'une pointe de dendrite s'est révélée également particulièrement utile pour expliquer l'origine d'un phénomène constaté précédemment. Plusieurs auteurs ont mesuré, à surfusion fixée, une brusque augmentation de la vitesse de croissance dendritique lors de l'ajout de faibles quantités de soluté à un corps pur [Fuj80, Cho84]. Cette constatation expérimentale ne peut être expliquée par les seuls critères de vitesses maximales telles que présentés par Trivedi et Tiller [Tri78] ou Temkin [Tem62]. Pour cela, il est nécessaire de faire appel au critère de stabilité marginale de Langer et Müller-Krumbhaar. Lipton et al. [Lip87] montrent ainsi que, pour les faibles concentrations en élément d'alliage, la croissance de la pointe dendritique est guidée principalement par la diffusion de la chaleur, de manière similaire au corps pur. Cependant, l'addition d'une quantité supplémentaire de soluté permet de déstabiliser la pointe et de diminuer son rayon. Ceci est expliqué par l'expression générale du rayon de courbure, obtenue par la résolution de l'équation (II.30) :

$$r_p = 2 \pi \sqrt{\frac{\Gamma}{m G_c^l - G_{th}}} \quad (II.55)$$

où  $G_{th}$  représente le gradient thermique moyen à l'interface de solidification.

La diffusivité solutale étant plus faible que la diffusivité thermique, le gradient solutal a tendance à augmenter plus rapidement que le gradient thermique. Ainsi, dans l'expression (II.55), le terme  $(m G_c^l)$  devient rapidement prépondérant devant  $G_{th}$ . Le rayon de courbure adopté par la pointe diminue car la croissance se réalise dans un régime plus instable. Parallèlement, cette pointe, plus fine, évacue plus rapidement la chaleur ce qui facilite sa croissance. Dans le cas d'un mélange succinonitrile-acétone, la comparaison entre les résultats expérimentaux qui montrent ce phénomène et les calculs réalisés pour le prédire est présentée sur la figure II.11. Elle démontre la validité du modèle développé dans le but d'expliquer cette accélération de la cinétique de croissance mais montre néanmoins des écarts entre les vitesses mesurées et celles prédites.

Cependant, de récents calculs en champs de phase menés par Ramirez et Beckermann [Ram04] montrent une évolution de la vitesse en fonction de la composition ne présentant pas le maximum attendu et visible sur la figure II.11 a). Ils prédisent néanmoins une évolution ultérieure de cette vitesse en fonction de la composition similaire à la théorie développée par Lipton et al. [Lip87]. Simultanément, la forte dépendance du coefficient  $\sigma^*$  en fonction de la composition que ces calculs permettent de déduire pourraient permettre d'expliquer les écarts initiaux.

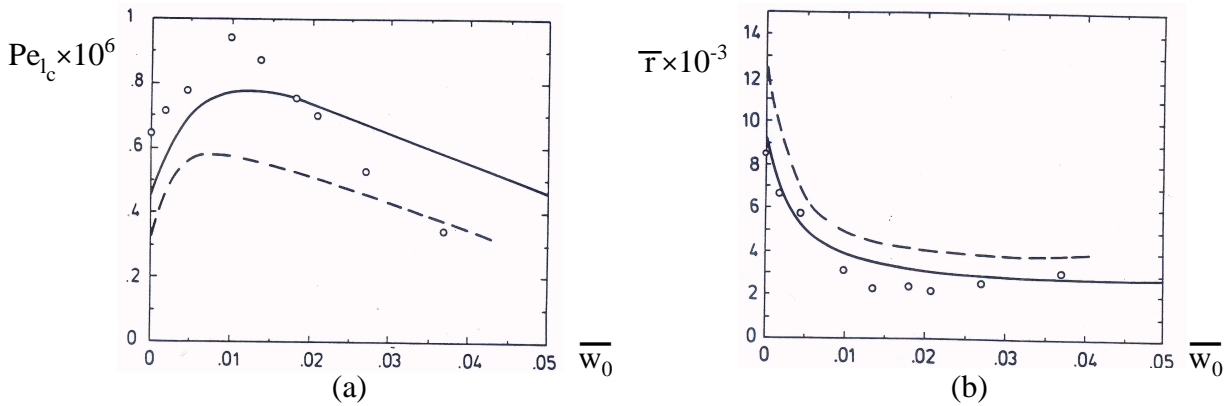


Fig. II.11 [Lip87]: L'alliage étudié (succinonitrile-acétone) se solidifie de manière dendritique, en régime de diffusion pure. On a représenté respectivement les évolutions du nombre de Péclet  $Pe_{lc}$  (Eq. II.28) (Fig. a) et du rayon de courbure normalisé  $\bar{r}$  (Fig. b), égal au rapport du rayon de courbure  $r_p$  à la longueur de capillarité  $l_c$  (Eq. II.27), en fonction de la concentration normalisée  $\bar{w}_0$ . Ce dernier terme est défini par le rapport de l'écart entre la température de fusion et la température de liquidus,  $(|m| w_0)$ , à la valeur du terme  $\Delta T^T$  (Eq. II.43). Les résultats des mesures expérimentales sont indiqués par les cercles blancs. Les calculs réalisés afin de prédire ces résultats sont représentés sous la forme de lignes continues (modèle présenté par [Lip87]) et de lignes interrompues (modèle proposé par Karma et Langer [Kar84]).

### II.2.2. Croissance en régime de convection

La croissance d'une pointe de dendrite en régime purement diffusif est facilement prédictible. L'équation d'Ivantsov couplée au critère de stabilité permet de connaître, à partir de la surfusion et des propriétés de l'alliage, le rayon de courbure et la vitesse de croissance. Cependant, dans le domaine de la métallurgie, la solidification des alliages s'opère par des échanges thermiques et solutaux à l'intérieur du domaine liquide principalement dus à des transferts convectifs. Le liquide, mis en mouvement, transporte de manière plus efficace la chaleur et les éléments d'alliage que ne le fait la diffusion et augmente significativement les échanges de matière et de chaleur. Il est donc nécessaire de considérer que l'avancée de la pointe de dendrite dans le liquide est également guidée par des phénomènes de transport convectif ayant lieu en avant de celle-ci.

#### II.2.2.a. *Aspects généraux sur la croissance en présence de convection*

Il peut être intéressant de schématiser les profils de température et de composition en présence de convection (Fig. II.12). La pointe reste assimilée, même en présence de convection importante à un parabolioïde de révolution, l'hypothèse de Papapetrou [Pap35] semblant également vérifiée dans ces circonstances [Bou89.1, Lee93], jusqu'à des valeurs de vitesse de liquide cent fois supérieures à celle générée par la simple convection naturelle.

En accélérant le transport de la matière et de la chaleur, le liquide arrivant frontalement devant la pointe tend à uniformiser plus rapidement la composition en soluté et la température. Les gradients présents à la pointe sont alors augmentés. La pointe peut évacuer plus rapidement la chaleur dégagée par la solidification ainsi que les éléments d'alliages rejetés dans le liquide. Les

conditions extérieures étant plus favorables à sa croissance, la pointe tend à accélérer. Si la surfusion est conservée, la vitesse de croissance augmente. Dans le cas où les conditions extérieures d'extraction de la chaleur (conditions aux parois) restent inchangées, la surfusion présente au front de solidification tend à diminuer, la vitesse de croissance demeurant identique. La taille du domaine liquide en surfusion est alors plus faible, ce qui aura des conséquences sur la structure granulaire finale.

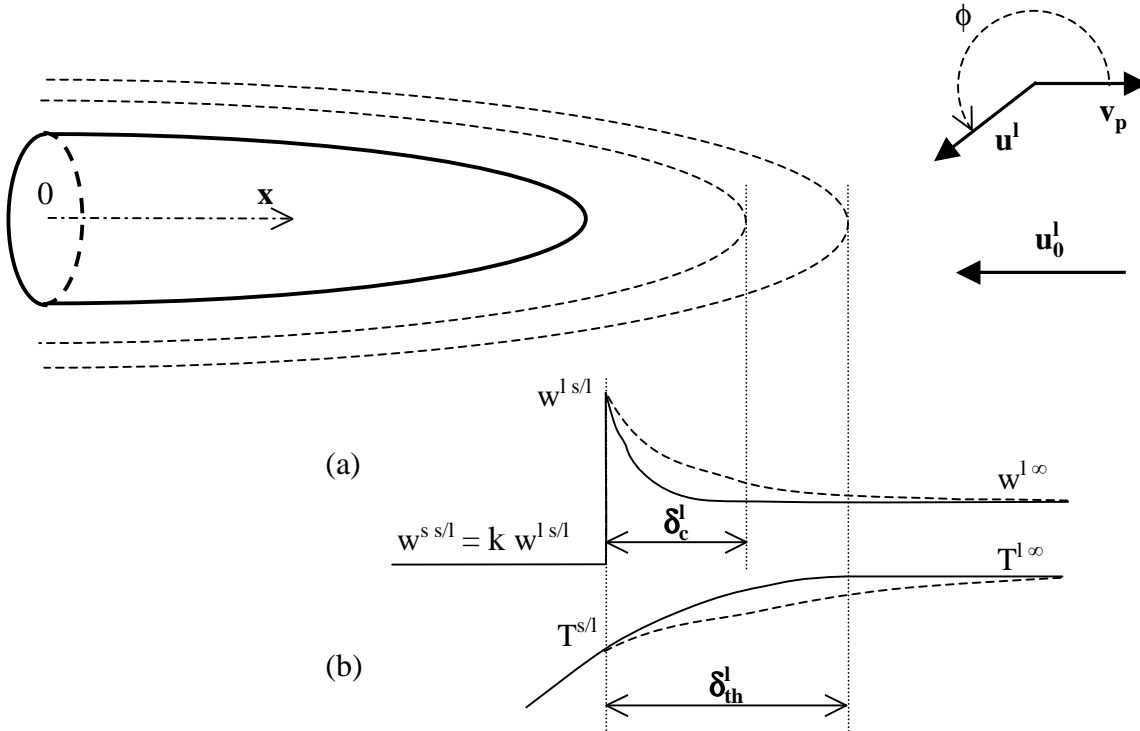


Fig. II.12 : Représentation des profils de concentration (a) et de température (b) et à la pointe de la dendrite en l'absence (traits pointillés) et en présence de convection (traits pleins), le liquide arrivant frontalement dans le cas représenté, avec la vitesse  $u_0^l$ . Les couches limites solutale et thermique ont pour épaisseurs respectives  $\delta_c^l$  et  $\delta_{th}^l$ . Ces valeurs correspondent aux distances pour lesquelles les composition  $w^{l/\infty}$  et température  $T^{l/\infty}$  sont atteintes. Dans le cas général d'une arrivée du fluide selon une direction quelconque,  $\phi$  représente l'angle entre le vecteur vitesse de croissance,  $v_p$ , et le vecteur vitesse du liquide,  $u^l$ . Il est choisis entre 0 et  $2\pi$  et caractérise la direction d'arrivée du fluide sur la pointe. Lorsque  $u^l$  est égal à  $u_0^l$ , il est nul.

Huang et Glicksman ont étudié de manière importante la croissance des dendrites dans des alliages de succinonitrile [Hua81]. De manière similaire à d'autres substances, le succinonitrile présente l'avantage d'un bas point de fusion, d'être transparent en phase liquide et de s'opacifier en phase solide, ce qui permet l'observation de la structure. Comme ils le montrent [Gli82], en régime de convection naturelle, si le fluide arrive par l'arrière de la pointe, l'apport de liquide chaud ou riche en soluté diminue la vitesse de croissance. Cette diminution est suffisamment importante pour que la nouvelle vitesse observée soit inférieure à la valeur obtenue dans le cas d'un régime diffusif, comme on le constate sur les figures II.13. Même écartée par la présence du grain, la pointe de la dendrite ressent l'effet du mouvement du liquide qui agit sur sa cinétique de croissance. On observe une augmentation d'abord rapide puis plus progressive de la valeur de  $v_p$  en fonction de l'angle  $\phi$  entre la direction de croissance de la pointe  $0x$  et le vecteur vitesse  $u^l$  (Fig. II.12).

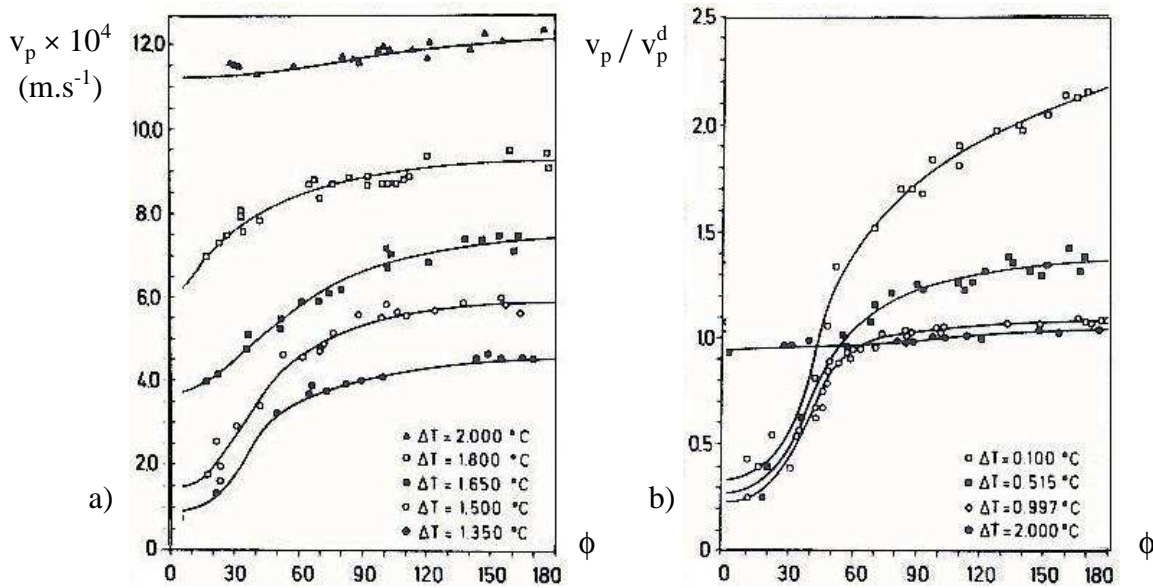


Fig. II.13 [Gli82]: a) Mesures de vitesses de croissance d'une pointe de dendrite de succinonitrile selon l'angle  $\phi$  d'arrivée du fluide, pour différentes surfusions. b) Représentation de l'évolution du rapport de la vitesse mesurée,  $v_p$ , sur la vitesse calculée en régime de diffusion pure,  $v_p^d$ , pour plusieurs valeurs de surfusions.

Des expériences similaires [Hua81], menées pour de faibles surfusions, montrent également cet effet de la convection. Il apparaît prédominant et explique l'écart entre les résultats expérimentaux et les valeurs attendues. Il semble, comme le montrent aussi de précédentes observations [Gli76], dans des domaines de surfusions plus élevées, que l'effet de la convection sur la cinétique de croissance est d'autant plus important que la surfusion est faible, quand bien même la convection y soit moins importante [Gli82]. Dans le cas du succinonitrile pure, à partir de 2°C de surfusion, l'effet de la convection naturelle ne semble pas notable sur la croissance et la valeur de  $v_p$  mesurée est proche de la valeur obtenue en régime de diffusion pure (Fig. II.13 b). Cependant, en dessous de cette valeur, on note une forte dépendance de la vitesse en fonction de l'angle.

L'effet de la convection sur la constante de stabilité  $\sigma^*$  a fait l'objet de travaux de la part de Bouissou et al. [Bou89.1, Bou89.2] et Lee et al. [Lee93]. A partir d'études sur l'acide pivalique, les premiers ont conclu que la relation obtenue par la théorie dite de 'micro-solubilité', en régime de diffusion, selon laquelle le produit  $r_p^2 v_p$  est constant reste valable en présence de convection forcée. Dans ce cas, ce terme augmente en fonction de la composante longitudinale de la vitesse liquide mais est indépendant de sa composante transversale. Lee et al. [Lee93] ont confronté la théorie de Bouissou et al. [Bou89.2] sur la valeur de  $\sigma^*$  en présence de convection aux résultats de leur étude sur du succinonitrile. Ils concluent différemment et montrent que  $\sigma^*$  croît en présence d'un liquide en mouvement. Cette croissance est d'autant plus forte que la surfusion est faible et la vitesse de liquide élevée (Fig. II.14). Ce comportement avait déjà été observé par Huang et al. [Hua81] lors de mesures visant à valider le critère de stabilité marginale. Les augmentations sont de l'ordre de 50 % par rapport à la valeur provenant de la croissance en convection naturelle. Dans ce dernier type de régime, il est cependant correct de considérer que  $\sigma^*$  évolue faiblement.

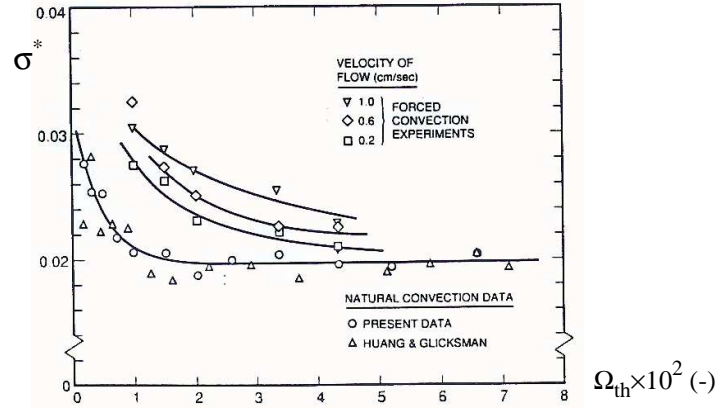


Fig. II.14 [Lee93]: Evolution de la constante de stabilité  $\sigma^*$  en fonction de la surfusion adimensionnelle  $\Omega_{th}$  (Eq. II.19), pour différentes valeurs de vitesses longitudinales du liquide.

### II.2.2.b. Calcul des cinétiques de croissance

Plusieurs auteurs ont cherché à déterminer les valeurs exactes de la vitesse de croissance de la pointe en régime de convection. La difficulté de ces calculs réside dans la résolution couplée des équations de Navier-Stokes et des équations de conservation de la chaleur et du soluté. Si ces calculs demeurent possibles dans le cas d'un écoulement longitudinal de liquide [Ana91, Miy95.2] car ils sont simplifiés par le caractère axisymétrique du problème ( $\mathbf{u}^1$  est égal à  $\mathbf{u}_0^1$  sur la figure II.12), il n'en est plus de même dans le cas général où cet écoulement présente une déviation par rapport à l'axe dendritique. Une approche en couche limite [Can77, Sek95] est alors proposée en utilisant des corrélations estimant l'épaisseur du film stagnant d'origine solutale ou thermique.

#### ▪ Résolution analytique

Ananth et Gill [Ana91] se sont intéressés au cas de l'écoulement d'un fluide arrivant frontalement sur une dendrite thermique, avec une vitesse à l'infini  $\mathbf{u}^{1\infty}$  parallèle à l'axe dendritique. La zone liquide est supposée infinie dans cette direction et le liquide incompressible et newtonien (les contraintes de cisaillement sont proportionnelles aux gradients de vitesse). La pointe conserve son caractère paraboloidal et reste isolée, c'est à dire ne subit pas l'influence de pointes voisines. Les termes de retrait ne sont pas pris en compte, les densités des deux phases étant identiques. Cependant, la prise en considération de ce retrait ne changerait pas ces résultats, cet effet influençant peu la sursaturation [Mcf86] et les vitesses induites du liquide restant faibles.

En plus du nombre de Péclet thermique,  $Pe_{th}$  (Eq. II.20), les auteurs définissent des nombres adimensionnels supplémentaires associés à la croissance de la pointe dendritique :

$$\text{Péclet hydrodynamique :} \quad Pe_u = \frac{r_p u^{1\infty}}{2 D_{th}^l} \quad (\text{II.56})$$

$$\text{Prandtl :} \quad Pr = \frac{\nu^l}{D_{th}^l} \quad (\text{II.57})$$

$$\text{Reynolds :} \quad Re = \frac{Pe_{th} + Pe_u}{Pr} \quad (\text{II.58})$$



Après résolution de l'équation de Navier-Stokes, Ananth et Gill aboutissent, selon les hypothèses initiales formulées, à trois résultats pour la valeur de la surfusion adimensionnelle  $\Omega_{th}$  (Annexe 3) :

Approximation de Stokes :

$$\Omega_{th} = 2 Pe_{th} \int_1^{\infty} \exp\left(-\ln \eta + (1-\eta^2) Pe_{th} - \frac{2 Pe_u}{E_1(Re)} [1-\eta^2+(1+\eta^2) \ln \eta]\right) d\eta \quad (II.59)$$

Approximation d'Oseen :

$$\Omega_{th} = 2 Pe_{th} \int_1^{\infty} \exp\left\{-\ln \eta + (1-\eta^2) Pe_{th} - Pe_u \left[\left(\eta^2 + \frac{1}{Re}\right) \left(1 - \frac{E_1(Re \eta^2)}{E_1(Re)}\right) - (1+2 \ln \eta) \frac{\exp(-Re)}{Re E_1(Re)} + \frac{\exp(-Re \eta^2)}{Re E_1(Re)}\right]\right\} d\eta \quad (II.60)$$

Ecoulement potentiel :

$$\Omega_{th} = Pe_{th} \frac{\exp(Pe_{th}+Pe_u)}{(Pe_{th}+Pe_u)^{Pe_u}} \Gamma(Pe_u, Pe_{th}+Pe_u) \quad (II.61)$$

Les deux premières approximations se basent sur l'hypothèse d'un faible nombre de Reynolds. Ils proviennent de la résolution de l'équation de Navier-Stokes, en considérant, dans le second cas, un terme supplémentaire (dit d'Oseen) évitant le paradoxe de Stokes. Dans l'approximation de Stokes, la valeur de la vitesse n'est rigoureusement valable que sur une distance de l'ordre de  $1/Re$ .

Si on fait tendre la vitesse du liquide vers zéro, ces deux résultats redonnent également l'équation d'Ivantsov (II.18). Dans cette situation ( $u^{1\infty} \rightarrow 0$ ), la solution basée sur un écoulement potentiel rejoint également la solution d'Ivantsov, résultat plus étonnant puisque l'approximation est développée pour de fortes valeurs de nombres de Reynolds.

Ces résultats sont supposés s'appliquer également au cas de la diffusion solutale, en remplaçant les termes  $Pe_{th}$  et  $Pr$  par les nombres de Péclet chimique,  $Pe_v$  (Eq. II.23), et de Schmidt,  $Sc$ , défini par :

$$Sc = \frac{v^l}{D_c^l} \quad (II.62)$$

#### ▪ Approche en couche limite

Cantor et Vogel [Can77] ont développé une approche en couche limite résolvant le problème du calcul de la sursaturation ou de la surfusion. Ils considèrent une couche limite commençant à la pointe de la dendrite et s'étendant jusqu'à une distance  $\delta$  correspondant à une valeur  $\eta$  en coordonnées paraboloidales (Fig. A2.1, Annexe 3). Dans celle-ci le transfert de la chaleur (dendrite thermique) ou du soluté (dendrite solutale) s'effectue par diffusion, ce qui simplifie l'écriture du problème. On rejoint ensuite les valeurs limites de composition ou de

température à la frontière. La valeur de sursaturation déduite est comparable à celles présentées par Temkin [Tem60] ou Trivedi [Tri70], exception faite du terme  $\alpha_\infty$  désignant la coordonnée  $\eta$  où s'arrête la couche limite :

$$\Omega_c = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1(Pe_v \alpha_\infty^2) \right] \left[ 1 + \frac{v_p \Omega_c r_1}{\mu_0 (w^{1s/l} - w^{1\infty})} + \frac{2 \Gamma w^{1s/l} \Omega_c r_2}{r_p (w^{1s/l} - w^{1\infty})} \right] \quad (\text{II.63})$$

où  $w^{1\infty}$  est la concentration à l'arrêt de la couche limite,  $r_1$  et  $r_2$  des fonctions évoluant linéairement selon  $1/Pe_v$  et  $\alpha_\infty$ , égal à  $\sqrt{1 + 2 \delta / r_p}$ , est déduit des équations de l'Annexe 2.

Les résultats de Temkin sont retrouvés en considérant  $\alpha_\infty$  infini soit  $E_1(Pe_v \alpha_\infty^2)$  nul. Les termes additionnés dans le crochet correspondent respectivement aux effets des surfusions cinétique (II.12) et de courbure (II.10). Sans ces termes, il est aisé de retrouver l'équation II.63, en intégrant le profil de concentration (Annexe 2) de  $\eta = 1$  à  $\eta = \alpha_\infty$ . Cependant le développement des résultats de Cantor et Vogel pour le calcul de la cinétique de croissance d'une pointe de dendrite est ensuite incorrect car basé sur le critère de vitesse de croissance maximale.

Une approche similaire, en couche limite, sans prise en compte des effets de courbure ou de surfusion cinétique, a été présentée par Sekerka et al. [Sek95]. Le but de ces auteurs était de retrouver les résultats obtenus par Glicksman [Gli82] dans le cas d'un corps pur où le liquide est mis en mouvement par convection naturelle. Les auteurs aboutissent à la relation :

$$\Omega_{th} = Pe_{th} \exp(Pe_{th}) \left[ E_1(Pe_{th}) - E_1 \left( Pe_{th} \left( 1 + \frac{Pe_{th} \Lambda}{\Omega_{th}^{1/4}} \right) \right) \right] \quad (\text{II.64})$$

où :

$$\Lambda = \frac{2 \sigma^*}{F(\phi) Ra^{1/4}} \quad (\text{II.65})$$

Ra est nombre de Rayleigh, associé à la sphère de rayon R, où se déroule la convection :

$$Ra = \frac{\beta_{th} g \Delta_s^1 H_f l_c^4}{\kappa^1 \nu^1 R C_p^1} \quad (\text{II.66})$$

où  $g$  est l'intensité du vecteur pesanteur,  $\Delta_s^1 H_f$  l'enthalpie volumique de transformation de phase,  $C_p^1$  la capacité calorifique volumique du liquide,  $\nu^1$  sa viscosité cinématique et  $\beta_{th}$  son coefficient d'expansion thermique défini à partir de sa masse volumique  $\rho^1$  :

$$\beta_{th} = - \frac{1}{\rho^1} \frac{\partial \rho^1}{\partial T} \quad (\text{II.67})$$

F est une fonction de l'angle  $\phi$  ( $\phi \in [0, 2\pi]$ ) d'arrivée du fluide (Fig. II.12) déduite de l'expression calculée du nombre de Nusselt par Merk et Prins [Mer54] pour des sphères sous la forme :

$$Nu = 1 + F(\phi) Ra^{1/4} \quad (\text{II.68})$$

La valeur exacte de cette fonction est approximée par Sekerka et al par l'expression :

$$F(\phi) \approx 1,22 \sin\left(\frac{\phi}{2}\right) \quad (\text{II.69})$$

Sous ces conditions, il est possible de calculer  $v_p$  pour différents angles  $\phi$ , où  $\phi$  est l'angle entre le vecteur  $\mathbf{v}_p$  et le vecteur  $(-\mathbf{g})$ , la convection étant supposée créer une vitesse ascendante du liquide vue par la pointe de la dendrite. Les résultats obtenus ont été comparés aux mesures de Glicksman et Huang [Gli82] (Fig. II.15) menant à un bon accord avec la théorie à l'exception des angles proches de  $0^\circ$ . La décroissance rapide de la cinétique de croissance sous ces angles avait déjà été constatée précédemment [Gli82] (Fig. II.13). Les auteurs l'expliquent par le décrochage arrière de la couche limite, ce qui limite les échanges thermosolutaux.

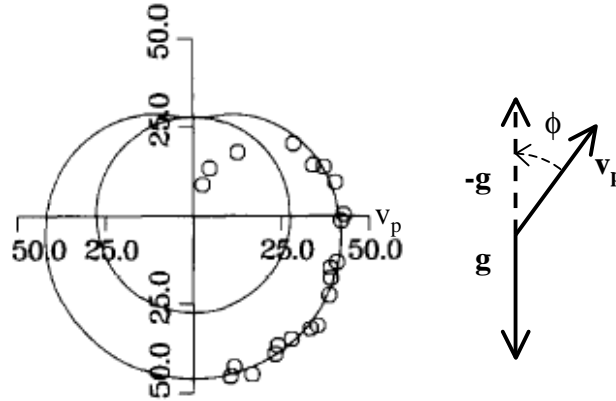


Fig. II.15 [Sek95]: Courbe polaire des vitesses de croissance  $v_p$  (en  $\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) d'une pointe de succinonitrile pure, en convection naturelle. La surfusion thermique est de  $0,515^\circ\text{C}$ . Le cercle représente la solution d'Ivantsov pour la même surfusion, l'autre courbe la solution fournit par l'équation II.64 pour  $g = 9,81 \text{ m}\cdot\text{s}^{-2}$ . La valeur utilisée de  $\sigma^*$ , de  $0,0164$ , résulte des mesures de vitesses de croissance, en micro-gravité, de pointes de dendrite de succinonitrile. Les résultats expérimentaux sont ceux de [Gli82], réalisés sur terre et normalisés pour être en accord avec la courbe pour  $\theta = 0$ .

D'autres auteurs ont proposé des approximations pour déterminer la valeur de la sursaturation en présence de convection. Wang et Beckermann [Wan96.1], partant d'une approximation sur la valeur de la fonction réciproque d'Ivantsov, corrént l'équation (II.59) pour les valeurs élevées du Schmidt, supérieures à 20, où  $\Omega_c$  varie peu, et expriment le nombre de Péclet  $Pe_v$  sous la forme :

$$Pe_v = a \left( \frac{\Omega_c}{1 - \Omega_c} \right)^b \quad (\text{II.70})$$

où les coefficients a et b prennent les valeurs <sup>#</sup> :

$$a = 0,4567 + 0,253 Pe_u^{0,55} \quad (\text{II.71})$$

$$b = 1,195 - 0,162 Pe_u^{0,16} \quad (\text{II.72})$$

Dans le domaine étudié de variations des nombres adimensionnels,  $Pe_v \in [10^{-4}, 10^1]$  et  $Pe_u \in [0,5]$ , cette expression fournit des résultats proches de la solution d'Ananth et Gill (II.59). Cependant cette approximation est limitée. Elle ne couvre pas de larges domaines de variations du nombre de Schmidt et ne prend pas en considération la manière dont arrive le fluide sur la pointe.

<sup>#</sup> N.B. : Les valeurs des coefficients sont différentes de celles de Wang et Beckermann [Wan96.1] en raison de la différence de notation du Péclet hydrodynamique  $P_u$ . Dans leur expression, la valeur de ce terme est double de la notre, soit  $a = 0,4567 + 0,173 P_u^{0,55}$  et  $b = 1,195 - 0,145 P_u^{0,16}$ .

## II.3. Formation des structures de grains dendritiques

Nous venons de présenter les démarches permettant de prédire les cinétiques de croissance des pointes de dendrites. Ces résultats proviennent d'une approche microscopique du problème de la solidification. Il est cependant nécessaire de la relier à une approche macroscopique afin d'étudier la formation des structures de grains dendritiques telles que nous les avons décrites au paragraphe II.1.2. Dans cette partie, nous allons donc nous intéresser au développement de ces structures. Nous commencerons par discuter des différentes caractéristiques de celles de type colonnaire pour ensuite présenter celles de type équiaxe. Nous terminerons finalement par la description de la transition colonnaire/équiaxe qui marque la frontière entre ces deux domaines.

### II.3.1. Structure colonnaire

#### II.3.1.a. *Expériences*

Plusieurs auteurs se sont penchés sur l'étude de la croissance des structures colonnaires. Celles-ci se développent à partir des premiers grains germés, en début de solidification, aux parois d'où le refroidissement du métal liquide s'opère. Une sélection a lieu ensuite des grains les mieux orientés selon la direction du gradient thermique [Nor39, Nor46, Hel62]. Progressivement, en se dirigeant vers le centre du lingot, on observe une diminution de la densité de grains. Seuls demeurent les mieux orientés, c'est à dire ceux dont la direction de croissance privilégiée des dendrites est parallèle au gradient de température.

Jackson et Hunt [Jac65] ont montré l'intérêt d'utiliser des alliages transparents pour étudier les phénomènes de solidification. Cependant, seulement quelques uns de ces alliages remplissent les conditions nécessaires pour se solidifier de manière similaire aux métaux (basse entropie de fusion et interface de solidification non facettée), avec un contraste entre phase liquide et phase solide suffisant pour les différencier. Néanmoins ils restent suffisamment nombreux pour offrir un choix intéressant de températures de fusion et de structures cristallographiques. Les interfaces de solidification présentent alors une structure dendritique marquée, comparable à celle des métaux, avec une anisotropie de tension de surface plus ou moins grande, permettant l'étude de la croissance de dendrites partiellement facettées [Tri91].

Sur l'un de ces alliages, le succinonitrile-acétone, une observation intéressante de la sélection des orientations a été réalisée par Esaka [Esa86] (Fig. II.16 a). On observe la suppression progressive du grain central qui se trouve bloqué par des grains dont l'un des axes  $\langle 100 \rangle$ , correspondant à la direction principale de croissance dendritique, est plus proche du gradient thermique. Gandin et Rappaz [Gan94] expliquent clairement ce phénomène. En régime stationnaire, si un grain croît avec une orientation  $\theta$  par rapport à la direction du gradient de température  $G_{th}$ , et que les isothermes du liquidus se déplacent avec la vitesse  $v_L$ , ses pointes doivent adopter une vitesse plus grande, égale à  $v_L/\cos(\theta)$ . Comme on l'a montré précédemment,

la vitesse d'une dendrite croît avec sa surfusion. Ainsi, ce grain doit se placer dans des conditions de surfusion plus importantes, et donc en retrait par rapport à des grains mieux orientés. Il va donc progressivement être bloqué dans sa croissance par ces derniers.

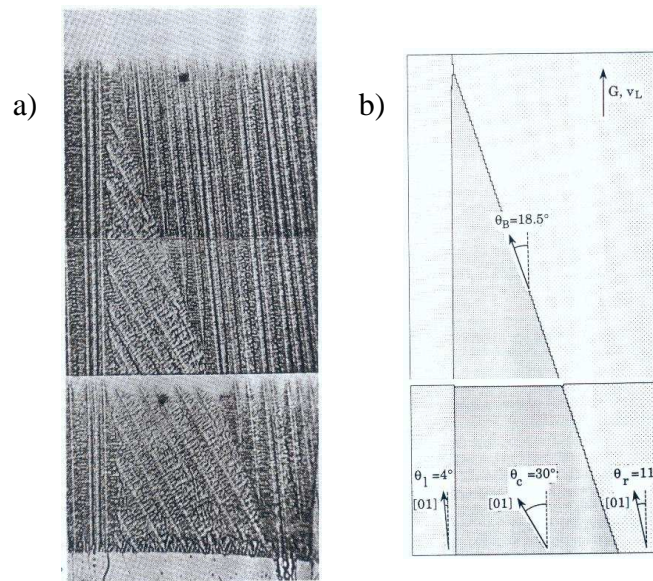


Fig. II.16 : a) Assemblage de trois images par Gandin et al. [Gan94] d'une séquence vidéo réalisée par Esaka [Esa86] montrant la compétition de croissance de trois grains colonnaires. L'alliage étudié est un mélange de succinonitrile-1,3%*pd*s acétone. Le gradient thermique a été maintenu constant à  $1900 \text{ K m}^{-1}$  et la vitesse de l'interface est de  $86 \mu\text{m s}^{-1}$ . b) Structure finale de solidification obtenue par Gandin et Rappaz [Gan94] après modélisation et simulation de la croissance des grains dans les mêmes conditions expérimentales (densité de cellules  $n_c = 1782 \text{ mm}^{-2}$ ). Les angles d'orientation des grains sont ceux mesurés dans l'expérience a).

Walton et Chalmers [Wal59] ont également observé cette croissance privilégiée en étudiant des alliages métalliques. Ils concluent à la différence des origines de cette sélection entre dendrites thermiques et solutales et montrent l'augmentation progressive de la taille de grains en fonction de la distance à la paroi du moule refroidisseur. L'orientation cristallographique  $\langle 100 \rangle$  la mieux alignée avec le gradient de température moyen sur l'ensemble des grains est mesurée par diffraction des rayons X. Il est montré qu'une orientation de croissance  $\langle 100 \rangle$  unique est ainsi trouvée.

Un autre aspect de la solidification colonnaire est la désorientation des dendrites dans un sens contraire à celui du courant liquide rencontré. Dans les lingots industriels, comme attendu, on observe que les bras primaires des grains colonnaires sont, en première approximation, dirigés vers le centre de la lingotière, c'est à dire qu'ils résultent de la compétition de croissance dans une direction contraire au gradient thermique. Cependant, on peut noter parfois une désorientation systématique. Ce phénomène s'explique souvent par les mouvements relatifs du liquide par rapport au solide. Ce mouvement augmente les gradients thermiques et solutaux existant dans la partie des pointes des dendrites exposées à l'écoulement, facilitant ainsi la croissance dans cette direction. Ainsi, comme l'avait déjà observé Miksch [Mik69] (Fig. II.17) sur des cristaux de glace, les dendrites croissent dans la direction qui leur permet d'augmenter leur cinétique, en tendant à rencontrer un liquide qui se présente frontalement. Ce même phénomène se produit également

dans des aciers coulés entre deux rouleaux, comme l'a décrit Takatani et al. [Tak00]. La déviation observée, de l'ordre de  $15^\circ$ , est expliquée par le déplacement dans le bain liquide des grains formés au contact des rouleaux et entraîné par ceux-ci.

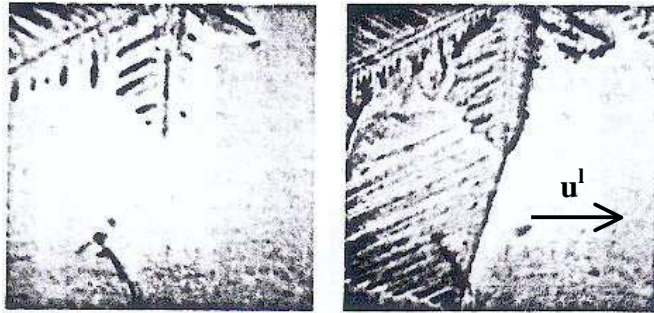


Fig. II.17 : [Mik69] Apparition d'une direction de croissance privilégiée sur un bras dendritique d'un cristal de glace. Le liquide dans lequel se déroule l'expérience est initialement au repos (image de gauche) avant d'être mis en mouvement (image de droite), avec la vitesse  $u^l$ . Les bras qui apparaissent alors sont dirigés dans le sens contraire de ce vecteur vitesse.

### II.3.1.b. Modélisation

Historiquement, on peut considérer que le début du travail de modélisation de la croissance colonnaire est la résolution du 'problème de Stefan' [Ste91] par Neumann en 1912 [Neu12]. Les conditions de solidification posées sont simples. Elles se résument à considérer un lingot semi-infini, initialement liquide, rempli d'un corps pur à la température de fusion. Ainsi, l'interface de solidification se déplace à cette température sous la forme d'un front plan, sans surfusion, de façon unidirectionnelle, et l'ensemble de la chaleur libérée par la solidification est diffusée dans la phase solide. Avec ces hypothèses, il est possible d'obtenir une expression analytique de la température au cours du temps [Poi88]. Cependant, même si ce problème a été intensivement étudié, son application pratique dans le domaine de la solidification colonnaire est limitée car il ne tient pas compte de la physique de la croissance dendritique qui prévaut dans les alliages industriels.

Flood et Hunt [Flo87.1] ont présenté les premiers un travail de résolution numérique des équations de conservation de la chaleur en croissance colonnaire dans lequel la surfusion au front,  $\Delta T$ , n'était pas fixée, comme l'avait fait Clyne [Cly81.2], mais évoluait en fonction de la vitesse  $v_f$  de déplacement de l'interface de solidification. Pour cela, ils utilisent la relation donnée par Burden et Hunt [Bur74] et la simplifient en :

$$v_f = \frac{A_1}{w_0} \Delta T^2 \quad (\text{II.73})$$

où  $w_0$  représente la composition nominale de l'alliage et  $A_1$  est un paramètre ajustable. Il faut noter que dans une telle relation l'effet du gradient de température n'est pas pris en compte, ce qui est justifié pour les domaines de  $Pe_v$  caractérisant le régime de croissance dendritique (Fig. II.10).

L'originalité de ce travail est de prendre en considération la convection régnant dans le bain liquide sous la forme d'une couche limite de diffusion thermique présente en avant du front. Flood et Hunt concluent sur l'importance du calcul de la surfusion du front dans la prédiction de la croissance des grains équiaxes et montrent l'importance de la convection sur le profil de température au centre du lingot.

Des modèles ont également été présentés afin de simuler le déplacement de l'interface colonnaire dans le cadre d'un lingot fixe [Wan94, Van94] et de la coulée continue [Mha99]. Dans le cas de ces travaux, la fraction de solide est reliée à la température par une relation de Scheil tronquée tenant compte du début de la solidification à une température différente de la température de liquidus. Wang et Beckermann ont également développé un modèle permettant la prédiction de l'évolution de la microségrégation dans les grains colonnaires ou équiaxes, en tenant compte de la diffusion du soluté dans la phase solide [Wan93]. L'utilisation de ce modèle leur permet d'étudier la transition colonnaire-équiaxe [Wan94] à l'échelle du lingot.

Gandin et Rappaz [Gan94] ont développé un travail de modélisation de la solidification des alliages dendritiques dont l'originalité réside dans le couplage entre les méthodes des Automates Cellulaires et des Eléments Finis (CAFE). L'équation de conservation de la chaleur est résolue par une approche macroscopique sur le maillage en éléments finis. La température d'une cellule est interpolée à partir de la température des nœuds de la maille en éléments finis dans laquelle elle se trouve. Cette température de cellule sert alors à calculer la vitesse de croissance des pointes des dendrites en utilisant un polynôme du troisième degré similaire à celui de l'équation (II.73) :

$$v_f = A_2 \Delta T^2 + A_3 \Delta T^3 \quad (\text{II.74})$$

Dans le cas simple de l'expérience de Esaka [Esa86], où la température est imposée, Gandin et Rappaz prédisent une structure de grains similaire à celle observée expérimentalement (Fig. II.16 b). Cette comparaison permet de valider l'algorithme de croissance développé pour simuler la croissance compétitive des grains colonnaires. A cela s'ajoute dans le modèle CAFE un algorithme de couplage entre les méthodes en automates cellulaires et en éléments finis, permettant de tenir compte de la surfusion du front de croissance sur le transfert de la chaleur. Nous détaillerons cet algorithme au chapitre II.3.3.b.

Un autre modèle de croissance colonnaire a également été présenté par Gandin [Gan00.1] pour prédire le déplacement des fronts de solidification colonnaire et eutectique marquant le début et la fin du processus de solidification. Ce modèle est basé sur une méthode de suivi de front. Si une telle modélisation reste difficile en deux ou trois dimensions, il n'en est pas de même en une dimension. Dans cette géométrie simple, le remaillage est aisé : le modèle résout le problème de conservation de l'énergie par une méthode de différence finie. On considère de manière indépendante les trois zones liquide (l), pâteuse (m) et solide (s). Une équation bilan écrite aux interfaces permet de tenir compte du dégagement de chaleur accompagnant le début (passage

d'une fraction de solide nulle à une fraction donnée par la relation de Gulliver-Scheil à la température des pointes) et la fin de la solidification (passage d'une fraction de solide inférieure à un à une fraction de solide égale à un). Les surfusions présentes aux deux fronts sont reliées à leurs vitesses de déplacement par des lois en puissance. Un algorithme itératif est donc nécessaire pour assurer la convergence d'un schéma de résolution implicite dans le temps.

### II.3.2. Structure équiaxe

L'étude des phénomènes physiques expliquant l'apparition des grains équiaxes au cours du processus de solidification a fait l'objet de nombreux travaux tant expérimentaux que numériques. Ceux-ci ont permis de mettre en lumière les diverses origines des germes des grains et leurs localisations dans le lingot.

➤ La germination dans une zone de liquide surfondue

Comme cela a été montré, le développement des structures dendritiques colonnaires s'accompagne de l'existence d'une surfusion au front de solidification suivant le gradient de température. Ce front apparaît alors plus ou moins en retrait par rapport à la courbe correspondant à la température de liquidus locale, laissant une zone de liquide libre de solide, en surfusion, et donc thermodynamiquement métastable. Suivant la théorie originelle proposée par Winegard et Chalmers [Win54], il devient alors possible à des grains équiaxes, après une phase de germination, de se développer dans ce milieu liquide. Cette germination peut s'être déroulée selon un processus homogène ou hétérogène.

- Germination homogène : Il s'agit de la théorie classique de la germination. Si, en raison de fluctuations thermiques, une quantité de solide de rayon  $r_g$  apparaît dans un liquide où existe une surfusion  $\Delta T$ , elle évoluera dans le sens permettant la diminution de la variation d'enthalpie libre,  $\Delta G$ . Cette quantité est la somme de deux contributions [Kur92]. La première est l'énergie nécessaire pour introduire des atomes dans la couche de transition entre phases solide et liquide. Il s'agit donc d'une contribution positive proportionnelle à la surface du germe, égale à  $4 \pi r_g^2 \gamma^{s/l}$  où  $\gamma^{s/l}$  représente l'énergie interfaciale solide/liquide. La seconde est la différence d'énergie libre entre le système initialement liquide et son nouvel état solide. Ce terme négatif est une contribution proportionnelle au volume du germe et à la différence d'énergie libre volumique entre les deux phases  $\Delta g$ . Le bilan de ces termes s'écrit [Kur92] :

$$\Delta G(r_g) = 4 \pi r_g^2 \gamma^{s/l} + \frac{4}{3} \pi r_g^3 \Delta g \quad (\text{II.75})$$

La fonction  $\Delta G(r_g)$  est donc la somme de deux contributions évoluant de manière opposée (Fig. II.18 a). En effet, le premier terme est positif, tandis que le second est négatif. Aux faibles valeurs de rayon, la contribution surfacique est prédominante,  $\Delta G(r_g)$  est croissant. Le grain a



tendance à décroître pour évoluer vers un système plus stable. Aux rayons plus importants,  $\Delta G(r_g)$  est décroissant. Pour évoluer, de même, vers un système plus stable, le rayon de la particule croît. Entre les deux régimes existe un rayon critique  $r_g^*$  correspondant à une dérivée nulle de  $\Delta G(r_g)$  par rapport à  $r_g$  (Fig. II.18 a) égale à :

$$r_g^* = - \frac{2 \gamma^{s/l}}{\Delta g} \quad (\text{II.76})$$

Les premières théories de la germination, développées par Volmer et Weber [Vol26] et Becker et Döring [Bec35] à partir de cette approche, considèrent le caractère probabiliste de dépassement du rayon critique  $r_g^*$  par un germe contenant  $N_g^*$  atomes, apparu spontanément dans le liquide surfondu. Ce raisonnement revient à considérer la probabilité, estimée par l'équation de Boltzmann, de dépassement, à la température  $T$ , d'une barrière énergétique  $\Delta G(r_g^*)$ . Il est ainsi possible d'exprimer la vitesse de germination  $\dot{n}$ , par unité de volume et de temps sous la forme :

$$\dot{n} = \dot{n}_0 \exp\left[-\frac{\Delta G(r_g^*)}{k_b T}\right] \quad (\text{II.77})$$

où le terme pré-exponentiel  $\dot{n}_0$  peut être considéré voisin de  $10^{39} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  [Kur92] et le rapport dans la fonction exponentielle évolue comme  $1/\Delta T^2$ .

La figure II.18 b) ainsi que la forme générale de l'équation (II.77) permettent de se rendre compte de la décroissance extrêmement rapide de  $\dot{n}$  avec le rapport en exposant. Dans la zone hachurée sur la figure II.18 b), une variation de ce terme d'un facteur 2 entraîne une diminution de  $10^{22}$  de la vitesse de germination

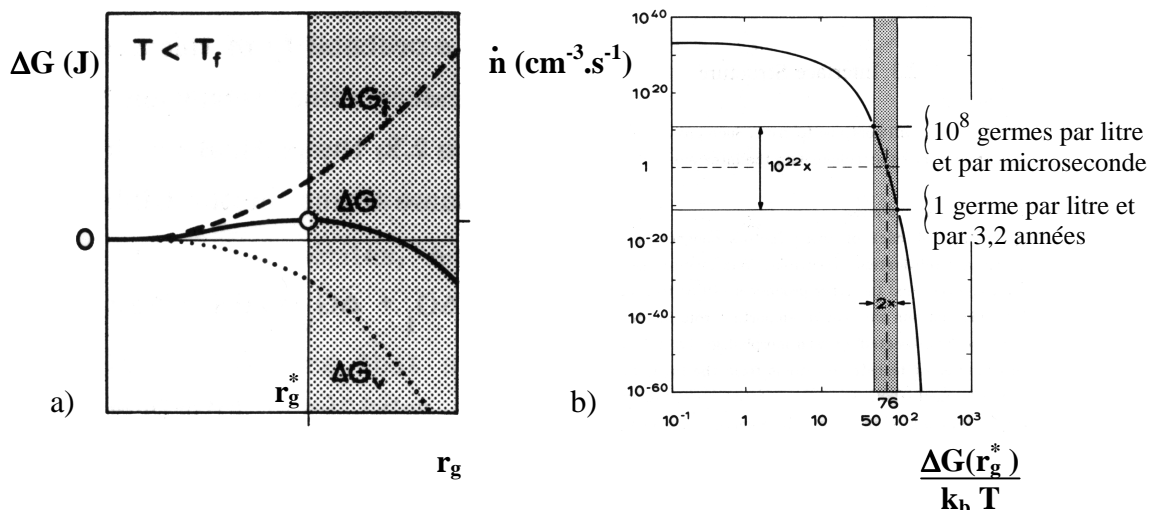


Fig. II.18 : a) Evolution de la variation d'enthalpie libre  $\Delta G$  en fonction du rayon avec les contributions surfacique,  $\Delta G_s$  (courbe supérieure), et volumique,  $\Delta G_v$  (courbe inférieure). Le rayon critique est représenté par  $r_g^*$ . b) Evolution de la densité de germination,  $\dot{n}$ , en fonction du rapport  $\Delta G(r_g^*)/(k_b T)$  [Kur92].

• Germination hétérogène : Les résultats précédents montrent la difficulté de germer de manière homogène. La surfusion nécessaire pour avoir une vitesse de germination de  $1 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  est voisine de  $500 \text{ }^\circ\text{C}$  [Kur92]. Les surfusions permettant l'apparition et le développement d'un germe sont donc trop importantes pour que ce phénomène explique la germination de grains dans le bain liquide en surfusion. En pratique, des impuretés, des peaux d'oxydes formés au contact de l'air ou des agents inoculants volontairement introduits s'y trouvent mélangés. Il devient alors plus facile aux grains de germer sur la surface de ces particules, cette germination étant d'autant plus facile que la structure cristallographique des deux corps est proche. L'explication de ce mécanisme est représentée sur la figure II.19 a). La diminution des aires d'interface et des volumes solidifiés permet de remplacer  $\Delta G(r_g^*)$  dans (II.77) par la nouvelle valeur de l'énergie libre nécessaire à la formation d'un germe,  $f(\theta) \Delta G(r_g^*)$  [Vol29, Kur92], où la fonction  $f$ , inférieure à 1, est définie par :

$$f(\theta) = \frac{1}{4} (2 + \cos(\theta)) (1 - \cos(\theta))^2 \quad (\text{II.78})$$

avec  $\theta$  l'angle de mouillabilité défini par les vecteurs de tension interfaciale solide/liquide,  $\gamma^{l/s}$ , et de tension interfaciale solide/particule,  $\gamma^{s/p}$ .

L'évolution de cette fonction représentée sur la figure II.19 b) montre que pour les faibles valeurs d'angle, la variation d'enthalpie  $f(\theta) \Delta G(r_g^*)$  est ainsi fortement diminuée, ce qui facilite d'autant la germination des grains. Il est à noter que le rayon critique de germination  $r_g^*$  n'est pas modifié mais que le nombre d'atomes nécessaires est diminué et égal à  $N_g^* f(\theta)$ . De plus  $f(\theta) \Delta G(r_g^*)$  est toujours inférieure à  $\Delta G(r_g^*)$ . Avec un angle  $\theta$  égal à  $10^\circ$ , il suffit d'une surfusion de  $6,5 \text{ }^\circ\text{C}$  pour retrouver une vitesse de germination de  $1 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$  [Kur92] ce qui correspond aux surfusions classiques de germination. Cette théorie de la germination hétérogène, également applicable au cas des alliages binaires [Tho83], explique la réelle origine des grains germés dans les alliages industriels.

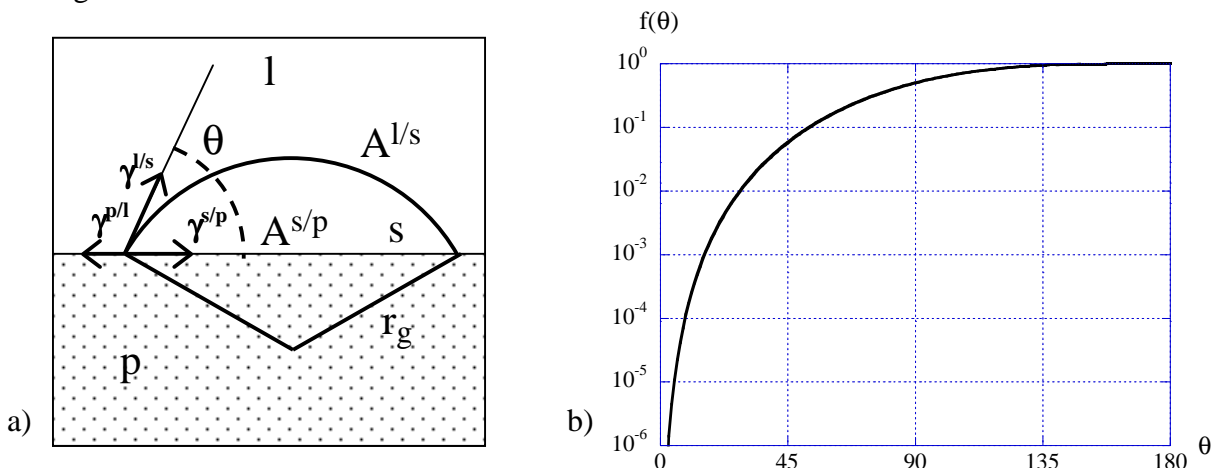


Fig. II.19 : a) Schéma représentatif de la formation d'un grain sous la forme d'un germe solide de calotte sphérique de dimension caractéristique  $r_g$  sur une particule hétérogène présente dans un liquide. Les énergies interfaciales de contact entre la particule ( $p$ ), le liquide ( $l$ ) et le solide ( $s$ ) sont représentées sous la forme  $\gamma^{ij}$  et les aires d'interface sous la forme  $A^{ij}$ .  $\theta$  désigne l'angle de mouillabilité. b) Evolution de la fonction  $f$  (Eq. II.78) selon l'angle  $\theta$  en diagramme semi-logarithmique. On note la rapide croissance de cette fonction.

➤ ‘Big-Bang’ : L’une des premières explications donnée à l’origine de la zone équiaxe est également due à Chalmers [Cha63]. Des cristaux apparus dans une zone froide du lingot peuvent flotter ou être transportés par les mouvements convectifs du liquide vers la partie centrale du lingot. Placés dans une situation de surfusion, ils vont croître sous la forme de cristaux équiaxes. Ce phénomène explique en partie l’importance de la zone équiaxe apparaissant lors de la solidification d’alliages coulés en lingots à des températures proches de la température de liquidus. Dans un tel cas, on observe une apparition brutale d’un ensemble de petits cristaux aux parois du moule. Ceux-ci sont ensuite transportés rapidement dans le liquide où ils sont redistribués.

➤ Fragmentation du front : Après avoir mené une étude sur des corps transparents, Jackson et al. [Jac66] proposent une nouvelle origine pour la formation des grains équiaxes : lorsque les conditions d’évacuation de la chaleur évoluent et se traduisent par un ralentissement du front de croissance colonnaire, de nombreux bras de dendrites secondaires apparaissent. Ce phénomène est dû à une refusion locale à la base des bras secondaires des dendrites colonnaires. Si les fragments ainsi formés se retrouvent dans le liquide en surfusion situé devant le front colonnaire, ils croissent sous la forme de grains indépendants. Gandin [Gan00.1] explique de cette manière l’origine des grains équiaxes apparus dans des lingots d’alliages d’aluminium-silicium obtenus par solidification dirigée [Gan00.2], tout en faisant remarquer que les conditions thermiques sont également propices à une déstabilisation macroscopique du front colonnaire [Fai75.1, Fai75.2]. Ce phénomène permet le développement des grains équiaxes observés dans la partie supérieure des lingots. Récemment, Liu et al. [Liu02] confirment également l’origine de la zone équiaxe par la décélération du front de solidification colonnaire dans des mélanges succinonitrile-eau et chlorure d’ammonium-eau.

➤ Germination sur peaux d’oxydes : Southin [Sou67] a réalisé plusieurs expériences de solidification sur des lingots d’aluminium pur et d’alliage d’aluminium-cuivre. De l’analyse des structures observées, il déduit l’existence d’une quatrième zone, aux cotés des domaines colonnaires, équiaxes et de la zone de peau. Celle-ci prend naissance à la surface supérieure des lingots, lors du refroidissement, par rayonnement, du métal liquide. Les grains formés à cette frontière sédimentent ensuite dans le bain liquide jusqu’à atteindre le domaine solide. A partir de cet instant, ils se développent alors de manière similaire aux structures colonnaires, sous la forme de grains allongés selon le gradient de température. Ils apparaissent ainsi sous une forme caractéristique dans la structure finale du lingot.

---

### II.3.2.a. Expériences

La connaissance de l'étendue du domaine en surfusion dans un lingot liquide est une première étape dans la modélisation du développement des structures de grains. Elle permet de déterminer le volume dans lequel les grains équiaxes peuvent germer et se développer. Cependant la modélisation de la croissance des structures équiaxes ne peut se faire de manière similaire aux structures colonnaires. D'une part, les grains équiaxes sont libres de leurs déplacements guidés par un bilan de forces faisant intervenir le mouvement du liquide qui les entoure et la sédimentation. En retour, le déplacement des grains perturbe l'écoulement du liquide. D'autre part, la vitesse relative du liquide par rapport à celle des grains influe de manière significative sur le développement de la phase solide. Enfin, le déplacement des grains génère un transport d'énergie, de soluté et de matière dont il est nécessaire de tenir compte. Ces différentes caractéristiques propres à la croissance équiaxe expliquent la variété des expériences menées sur ce type de structure.

#### ➤ *Etude globale de la croissance équiaxe*

Partant des considérations de Jackson et Hunt [Jac65] sur l'utilité des alliages organiques transparents, ces expériences se sont en partie basées sur l'observation de la solidification et du déplacement de grains formés à partir de ce type de substances. Jackson et al. [Jac66] ont procédé à des coulées en lingotières de mélanges de chlorure d'ammonium et d'eau. En présence d'une concentration suffisante en éléments d'alliages, ils observent la refusion partielle des bras dendritiques et leurs déplacements dans le liquide. Les nouveaux cristaux formés sédimentent dans la partie basse des lingots et forment une zone centrale équiaxe caractéristique.

Par la suite, Beckermann et Wang [Bec96] ont mené une expérience relativement similaire en utilisant le même alliage. Ils refroidissent de manière identique sur ses quatre parois une lingotière parallélépipédique, les deux faces principales étant isolées thermiquement et servant de fenêtres d'observation. Ils observent alors le développement de la structure dendritique équiaxe et l'évolution des températures mesurées en divers points du lingot. L'existence de deux régimes est montrée. Au départ, les grains, de petite taille et de faible masse, n'opposent pas de résistance au liquide et suivent son mouvement. Après avoir grossi, ils commencent à sédimenter sous l'effet de leur poids et forment un empilement. Cet empilement intervient suffisamment rapidement dans le processus de solidification pour que les grains soient bloqués dans leur mouvement avec des fractions de solide de quelques pour-cents seulement. Les auteurs concluent également que la macroségrégation négative observée en bas du lingot est causée par la sédimentation de cristaux pauvres en éléments d'alliage et observent clairement la remontée de liquide riche en soluté et de faible masse volumique sous la forme de longues traînées.

➤ *Etude de grains fixes isolés*

Les résultats expérimentaux précédents, en s'appliquant au mouvement des grains et à leurs interactions mutuelles, n'en permettent cependant pas une étude individuelle. Pour cette raison, d'autres recherches ont été menées sur des grains isolés. Les expériences de Lee et al. [Lee93] et Miyata et Tanaka [Miy95.1] en étudiant le développement isolé de grains dendritiques sont une étape dans cette démarche et permettent de s'intéresser à la croissance de grains équiaxes soumis à un régime de convection forcée. Lee et al. déplacent verticalement une cuve contenant un grain tandis que Miyata et Tanaka chauffent le liquide, provoquant sa mise en mouvement. Dans les deux cas, les auteurs constatent une augmentation de la vitesse de croissance des dendrites, expliquée par l'existence d'un mouvement relatif du liquide par rapport au solide. Cependant l'effet de cette vitesse relative reste prédominant principalement aux basses surfusions. Comme le remarquent Lee et al., pour une vitesse du liquide donnée, l'effet de la convection cesse d'être notable dès que l'on dépasse une certaine surfusion. Ainsi, dans le cas du succinonitrile, au dessus de 3 °C de surfusion, une vitesse du liquide de 1 cm s<sup>-1</sup> cesse d'influer sur la cinétique de croissance. Cette observation avait déjà été faite dans le cas de la convection naturelle (Fig. II.13).

➤ *Etude de grains sédimentants*

L'étude de grains fixes n'est pas satisfaisante dans la mesure où elle impose de rencontrer un liquide se déplaçant à une vitesse fixée. La vitesse de chute que ceux-ci adopteraient en sédimentant dans un lingot demeure inconnue de même que les effets des mouvements de rotation. Pour ces raisons, plusieurs appareillages permettant l'étude de chutes de grains isolés dans des colonnes de liquide ont été présentés au cours de ces dernières années.

Ramani et Beckermann [Ram97] remplissent un tube vertical avec un alliage de chlorure d'ammonium-eau, noté NH<sub>4</sub>Cl-72%pds H<sub>2</sub>O. Un courant d'eau thermostatée entoure la colonne, permettant de maintenir l'alliage en dessous de sa température de liquidus avec une surfusion précise, ce qui améliore une précédente expérience [Ahu92.1]. Au dessus est placé un tube refroidi permettant de générer de petits cristaux équiaxes. Un trou fin percé à sa base permet d'en sélectionner un unique qui pourra ensuite sédimenter. Les surfusions étudiées varient de 0,2 à 1,1 °C et la taille initiale des grains est de l'ordre de 1 mm à 3 mm. Les vitesses de chutes observées sont voisines de 1 cm s<sup>-1</sup> et les résultats obtenus confirment ceux des auteurs précédents [Lee93,Miy95.1]. Les vitesses de croissance tendent également à augmenter avec la surfusion. Une comparaison de ces vitesses avec les valeurs théoriques déduites du travail de Ananth et Gill [Ana91] (Eq. II.59-61) est tentée. Cependant les auteurs notent la difficulté à calculer la valeur correcte de  $v_p$  en raison des incertitudes sur les valeurs de la constante de stabilité marginale  $\sigma^*$  et du coefficient de Gibbs-Thomson  $\Gamma$ . Ce dernier terme reste le plus difficile à estimer, aucune valeur n'étant trouvée dans la littérature. Des valeurs comprises entre  $0,5 \cdot 10^8$  K m et une valeur 8 fois plus élevée de  $4 \cdot 10^8$  K m semblent donner des résultats corrects. En conclusion, les auteurs notent combien il peut être hasardeux d'appliquer la théorie de Ananth et Gill [Ana91] pour estimer la valeur de  $v_p$ , à partir d'une valeur de sursaturation  $\Omega$  connue. D'une part, le fluide ne se

présente pas avec une vitesse frontale sur l'ensemble des pointes dendritiques. D'autre part, le mouvement du fluide est influencé par la présence de l'ensemble du grain ce qui empêche de considérer isolément les pointes dendritiques. Ramani et Beckermann notent d'ailleurs que les grains observés (Fig. II.20 a) sont relativement symétriques et croissent de manière similaire dans les 6 directions  $\langle 100 \rangle$ , ce qui était également observable sur les expériences de Ahuja [Ahu92.1]. Ils expliquent cette observation par le mouvement de rotation du cristal sur lui-même qui permet à chacune des pointes de rencontrer des conditions de croissance similaires. Ce phénomène justifie les considérations précédemment détaillées sur la difficulté du calcul de la cinétique de pointes.

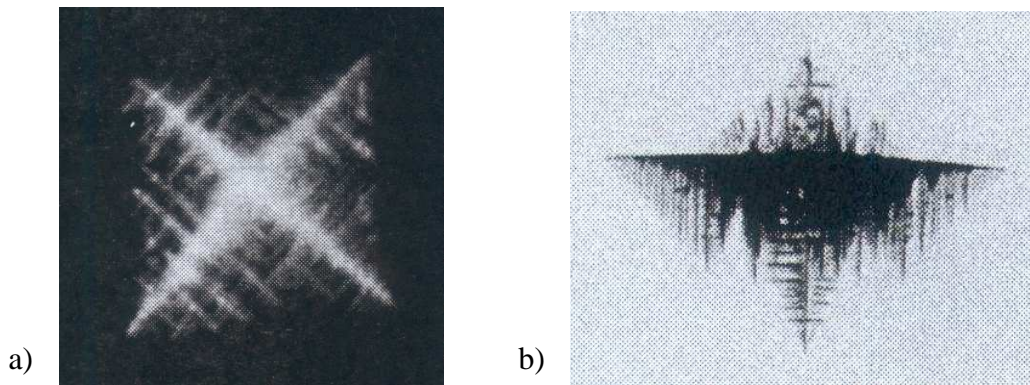


Fig.II.20 : a) Photographie d'un grain d'une taille de 3,5 mm sédimentant dans un mélange  $\text{NH}_4\text{Cl}$ -72% pds  $\text{H}_2\text{O}$  [Ram97]. b) Photographie d'un grain de 5 mm, montrant une morphologie 'delta' marquée, en sédimentation dans un mélange  $\text{NH}_4\text{Cl}$ -72,8% pds  $\text{H}_2\text{O}$  [Ger02].

Jalanti [Jal96] a développé une expérience similaire. Des grains germent au bout d'un capillaire plongé au sommet d'une colonne thermostatée remplie d'un mélange de chlorure d'ammonium et d'eau. Par la suite d'autres grains apparaissent à proximité de celui-ci et commencent à sédimer. Ils sont ensuite suivis dans leur chute par une caméra se déplaçant verticalement et dont la position est connue à tout instant. Ce dernier point améliore l'expérience de Ramani en permettant l'obtention de résultats liant le diamètre de la particule à sa position ou sa vitesse de chute. Il devient possible d'étudier l'évolution générale du grain en fonction de cette vitesse et du temps écoulé depuis le début de la sédimentation. Ainsi, on observe une évolution linéaire du diamètre en fonction du temps de chute montrant que la vitesse de croissance reste relativement stable (Fig. II.21 a). Ces résultats sont comparés à ceux qui seraient obtenus en utilisant le modèle de Stokes pour le calcul de la vitesse de sédimentation des grains. Selon ce modèle, consistant à assimiler la particule à une sphère se déplaçant à bas nombre de Reynolds ( $\text{Re} < 1$ ), le coefficient de traîné évolue comme l'inverse du rayon de cette sphère. En conséquence, si le diamètre de la particule évolue linéairement dans le temps, la vitesse de sédimentation est proportionnelle au carré de la durée de chute et la distance parcourue au cube de cette durée. Les observations de Jalanti montrent que les vitesses de sédimentations mesurées n'évoluent pas selon ce modèle. On remarque ce phénomène sur la figure II.21 b) où les puissances trouvées dans l'expression, sous une forme corrélée, de la distance en fonction du temps sont inférieures à 3.

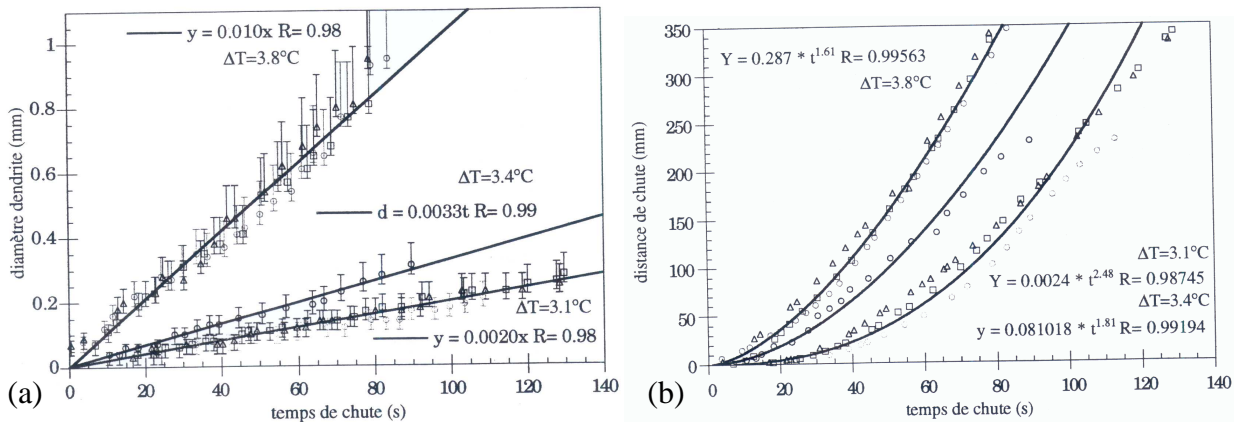


Fig.II.21 : a) Evolution du diamètre de grains en fonction du temps de chute, observée sur des cristaux de  $\text{NH}_4\text{Cl}$ -66,7% pds  $\text{H}_2\text{O}$ . b) Evolution de la distance de chute en fonction du temps pour différentes surfusions [Jal96].

Une expérience de chute de grains dans un alliage transparent a également été élaborée par Albert, Appolaire et Gérardin [Alb98, App98, App99.1, Ger02] sur une hauteur plus importante, voisine de 1,2 m. Elle est similaire à la précédente mais a permis d'aboutir à des résultats plus nombreux et plus précis. De plus, le montage de Gérardin [Ger02] comporte deux appareils photographiques placés orthogonalement, ce qui permet de remonter à la taille exacte des cristaux. Les précédentes observations détaillées ici n'étudiaient qu'une seule photographie d'un même grain, ce qui introduisait un biais important dans l'estimation de sa taille réelle [App98]. A la différence des observations de Ramani [Ram97], la forme des grains observés n'est pas toujours symétrique. Des profils asymétriques qualifiés de 'delta' correspondant à des grains de grosses tailles sont observés [Ger02]. Ainsi, deux types de morphologies se dégagent de l'ensemble des expériences. Le premier correspond à des grains de petites tailles, toujours inférieures à 2 mm, en début de croissance, où n'ayant pas eu le temps de se développer dans la colonne liquide en raison d'une trop faible surfusion. Elle se caractérise par des grains ayant la forme traditionnellement attendue : les six branches  $\langle 100 \rangle$  sont développées de manière similaire et le grain présente une symétrie évidente (Fig. II.22 a). Ces grains se sont développés en effectuant un mouvement de rotation sur eux-mêmes qui a exposé successivement les branches à des conditions de croissance semblables. La faible taille des grains observés par Ramani et Beckermann [Ram97] (Fig. II.20 a), de quelques millimètres, explique leur morphologie. Lorsque les grains poursuivent leur développement, leurs mouvements se stabilisent à partir d'une taille critique et leurs déplacements correspondent alors à une simple translation verticale descendante. La branche basse croît en présence d'un liquide se présentant frontalement. Sa cinétique est accélérée et elle tend à se développer de manière plus importante (Fig. II.20 b et II.22 b). Le même phénomène, quasiment aussi marqué, se produit pour les branches horizontales qui croissent également en présence de convection et donc plus rapidement. A l'opposé la branche supérieure ne rencontre pas le liquide en mouvement et sa croissance est ralentie. Une comparaison de la morphologie ainsi observée peut être faite avec les calculs en champs de phase de Lu et al. [Lu02]. En présence d'un écoulement relatif du liquide par rapport au solide de direction constante par rapport à l'orientation cristallographique du grain, les auteurs retrouvent une morphologie 'delta'.



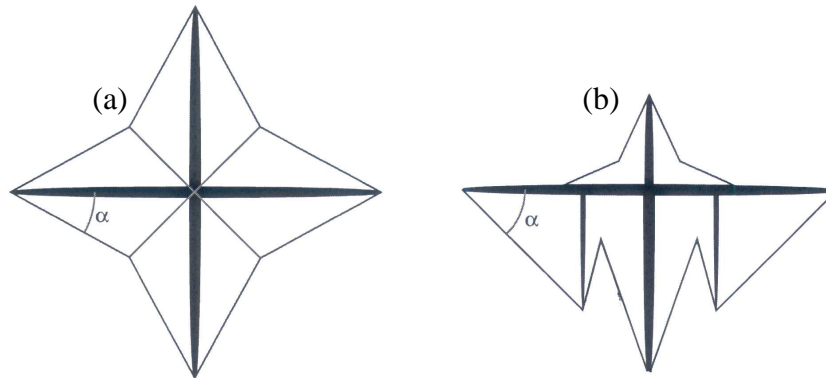


Fig. II.22 : Représentations schématiques des deux types de morphologies de grains équiaxes observées par Gérardin [Ger02] : (a) morphologie symétrique (b) morphologie 'delta' [Ger02].

L'ensemble de ces observations [Ahu92.1, Ram97, Jal96, Alb98, App98, App99.1, Ger02] a permis de montrer l'importance de la prise en compte de la convection sur la prédiction de la croissance des grains équiaxes. L'équation d'Ivantsov (II.21) ne permet pas de prédire des vitesses de pointe aussi importantes que celles observées expérimentalement (Fig. II.21 b). Il est nécessaire de passer par des approches en couche limite (Eq. II.64) ou d'utiliser les relations analytiques de Ananth et Gill (Eq. II.59-61), si besoin est sous une forme corrélée (Eq. II.70). Ramani et Beckermann [Ram97] relèvent cependant un point important dans leur discussion qui est la difficulté de connaître les propriétés physiques des alliages utilisés, rendant difficile la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus de théories.

### II.3.2.b. Modélisation

De nombreuses modélisations ont été menées sur la croissance de grains équiaxes apparaissant dans un liquide surfondu au cours des quarante dernières années. Les bases de cette modélisation ont été posées avec les travaux, précédemment présentés, sur les vitesses de germination, les cinétiques de croissance dendritique et les principes thermodynamiques guidant la solidification. Cependant la validité des résultats numériques obtenus n'est apparue qu'avec l'amélioration progressive de l'outil informatique. L'augmentation du nombre des processus physiques considérés et les couplages entre phénomènes se déroulant à plusieurs échelles ont progressivement permis d'obtenir une validation des résultats numériques.

#### ➤ Croissance de grains

Oldfield [Old66] a posé plusieurs bases de la modélisation du processus de solidification de grains isolés. Il considère une subdivision du volume étudié en un grand nombre de volumes de plus petites dimensions. Dans chacun de ceux-ci une équation de conservation de l'énergie est appliquée. Celle-ci relie la quantité de chaleur dégagée aux propriétés du matériau et à la vitesse de croissance du volume solide présent. Il devient possible d'écrire les équations de conservation discrétisées et les algorithmes de résolution. Après comparaison de ses résultats aux valeurs théoriques attendues, Oldfield conclut à la validité de la démarche adoptée et à la possibilité offerte par la simulation numérique de valider des théories de croissance dendritique.



D'autres modèles ont par la suite été développés permettant de prédire le développement de grains équiaxes. Rappaz et Thévoz [Rap87.1] proposent une approche originale de l'évolution d'un grain en couplant la cinétique de croissance et les équations de conservation du soluté et de la chaleur. Dans un grain pris isolément sont considérées trois zones correspondant respectivement aux domaines solide (s), liquide interdendritique (d) et liquide extradendritique (f). Les deux premières constituent l'enveloppe du grain approximée par une sphère (Fig. II.23) et la réunion des deux dernières représente l'ensemble de la phase liquide (l). Une fraction de grain,  $g^m$ , définit le rapport du volume de l'enveloppe au volume total du système. Les auteurs considèrent que le soluté ne diffuse pas dans le solide ( $D_c^s = 0$ ) et que le liquide interdendritique est de composition uniforme ( $D_c^d$  infini). La diffusion de soluté n'est prise en considération que dans le domaine liquide extradendritique. De même l'ensemble du système est supposé uniforme en température en raison de la diffusion thermique importante dans les alliages métalliques. L'étude de la solidification de cette enveloppe est ensuite réalisée en imposant une extraction constante de la chaleur au système.

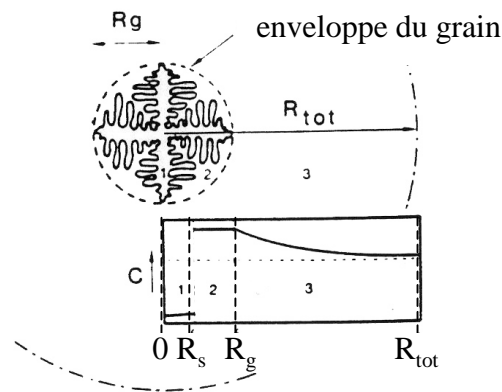


Fig. II.23 : Représentation d'un grain équiaxe selon le modèle de Rappaz et Thévoz [Rap87.1]. La zone 1 correspond à la partie solide (s) du grain, la zone 2 au liquide interdendritique (d) et la zone 3 au liquide extradendritique (f). Une enveloppe sphérique de rayon  $R_g$  entoure les deux premiers domaines. Dans le modèle développé, la diffusion solutale est nulle dans le solide et infinie dans le liquide interdendritique. Elle n'est prise en compte que dans le liquide extradendritique. Sous ces hypothèses, on obtient le profil de concentration encadré. Il faut cependant noter que la représentation du solide sous la forme d'un noyau localisé au centre du grain doit être seulement considérée comme une représentation schématique de la zone pâteuse.

L'un des intérêts majeurs de cette étude est d'expliquer plusieurs phénomènes intervenant lors de la solidification et observés expérimentalement. Aux premiers instants, on montre une diminution de la composition moyenne en soluté dans l'enveloppe due à la faible composition en élément d'alliage du solide et au flux solutal sortant de cette enveloppe. Par la suite, la composition moyenne de l'enveloppe croît parallèlement à sa rapide extension. Cette évolution explique l'apparition d'une recalescence importante en début de solidification due à l'augmentation rapide de la fraction de grain. Cette recalescence s'interrompt lorsque la composition du liquide interdendritique est minimale. La fraction de grain est alors proche de l'unité. La zone interdendritique se solidifie ensuite et on observe la décroissance attendue de la température. Les auteurs montrent que l'évolution thermique suivie par la suite est indépendante du choix de la surfusion de germination.

Cette étude numérique restant coûteuse à mettre en œuvre, un autre modèle [Rap87.2] a été développé par les mêmes auteurs utilisant une approche analytique. Ainsi, une couche limite est utilisée pour représenter l'évolution de la concentration en soluté dans la zone extradendritique. Des résultats similaires sont retrouvés mais l'approche, plus rapide à calculer, peut alors être introduite dans un bilan macroscopique d'écoulement de la chaleur.

Wang et Beckermann [Wan93] ont également développé un modèle de solidification granulaire applicable aux structures colonnaires et équiaxes dans un système multiphasé. Il prend simultanément en compte la germination, la croissance et la morphologie des grains dendritiques. Pour cela les équations de conservation du soluté sont écrites pour les trois mêmes domaines que ceux considérés par Rappaz et Thévoz [Rap87.1]. La cinétique de croissance dendritique est reliée au développement de l'enveloppe. Ce modèle améliore celui de Rappaz et Thévoz en tenant compte de la diffusion du soluté dans le solide et de la morphologie non sphérique du grain. De plus, ces résultats généralisent l'approche précédente en retrouvant en partie les résultats. Cependant la définition des forces motrices guidant la croissance de l'enveloppe diffère sensiblement selon les auteurs. Wang et Beckermann définissent celle-ci par l'écart entre la concentration de l'enveloppe et la concentration moyenne du liquide extradendritique. Rappaz et Thévoz considèrent l'écart entre cette première concentration et celle à la périphérie du système.

### ➤ *Sédimentation*

La liberté de mouvement qui caractérise les grains équiaxes oblige également à s'intéresser à leurs déplacements dans le bain liquide. Dans le but de calculer précisément les forces s'exerçant sur ces grains et de prédire leurs vitesses de déplacement, de nombreux auteurs [Ahu92.2, Gro93, App99.2] considèrent que ces forces ne s'appliquent pas au seul solide contenu dans le grain mais au volume de la zone pâteuse délimité par l'enveloppe du grain (Fig. II.24). Ainsi, l'étude ne se fait plus sur la vitesse de déplacement du solide mais sur la vitesse de déplacement de l'enveloppe considérée alors comme un milieu poreux. Le grain désigne ainsi le mélange pâteux résultant de la réunion du solide et du liquide contenus dans l'enveloppe.



Fig. II.24 [Gro93]: a) Dendrite schématisée et entourée d'une enveloppe idéale passant par l'ensemble des pointes dendritiques. b) Enveloppe simplifiée sous la forme d'un polyèdre.

Stomp et al. [Sto00] détaillent les différentes forces s'exerçant sur un grain équiaxe, en distinguant les forces stationnaires, indépendantes des dérivées temporelles de la vitesse du grain ou de celle de la phase liquide, et les forces instationnaires, qui sont fonctions de ces dérivées :

➤ Forces stationnaires :

$\mathbf{P}$  : le poids du grain, dirigé dans le sens du vecteur gravité  $\mathbf{g}$ .

$\mathbf{P}_A$  : la poussée d'Archimède, dirigée dans le sens contraire du vecteur gravité.

$\mathbf{F}_D$  : la force de traînée qui s'oppose au mouvement du grain et est dirigée dans le sens contraire de la vitesse relative du grain,  $\mathbf{v}_r$ , par rapport au liquide (Eq. II.79) :

$$\mathbf{v}_r = \mathbf{v}_a - \mathbf{v}^l \quad (\text{II.79})$$

où  $\mathbf{v}_a$  est la vitesse de déplacement du grain et  $\mathbf{v}^l$  la vitesse du liquide environnant le grain.

$\mathbf{F}_L$  : la force de portance, provoquée par la rotation du grain et qui peut-être créée par un gradient de vitesse ou être due à l'interaction du grain avec d'autres particules.

➤ Forces instationnaires :

$\mathbf{F}_A$  : la force de masse ajoutée due à l'effet sur le liquide de l'accélération du grain. Elle se compose d'un terme déduit de la variation temporelle de la dérivée de la vitesse relative du grain et d'un terme produit par la variation du volume du grain.

$\mathbf{F}_G$  : la force créée par le gradient de pression local, lorsque des contraintes de cisaillement ou une pression non hydrostatique s'exerce dans le liquide.

$\mathbf{F}_B$  : la force d'histoire, ou de Basset, due à la diffusion de la vorticit  dans l' coulement, ce qui correspond   l'historique des acc l rations pass es du grain. Cependant, cette force est consid r e comme n gligeable par Stomp et al. dans le cas de la coul e continue ou en lingotiere.

Ahuja et al. [Ahu92.2] et Jalanti [Jal96] limitent leur  tude aux trois premi res forces stationnaires cit es ( $\mathbf{P}$ ,  $\mathbf{P}_A$  et  $\mathbf{F}_D$ ). Nous adopterons, par la suite, une d marche similaire. Sous cette hypoth se, les forces peuvent  tre sch matis es sous la forme pr sent e   la figure II.25.

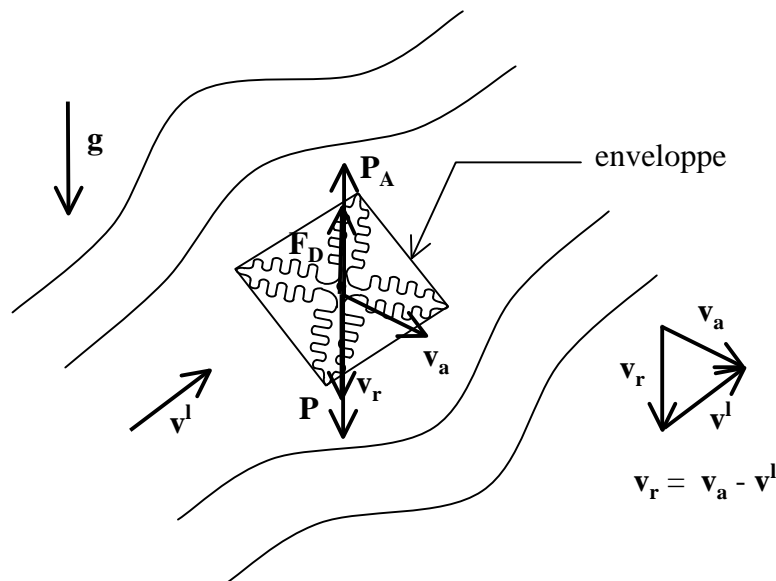


Fig. II.25 : Bilan des trois forces s'exerçant sur un grain au cours de sa sédimentation dans un liquide en mouvement. On considère que le solide est à l'intérieur d'une enveloppe dont on a dessiné ici le contour en deux dimensions. Cette enveloppe relie les sommets des principaux bras dendritiques. L'écriture du bilan des forces (Eq. II.82) conduit à avoir, comme représenté ici, la vitesse relative du grain,  $\mathbf{v}_r$ , parallèle au vecteur gravité et donc aux vecteurs  $\mathbf{P}_A$  et  $\mathbf{P}$ .

Le terme de traînée,  $\mathbf{F}_D$ , correspond au bilan des forces de pression (traînée de sillage) et des contraintes tangentielles (traînée de frottement) exercées par le liquide sur la particule, déduction faite de la poussée d'Archimède. Si la force de traînée est nulle lorsque cette particule est immobile par rapport au liquide, il n'en est plus de même lorsqu'elle se déplace dans celui-ci.  $\mathbf{F}_D$  agit alors en direction opposée à la vitesse relative de déplacement de la particule.

Dans le cas d'un écoulement de Stokes autour d'un grain, assimilé à une sphère pleine de rayon  $r$  et placé en chute libre, Jalanti [Jal96] montre que la vitesse de sédimentation est donnée, après une durée de chute de  $t$ , par (Annexe 4) :

$$v_r(t) = v_r^\infty \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (\text{II.80})$$

La constante de temps, caractérisant la rapidité du grain à atteindre sa vitesse terminale de chute,  $v_r^\infty$ , est égale à :

$$\tau = \frac{2 r^2 \rho^s}{9 \mu^l} \quad (\text{II.81})$$

où  $\mu^l$  est la viscosité dynamique du liquide.

Ahuja et al. [Ahu92.1] supposent que les grains atteignent suffisamment rapidement leur vitesse terminale pour négliger l'accélération. Jalanti [Jal96] procède de la même manière, après avoir montré que le temps mis par une particule pour atteindre  $v_r^\infty$  reste court. Sous cette hypothèse, la vitesse de déplacement,  $\mathbf{v}_r$ , est donnée par l'écriture de l'équilibre des forces sur l'enveloppe :

$$\mathbf{P} + \mathbf{P}_A + \mathbf{F}_D = \mathbf{0} \quad (\text{II.82})$$

Le poids et la poussée d'Archimède exercés sur l'enveloppe s'écrivent :

$$\mathbf{P} = M_e \mathbf{g} \quad (\text{II.83})$$

$$\mathbf{P}_A = - M_e^l \mathbf{g} \quad (\text{II.84})$$

où  $\mathbf{g}$  est le vecteur gravité,  $M_e$  la masse de l'enveloppe et  $M_e^l$  la masse de liquide correspondant au volume de l'enveloppe.

La force de traînée  $\mathbf{F}_D$  s'écrit sous la forme [Ahu92.1, Jal96] :

$$\mathbf{F}_D = -\frac{1}{2} \rho^l v_r \mathbf{v}_r A_e C_D \quad (\text{II.85})$$

où  $\rho^l$  est la masse volumique de la phase liquide,  $A_e$  l'aire de la projection de l'enveloppe dans la direction de la vitesse relative du grain,  $\mathbf{v}_r$ , et  $C_D$  le coefficient de traînée.

De l'équation bilan (II.82) et des expressions des forces (II.83-85), on déduit la valeur de la vitesse relative (Annexe 4) :

$$\mathbf{v}_r = \left( \frac{2 g^{s\ m} (\rho^s - \rho^l) V_e g}{\rho^l A_e C_D} \right)^{1/2} \mathbf{u}_g \quad (\text{II.86})$$

où  $\rho^s$  est la masse volumique de la phase solide,  $V_e$  le volume de l'enveloppe du grain,  $g^{s\ m}$  la fraction de solide interne à cette enveloppe et  $\mathbf{u}_g$  le vecteur unitaire désignant la direction dans laquelle s'exerce la gravité ( $\mathbf{g} = g \mathbf{u}_g$ ).

Dans le cas de la sédimentation d'un grain dendritique, la difficulté consiste à préciser la valeur du coefficient de traînée qui permet le calcul de la vitesse de chute (Eq. II.86). Deux difficultés se présentent, détaillées par Ahuja et al. [Ahu92.1, Ahu92.2] et dont il est aisé de se rendre compte en considérant le grain schématisé à la figure II.25. D'une part, celui-ci ne se développe pas de manière identique dans toutes les directions de l'espace mais selon les six directions cristallographiques  $\langle 100 \rangle$ . Il ne peut être assimilé à une sphère et possède une géométrie complexe caractérisée par une interface importante entre les domaines solide et liquide. Ce phénomène explique le choix fait initialement d'étudier non pas le mouvement du domaine solide intérieur au grain mais celui de l'enveloppe entourant ce grain. D'autre part, le volume liquide contenu dans cette enveloppe modifie son déplacement. En rendant le grain poreux, il favorise son mouvement. Ainsi, il convient de tenir compte de ces phénomènes sous la forme de deux facteurs correctifs. Le premier,  $C_g$ , permet de prendre en considération la géométrie de l'enveloppe choisie et le second,  $C_f$ , la porosité de l'enveloppe c'est à dire l'importance de la fraction volumique de liquide qu'elle contient. Ces deux valeurs s'expriment respectivement par les relations :

$$C_g = \frac{v^{sed}}{v_{eq}^{sed}} \quad (\text{II.87})$$

$$C_f = \frac{v_{eq}^{sed}}{v_{por}^{sed}} \quad (\text{II.88})$$

Le coefficient  $C_g$  est défini comme le rapport de la vitesse de sédimentation de la particule,  $v^{sed}$ , sur la vitesse de sédimentation de la sphère équivalente,  $v_{eq}^{sed}$ , c'est à dire de la sphère de même volume que la particule. Il est calculé à partir du facteur de forme  $\psi$ , qui correspond au rapport de l'aire de la sphère équivalente sur l'aire de la particule. Le coefficient  $C_f$  permet de comparer les sédimentations d'une sphère poreuse et d'une sphère équivalente homogène. Cette dernière ne contient que du solide et est donc totalement imperméable. Elle possède le même diamètre et la même densité apparente que la sphère originale. Sa masse volumique, uniforme, est ainsi égale au rapport de la masse de la sphère poreuse sur son volume apparent, somme des volume du solide et des porosités.  $C_f$  est défini par le rapport de la vitesse de sédimentation de cette sphère équivalente,  $v_{eq}^{sed}$ , sur la vitesse de sédimentation de la sphère poreuse,  $v_{por}^{sed}$ .

En reprenant le travail de Haider et Levenspiel [Hai89], Ahuja et al. [Ahu92.1, Ahu92.2] expriment la valeur du coefficient de traînée de l'enveloppe par la relation (Annexe 4) :

$$C_D = \frac{24 C_f}{C_g \text{Re}} \left( 1 + C_g C_1 \text{Re}^{C_2} \right) + \frac{C_3}{1 + \frac{C_4}{\text{Re}}} \quad (\text{II.89})$$

où Re est le nombre de Reynolds associé au déplacement de la sphère équivalente de diamètre  $d_e$  :

$$\text{Re} = \frac{d_e v_r}{\nu^l} \quad (\text{II.90})$$

et  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  et  $C_4$  sont des coefficients fonctions de  $\psi$  définis à l'Annexe 4.

Dans le cas des particules de sphéricité voisine de 1, c'est à dire des particules de forme voisine de la sphère, une relation entre  $C_g$  et  $\psi$  a été proposée par Pettyjohn et Christiansen [Pet48] :

$$C_g = 0.843 \log\left(\frac{\psi}{0.065}\right) \quad (\text{II.91})$$

Ahuja et al. [Ahu92.2] calculent une corrélation similaire, propre à la sédimentation de particules de structure dendritique. Elle sera corrigée par de Groh III et al. [Gro93] sous la forme :

$$C_g = 1.26 \log\left(\frac{\psi}{0.163}\right) \quad (\text{II.92})$$

De même, Neal et al. [Nea73] expriment le terme correctif de porosité par la relation :

$$C_f = \frac{2 \beta^2 \left( 1 - \frac{\tanh(\beta)}{\beta} \right)}{2 \beta^2 + 3 \left( 1 - \frac{\tanh(\beta)}{\beta} \right)} \quad (\text{II.93})$$

où le rayon normalisé  $\beta$  est égal à :  $\beta = \frac{d_e}{2\sqrt{K}}$  (II.94)

et K désigne la valeur de la perméabilité du milieu interdendritique, détaillée dans l'Annexe 4.

L'utilisation de la relation II.86, écrite sous forme scalaire, avec l'expression du coefficient de traînée donné par II.89 permet de calculer le module  $v_r$  du vecteur  $\mathbf{v}_r$ . La direction de ce vecteur est ensuite connue de cette même relation II.86 qui montre que  $\mathbf{v}_r$  est parallèle et de même sens que  $\mathbf{g}$ , comme représenté à la figure II.25. En additionnant la vitesse  $\mathbf{v}_r$  à  $\mathbf{v}^l$ , la vitesse du liquide qui environne la particule, on retrouve la vitesse propre au grain,  $\mathbf{v}_a$ .

### II.3.3. Transition colonnaire/équiaxe

Nous venons de décrire les différentes études menées dans le but de prédire la croissance des grains colonnaires puis dendritiques dans les lingots métalliques. Comme cela a été précisé précédemment, si la structure colonnaire a tendance à se développer en début de solidification à partir des parois du moule, des grains équiaxes peuvent croître ensuite et bloquer sa progression. En conséquence, on observe une transition entre les deux milieux de structure différente qualifiée de transition colonnaire-équiaxe, communément appelée CET.

#### II.3.3.a. *Expériences*

La CET peut être considérée comme une propriété habituelle des matériaux métalliques coulés. Une difficulté pour préciser la position de cette transition demeure la manière de caractériser et de différencier les deux zones sur la structure finale observée. Les grains équiaxes croissent dans toutes les directions de l'espace, sans orientation particulière et présentent devant eux un gradient thermique négatif permettant l'évacuation à travers le liquide de la chaleur dégagée lors de la solidification. Les grains colonnaires apparaissent en présence d'un gradient thermique positif et se développent dans le même sens que celui-ci. Ainsi les premiers se développent en régime qualifié de croissance non contrainte tandis que les seconds se développent en régime de croissance contrainte.

Gandin [Gan00.2] a réalisé plusieurs expériences sur des alliages d'aluminium-silicium de différentes concentrations afin d'étudier la position de la CET. Son étude est menée sur des lingots cylindriques solidifiés unidirectionnellement de la partie inférieure vers la partie supérieure. L'influence de la composition en silicium est étudiée en faisant varier celle-ci de 0 à 11 %pds. Différentes surchauffes sont imposées initialement. Les structures finales obtenues sont présentées à la figure II.26.

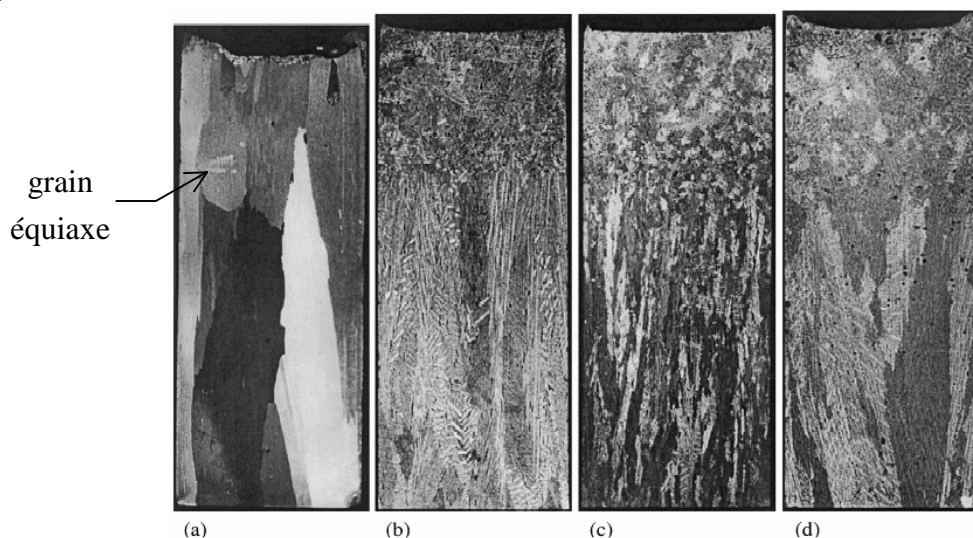


Fig. II.26 : Coupe des lingots d'alliage AlSi obtenus après solidification unidirectionnelle par Gandin [Gan00.2]. Les lingots ont des compositions en silicium de (a) 0 %pds (ie :Aluminium pur), (b) 3 %pds, (c) 7 %pds, (d) 11 %pds. Sur le premier lingot, on note la présence d'un grain isolé dans la partie supérieure.

On n'observe pratiquement pas de grains équiaxes sur le lingot d'aluminium pur. Ceci s'explique par la faible surfusion du front colonnaire dont la structure est cellulaire. Il croît dans un gradient de température positif, à une température proche du point de fusion,  $T_M$ , ce qui réduit le domaine en surfusion. L'apparition de structures dendritiques n'est possible qu'en présence d'une déstabilisation thermique du front, correspondant à un gradient thermique nul ou négatif et donc à la formation de grains équiaxes. Un grain équiaxe isolé est justement observable sur la partie supérieure de la structure II.26 a). Gandin l'explique par l'existence d'une telle déstabilisation thermique devant le front colonnaire, ce que montrent également les courbes de refroidissement. Cette déstabilisation crée alors une zone en surfusion thermique dans laquelle des grains peuvent germer et sédimenter. Le grain observé serait ainsi apparu en régime de croissance non-contraint, dans la partie supérieure du lingot, sur la surface libre métal-air, avant de sédimenter et de rencontrer le front colonnaire. Ce type de germination correspond à celle décrite par Southin [Sou67]. Cette explication est également basée sur la présence d'une dendrite au centre du grain et sur des mesures de diffractions X, montrant une même orientation cristallographique dans la dendrite et le domaine cellulaire de ce grain.

A l'opposé des observations précédentes, des zones équiaxes importantes sont observées sur les alliages d'aluminium-silicium. En effet, dans le cas de la solidification d'alliages, une surfusion est nécessaire afin de permettre le développement de la zone colonnaire. Il existe donc en permanence un liquide en surfusion devant le front dans lequel des grains peuvent se former, croître et progressivement bloquer le front colonnaire.

Ces zones de grains équiaxes apparaissent environ aux deux-tiers du lingot. Leur importance augmente légèrement avec l'accroissement de la composition en élément d'alliages. Une origine à ce phénomène se trouve dans l'expression de la vitesse de croissance en fonction de la surfusion (II.73). Les conditions de refroidissement étant identiques, il est possible de considérer que la vitesse d'avancée du front,  $v_f$ , reste similaire entre les différentes expériences. Ainsi, l'augmentation de la composition moyenne des alliages,  $w_0$ , conduit à une augmentation de la surfusion du front  $\Delta T$ . La taille du domaine en surfusion augmente ce qui permet l'apparition d'un nombre plus important de grains équiaxes. La netteté de la CET semble aussi dépendante de la concentration.

Martorano et al. [Mar03] présentent différentes expériences de solidification ayant été menées dans le but d'étudier l'apparition de la CET. Elles ont en commun d'avoir été réalisées avec un flux d'extraction de la chaleur unidirectionnel, généralement vertical, et sur des alliages binaires, d'une manière similaire à celles menées par Gandin [Gan00.2]. Ces conditions expérimentales permettent notamment une comparaison plus aisée avec les approches analytiques prédisant la création d'une transition entre grains colonnaires et équiaxes. Les expériences donnent ainsi le moyen d'étudier la position de la CET selon l'évolution de nombreux paramètres, tels la surchauffe, la présence d'inoculants, la composition de l'alliage ou la vitesse d'extraction de la chaleur. Néanmoins, ces expériences souffrent généralement de ne pas permettre un calcul précis des paramètres de germination des grains équiaxes (densité de germination et surfusion de germination), pour donner lieu à des comparaisons quantitatives.



### II.3.3.b. Prédiction de la position de la CET

La prédiction de la position de la zone de transition entre grains colonnaires et équiaxes apparaît nécessaire afin de correctement prédire les domaines occupés par les grains colonnaires et équiaxes. La connaissance de son emplacement permet également de quantifier l'importance de ces deux structures aux propriétés différentes. Plusieurs modèles ont été développés en ce sens, résumés par Flood et Hunt [Flo98] et Martorano et al. [Mar03].

#### ➤ Critère de Hunt

Les premiers modèles de prédiction de la CET ne faisaient pas intervenir la croissance des grains équiaxes mais seulement leurs origines et leur possibilité de germer [Flo87.1, Flo87.2]. A l'inverse, le modèle développé par Hunt [Hun84], en régime de croissance stable, prend en compte cette croissance, leur origine étant éludée. Hunt considère que la structure de solidification est totalement équiaxe à partir de l'instant où la fraction volumique de grains équiaxes  $g^{eq}$  dépasse la valeur critique déduite de considérations géométriques, un 'blocage mécanique' se produisant alors et empêchant tout développement de grains colonnaires. A l'inverse, la structure est considérée comme uniquement composée de grains colonnaires pour une valeur de  $g^{eq}$  égale à un centième de la valeur critique. Cette dernière est cependant choisie de manière relativement arbitraire en considérant qu'un grain est colonnaire dès lors que sa dimension maximale est deux fois supérieure à sa dimension minimale ce qui mène à une valeur de 0,49. Le raisonnement développé par la suite suppose que la germination hétérogène de l'ensemble des grains équiaxes se réalise pour une unique surfusion,  $\Delta T^{germ}$ , et pour une densité de germes,  $n$ , fixée. La cinétique de croissance des pointes est ensuite fonction du carré de la surfusion. En cela, on retrouve le raisonnement précédemment développé par Burden et Hunt [Bur74] et simplifié par Flood et Hunt [Flo87.1]. Sous ces hypothèses, un critère peut être développé permettant la détermination du type de structure obtenue localement en fonction du gradient thermique  $G$ , supposé fixe, de la densité volumique de germes  $n$  et de la surfusion du front de croissance colonnaire  $\Delta T^{col}$ .

$$\text{Si} \quad G < 0,617 n^{1/3} \left[ 1 - \left( \frac{\Delta T^{germ}}{\Delta T^{col}} \right)^3 \right] \Delta T^{col} \quad (\text{II.95})$$

la structure est totalement équiaxe, le gradient de température étant trop faible pour assurer la croissance colonnaire. La CET apparaît dès l'instant où cette inégalité se vérifie.

$$\text{A l'opposé, si} \quad G > 0,617 (100 n)^{1/3} \left[ 1 - \left( \frac{\Delta T^{germ}}{\Delta T^{col}} \right)^3 \right] \Delta T^{col} \quad (\text{II.96})$$

la structure sera considérée comme colonnaire.

Ce critère fournit une indication, selon les conditions de coulée et de refroidissement imposées à l'alliage, sur le type de grains obtenus. Cependant, il présente l'inconvénient de faire plusieurs hypothèses simplificatrices, notamment celle d'une germination de l'ensemble des grains équiaxes à une même surfusion et d'une cinétique de croissance simplifiée.

Néanmoins, l'expression de ce critère avec une équation du type II.73 permet de déduire que, pour un alliage de composition fixée, l'augmentation de la vitesse de croissance du front favorise la germination de grains équiaxes. Ce fait semble confirmé par les expériences de type Bridgman menées par Kim et Grugel [Kim92]. A gradient thermique fixé, l'augmentation progressive de la vitesse d'avancée du front provoque l'apparition d'une structure équiaxe plus marquée. D'autre part, leurs expériences montrent que la CET est favorisée lorsque la concentration en éléments d'alliage augmente, ce qui était également une des conclusions du travail de Gandin [Gan00.2]. Cette tendance est également obtenue pour les modèles de Burden et Hunt [Bur74] et de Flood et Hunt [Flo87.1] puisque la surfusion de croissance colonnaire augmente avec la composition de l'alliage à vitesse de croissance fixée lorsque l'on fait usage d'une équation de type II.73.

Le critère de Hunt [Hun84] a ensuite été étendu par Flood et Hunt [Flo87.1, Flo87.2] dans un travail de modélisation de la progression d'un front de solidification. Le gradient de température n'est plus considéré constant et évolue au cours du calcul. Une densité de germination pouvant dépendre de la température locale est utilisée. Cependant les résultats obtenus prédisent un domaine équiaxe trop important par rapport à celui observé habituellement. Les auteurs en concluent que le développement de la zone équiaxe n'est pas fonction de la seule croissance des grains qui la forme.

D'autres critères similaires à celui de Hunt ont par la suite été élaborés afin de permettre la prédiction de la CET dans d'autres conditions de solidification ou de procédé. Dans le cas de la solidification rapide de type laser, Gäumann et al. [Gäu01] reprennent les équations de Hunt [Hun84] et les expriment sous une forme générale donnant pour gradient thermique critique :

$$G = \frac{1}{N_2+1} \sqrt[3]{\frac{-4\pi}{3 \ln[1-g^{eq}]}} n^{1/3} \Delta T^{col} \left( 1 - \left( \frac{\Delta T^{germ}}{\Delta T^{col}} \right)^{N_2+1} \right) \quad (II.97)$$

où  $N_2$  est l'exposant de la surfusion dans l'expression de la vitesse du front,  $v_f$ , celle-ci étant écrite de manière similaire à l'équation (II.73), sous la forme simplifiée :

$$v_f = A_2 (\Delta T^{col})^{N_2} \quad (II.98)$$

Dans cette relation, les surfusions thermique et de courbure interfaciale sont négligées et seule la surfusion solutale  $\Delta T_c^{col}$  est considérée ( $\Delta T^{col} = \Delta T_c^{col}$ ). De plus, étant données les conditions particulières de la solidification (croissance rapide et faible surfusion) Gäumann et al. choisissent de chercher une corrélation sur la vitesse de croissance permettant de retrouver des valeurs des

paramètres  $N_2$  et  $A_2$  propres aux conditions de solidification. Ils aboutissent à des valeurs respectives de 3,4 et  $1,25 \cdot 10^{-6} \text{ m s}^{-1} \text{ K}^{-3,4}$  et considèrent que la CET se déroule lorsque l'on vérifie la relation :

$$\frac{G^{N_2}}{v_f} = A_2 \left( \sqrt[3]{\frac{-4 \pi n}{3 \ln[1-g^{eq}]}} \frac{1}{N_2+1} \right)^{N_2} \quad (\text{II.99})$$

Wang et Beckermann [Wan94] utilisent le même critère de blocage de Hunt [Hun84] afin de prédire la position de la CET et reprennent le modèle précédemment exposé pour la croissance des grains [Wan93]. Ils considèrent que la structure granulaire est composée des trois zones précédemment citées : solide, liquide interdendritique et liquide extradendritique. Aucun des modèles cités jusqu'ici ne tiennent compte de l'influence des mouvements convectifs sur le transport des grains équiaxes, la sédimentation et l'enrichissement du liquide en soluté à l'échelle macroscopique du lingot.

### ➤ *Approche stochastique*

Gandin et Rappaz [Gan94] se basent sur une approche stochastique du développement des grains colonnaires et équiaxes. En dimension 2, le domaine de solidification étudié est recouvert par un maillage en triangles (Fig. II.27 a) sur lequel on superpose une grille de cellules carrées (Fig. II.27 b). Les grains sont décrits de manière individualisée par l'ensemble des cellules qui les composent. Un couplage est développé entre l'approche macroscopique basée sur la résolution de l'équation de la chaleur à l'échelle du maillage en utilisant la méthode des éléments finis (FE), l'évolution de la structure de solidification à l'échelle de la grille de cellules utilisant une méthode d'automates cellulaires (CA). Le couplage entre ces deux méthodes numériques explique l'acronyme CAFE donné au modèle. Les variations d'enthalpie et les températures calculées aux nœuds sont interpolées au niveau des cellules puis transformées en variations de fraction de solide propres aux cellules. Ces dernières sont sommées puis rétrocedées aux mêmes nœuds (Fig. II.27 a). Les nouvelles températures de ces nœuds sont finalement calculées par un bilan d'enthalpie. Au final, on retrouve un nouveau champ de température et de fraction de solide aux nœuds.

Dans ce schéma, la croissance des grains est imposée par une cinétique propre aux cellules. Dans chacune d'elle, une forme de croissance carrée représentant l'évolution du grain se développe. Un algorithme de capture, amélioré par la suite [Gan96.1, Gan97, Tak00], permet à chaque cellule de capturer progressivement ses voisines.

L'intérêt immédiat de ce type de modélisation est de ne pas distinguer a priori, à la différence des modèles précédents, la nature colonnaire ou équiaxe des grains formés. La croissance de ces deux types de structure se réalise de manière identique et leurs différences ne se révèlent que sur la carte de structure finale. Les grains ayant crû dans un gradient de température apparaissent allongés et correspondent à la structure colonnaire. A l'opposé, les grains qui se sont développés dans un gradient plus faible n'ont pas d'orientation de croissance particulière et se

présentent sous la forme de grains équiaxes. La densité des germes présents dans le bain liquide et le choix fait initialement de leurs surfusions de germination sont les facteurs déterminant la présence plus ou moins marquée de la zone équiaxe et la taille finale des grains qui la compose. La comparaison de la structure finale observée dans le cas de la solidification dirigée d'un lingot d'alliage Al-7% pds Si à celle modélisée par le couplage valide cette démarche. Après avoir choisi les paramètres d'une distribution gaussienne de sites de germination en fonction de la surfusion de germination (densité maximale  $n_{vol}^{max} = 2.10^{10} m^{-3}$ , surfusion moyenne  $\Delta T_{vol}^{\mu} = 5,5 K$ , écart-type  $\Delta T_{vol}^{\sigma} = 0,5 K$ ), la structure simulée présente un caractère colonnaire marqué dans sa partie basse. Dans la partie supérieure, on observe des grains équiaxes d'orientations variées. Ce type de simulation de la compétition de croissance entre structures colonnaires et équiaxes a récemment été étendu à trois dimensions d'espace et appliqué à la prédiction des structures de grains dans des superalliages base Nickel [Far02].

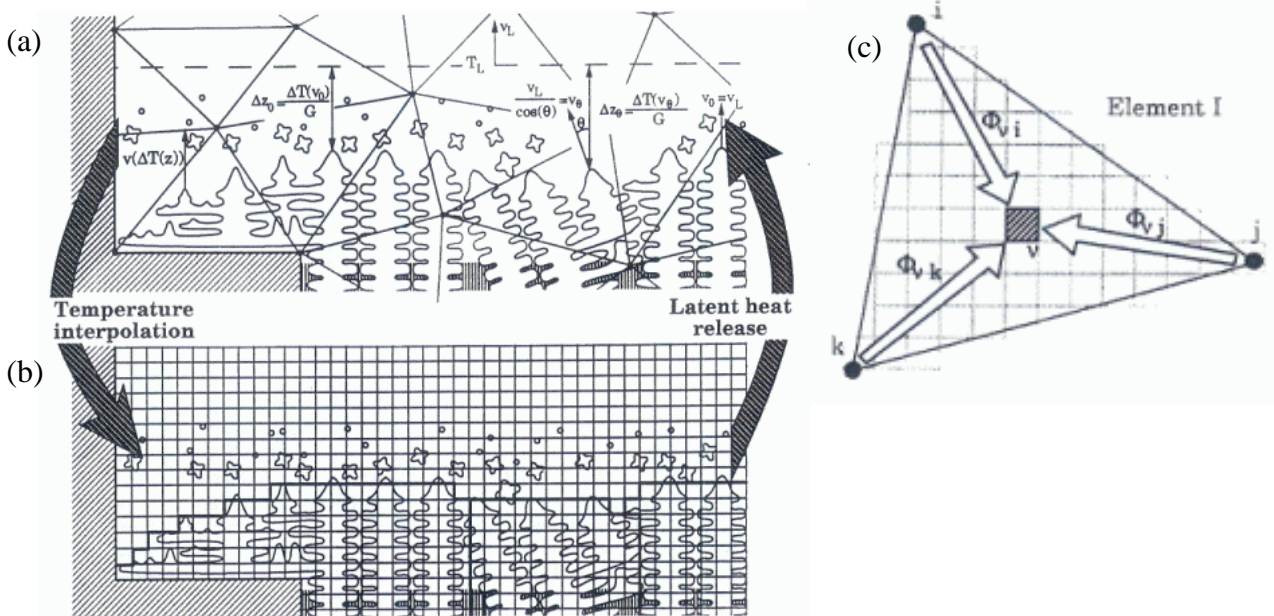


Fig. II.27 : Schéma du couplage CAFE élaboré par Gandin et Rappaz [Gan94]. Le maillage en éléments finis du domaine se solidifiant est représenté en (a) et le réseau de cellules qui s'y superpose en (b). Les flèches reliant les figures (a) et (b) schématisent le couplage entre l'interpolation en température destinée au calcul de l'évolution de la solidification dans les cellules ('Temperature Interpolation') et la rétrocession de la chaleur latente via la mise à jour de la fraction de solide des nœuds ('Latent heat release'). Le calcul de la valeur d'un paramètre au niveau d'une cellule est réalisé par l'interpolation de sa valeur au niveau des nœuds qui l'entourent. Ce processus est représenté sur la figure (c). La cellule  $v$  située dans l'élément I reçoit une information des nœuds  $i, j$  et  $k$  par l'intermédiaire des coefficients d'interpolations  $\Phi_{vi}, \Phi_{vj}$  et  $\Phi_{vk}$ .

### ➤ Approche thermique

Nous avons précédemment présenté, au paragraphe II.3.1.b, le modèle en suivi de front développé par Gandin [Gan00.1] consistant à suivre le déplacement du front de solidification délimitant la zone pâteuse d'un alliage binaire en solidification dirigée. La première correspond à

l'interface dendritique et la seconde à l'interface eutectique. Les résultats obtenus montrent une augmentation progressive de la surfusion au front de croissance. Aux deux tiers du lingot cette surfusion commence à diminuer peu avant que le gradient thermique ne devienne nul dans le liquide. La comparaison de ce calcul avec les structures observées (Fig. II.26) montre que ce phénomène se produit à la position de la CET. Gandin formule l'hypothèse que le maximum observé dans la vitesse de croissance de la dendrite, correspondant à un gradient thermique faible dans le liquide, ne permet plus de contraindre le front colonnaire. Par ailleurs, la vitesse de croissance diminuant, il considère qu'interviennent alors des phénomènes de refusion des bras de dendrites tels qu'observés par Jackson et al. [Jac66] et plus récemment par Liu et al. [Liu02], ce phénomène s'ajoutant à la déstabilisation de l'interface macroscopique déjà étudiée qualitativement puis théoriquement par Fainstein-Pedraza et Bolling [Fai75.1, Fai75.2]. En l'absence de toute autre source de germination (inoculant, impuretés, grains germés en surface du liquide, ...), ces phénomènes provoquent, dans le domaine en surfusion devant les grains colonnaires, l'apparition de germes précurseurs des grains équiaxes. La conclusion majeure de cette étude demeure la prédiction de l'apparition d'une CET lorsque le gradient thermique dans le liquide devient nul, les grains équiaxes étant le résultat d'une fragmentation du front colonnaire. A noter enfin que ce critère se réduit à celui de Hunt [Hun84] pour  $\Delta T^{\text{germ}} = \Delta T^{\text{col}}$ .

### ➤ *Critère solutal*

Le critère de Hunt [Hun84] a été qualifié de 'blocage mécanique' dans la mesure où il prédit la transition à partir d'une valeur seuil de la fraction volumique de grains équiaxes à partir de laquelle l'avancée des grains colonnaires est stoppée. Martorano et al. [Mar03] introduisent un critère de blocage solutal. La même approche que celle développée par Wang et Beckermann [Wan94] est utilisée pour représenter les différentes régions des grains. La cinétique de croissance utilisée est fonction de la valeur de la sursaturation  $\Omega_c$  (Eq. II.22). Ce terme permet de tenir compte de l'enrichissement progressif en soluté du liquide dans l'expression de la cinétique en considérant l'évolution de la composition à l'infini,  $w^{l\infty}$ . Ainsi, le ralentissement de la croissance colonnaire provoquant l'apparition de la CET est attribué à cet enrichissement du liquide devant le front au fur et à mesure que croissent les grains équiaxes présents dans la zone en surfusion. L'avantage est que la valeur prédite de la fraction volumique de grains équiaxe,  $g^{\text{eq}}$ , correspondant à la CET n'est plus un paramètre mais un résultat du calcul. Il faut noter que l'application de ce modèle aux expériences de Gandin [Gan00.2] mène à la même conclusion favorisant la fragmentation comme source des grains équiaxes lorsque le gradient thermique devant le front colonnaire devient nul [Gan00.1].

## II.4. Ségrégations dans les alliages métalliques

Nous avons présenté dans le chapitre précédant les différentes études menées dans le but de prédire les structures de grains obtenues à la fin du processus de solidification. Le développement de la zone colonnaire ainsi que le déplacement et la croissance des grains équiaxes ont été détaillés tant du point de vue expérimental que de celui de la modélisation. Cependant la croissance de ces structures interagit également avec les champs de composition en éléments d'alliage.

A l'échelle microscopique, la cinétique dendritique est fonction de la composition en éléments d'alliage présente dans le liquide. A une échelle supérieure, la ségrégation associée au développement du solide provoque un rejet de solutés dans le liquide et une convection d'origine solutale. Enfin, à l'échelle du procédé, le déplacement des grains équiaxes et la perméabilité des structures agissent sur le mouvement du liquide et les profils de composition. Ces derniers modifient en retour la croissance de la pointe des dendrites.

Beckermann [Bec00] considère que de nombreuses caractéristiques finales des champs de ségrégation ne peuvent être prédites sans prendre en considération la microstructure. Ainsi, les progrès à réaliser dans la modélisation de l'évolution du champ de composition ne pourront se faire sans la connaissance, en parallèle, de la structure de solidification. En retour, l'étude des structures granulaires nécessite de connaître l'évolution des champs de composition dans le lingot, autant à l'échelle des grains qu'à celui du procédé. Ces propos sont confirmés par les observations expérimentales de Lesoult et al. [Les99]. Beckermann [Bec00] donne une revue générale des causes de la macroségrégation et des modèles développés pour la modéliser. Nous nous contenterons ici de rappeler les caractéristiques principales de ces ségrégations. Dans un premier temps, nous présenterons différentes études expérimentales montrant l'enrichissement en soluté du métal et expliquant les profils finaux de composition. Dans une seconde partie, nous étudierons les différents modèles de ségrégation permettant la prédiction de ces profils.

### II.4.1. Mesures de l'enrichissement en soluté du lingot

#### II.4.1.a. *Caractéristiques générales*

Lors de la coulée de lingots métalliques, une macroségrégation des éléments d'alliage ajoutés est généralement observée à l'échelle du produit de coulée [Der64, Fle74, Bec00].

Ainsi, la partie basse du lingot, présentée à la figure II.28, exhibe un profil de composition inférieur à la composition nominale (ségrégation négative). Cela est dû à la sédimentation de cristaux équiaxes de composition faible. Après avoir germé et sédimenté, ils se sont accumulés au fond de la lingotière sous la forme d'un empilement conique de grains. A l'inverse, la partie supérieure du lingot présente une composition en éléments d'alliage supérieure à la composition nominale (ségrégation positive). Cette partie du lingot se solidifiant en dernier, elle accumule le soluté rejeté dans le liquide par convection solutale. De fait, l'enrichissement en éléments d'alliage

a tendance à diminuer la masse volumique du liquide dans le cas des aciers où le fer est allié au carbone, plus léger. Les courants convectifs qui apparaissent alors déplacent le soluté vers le haut.

Enfin, des profils de mésoségrégation dits en A ou en V en raison de leurs formes sont également observables (Fig. II.28 b). Les premiers se présentent sous la forme de lignes ségréguées ascendantes dirigées vers le centre du lingot. Ces canaux qualifiés de ‘freckles’ ou de ‘cheminées’ sont dus à l’enrichissement en soluté du liquide sortant de la zone pâteuse, cet enrichissement pouvant contribuer à la refusion partielle du solide. Bennon et Incropera [Ben87] ont développé un modèle permettant la prédiction de ce type de canaux ségrégués en couplant les résolutions des équations de conservation du soluté, de la chaleur et de la quantité de mouvement. Sur des alliages  $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ , ils montrent le développement progressif de ces bandes riches en soluté le long du chemin suivi par le liquide sortant de la zone pâteuse. Des freckles formés dans des superalliages à base Nickel sont présentés sur la figure II.29 [Bec00]. Ces photographies montrent la présence de grains équiaxes qui accompagnent ce type de mésoségrégation. Les canaux ségrégués en V, visibles au centre du lingot, sont expliqués par le mouvement des derniers grains équiaxes présents en fin de solidification et le déplacement du liquide à ces instants [Jal00].

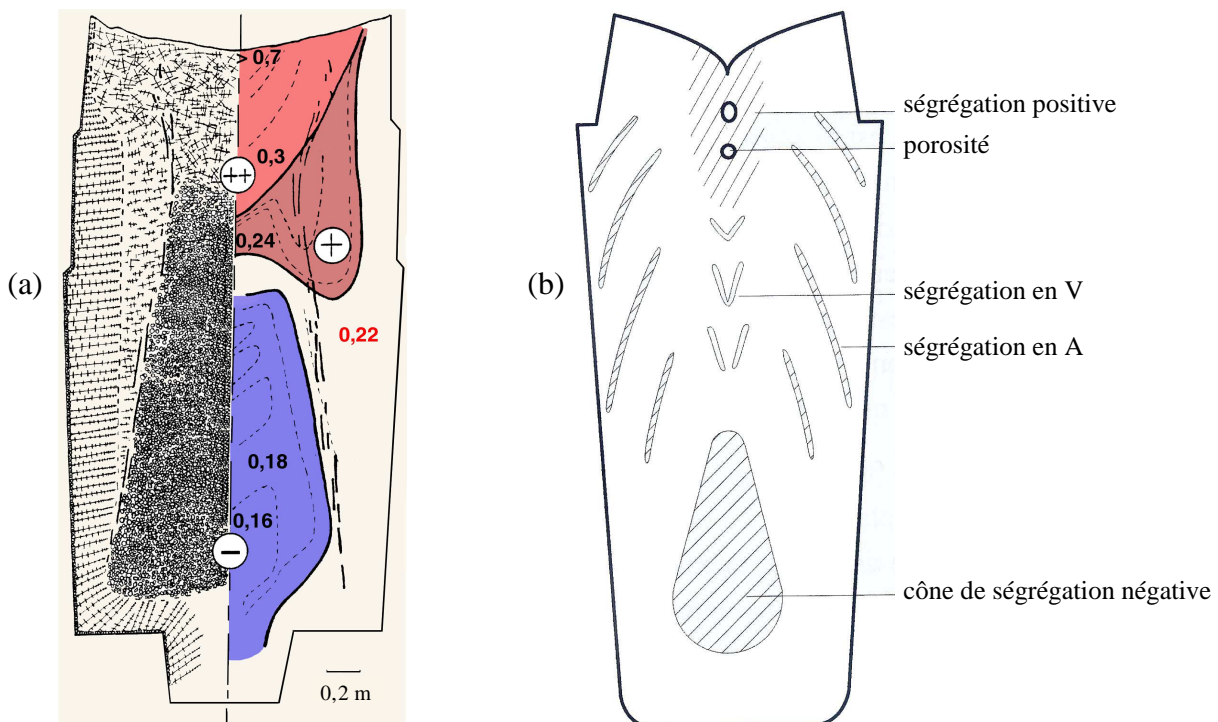


Fig. II.28: a) Schéma d'une coupe d'un lingot d'acier [Maz95] de composition nominale en carbone de 0,22 % pds. Les domaines composés des grains colonnaires dendritiques et équiaxes dendritiques ainsi que la zone de peau sont visibles à gauche et les champs de compositions mesurés sont représentés à droite. Les contours des zones ségréguées positivement (signe + et ++ ) et négativement (signe -) sont également indiqués. b) Schématisation des différentes zones ségréguées et couramment identifiables sur un lingot coulé [Cam91].

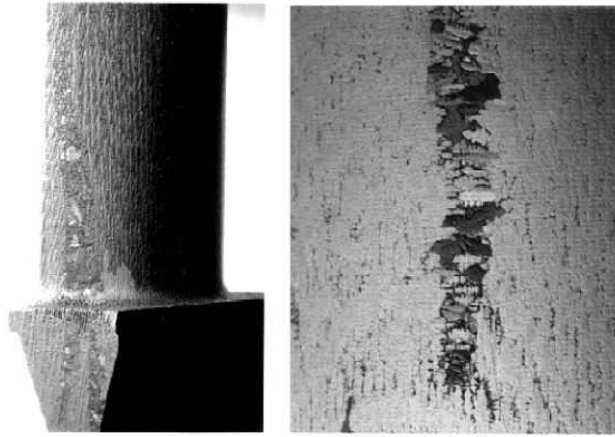


Fig. II.29: Photographies de freckles dans des aubes en superalliages à base de Nickel (gauche) et agrandissement de l'un d'entre eux (droite) [Bec00].

#### II.4.1.b. Ségrégation inverse

À une échelle inférieure, un autre type de ségrégation est observable sur les premiers centimètres solidifiés d'une coupe longitudinale d'un lingot, menée perpendiculairement à sa surface extérieure (Fig. II.30) [Fle68.2]. On observe une forte composition en élément d'alliage à proximité de la paroi du lingot puis la diminution progressive de cette composition avec l'éloignement à la paroi pour revenir vers des valeurs voisines de la composition nominale. Cette ségrégation est qualifiée de 'ségrégation inverse'. Elle a été expliquée dès 1947 par Scheil [Sch47] par le transport interdendritique du métal liquide aux premiers instants de la solidification en raison du phénomène de retrait. Kirkaldy et Youdelis [Kir58] puis Flemings et al. [Fle67, Fle68.1, Fle68.2] en ont réalisé les premiers modèles.

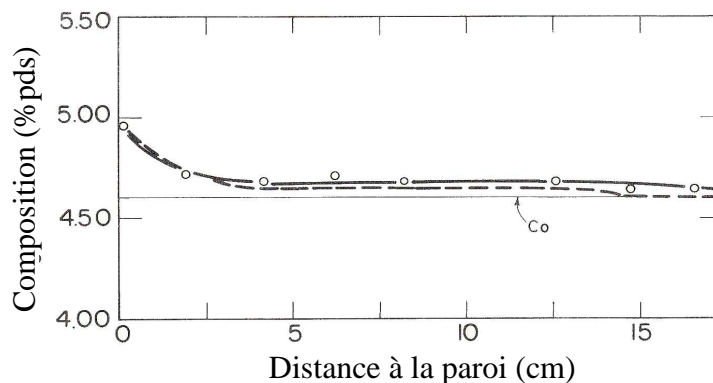


Fig. II.30 [Fle68.2]: Profil de composition d'un lingot d'alliage Al-4,6 %pds Cu solidifié unidirectionnellement en fonction de la distance à la paroi. Les valeurs mesurées (cercles et ligne pointillée) s'accordent bien avec le profil calculé (ligne continue).

#### II.4.1.c. Les dispositifs type Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74]

L'étude de la ségrégation de lingots de taille industrielle est intéressante dans la mesure où elle permet d'identifier les hétérogénéités chimiques principales des coulées. Cependant d'autres expérimentations, à plus petites échelles, ont été menées dans le but de retrouver certaines de ces hétérogénéités et de mieux les étudier. Il devient ainsi possible de trouver la source de ces ségrégations et les propriétés des alliages conduisant à leur création.



L'une des premières expériences menée en ce sens est celle de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] (Fig. II.31). Elle consiste à couler dans une lingotière de faible épaisseur (1,3 cm) un lingot de 10 cm de long sur 6 cm de large. Celui-ci est ensuite solidifié à partir d'une unique paroi, refroidie de manière continue par un circuit d'eau ou d'air.

Trois types d'alliages sont étudiés [Heb73], permettant de couvrir un large domaine de composition : Sn-5%pds Zn, Sn-5%pds Pb, Pb-48%pds Sn. Les variations de densité du liquide suivant les alliages sont importantes et les courants convectifs induits par la ségrégation et les profils de température peuvent évoluer dans des sens contraires. La température à laquelle débute le refroidissement est choisie juste au-dessus de la température de liquidus correspondant à la composition nominale. Les figures II.31 a), b) et c) présentent quelques caractéristiques de la coulée de ces lingots.

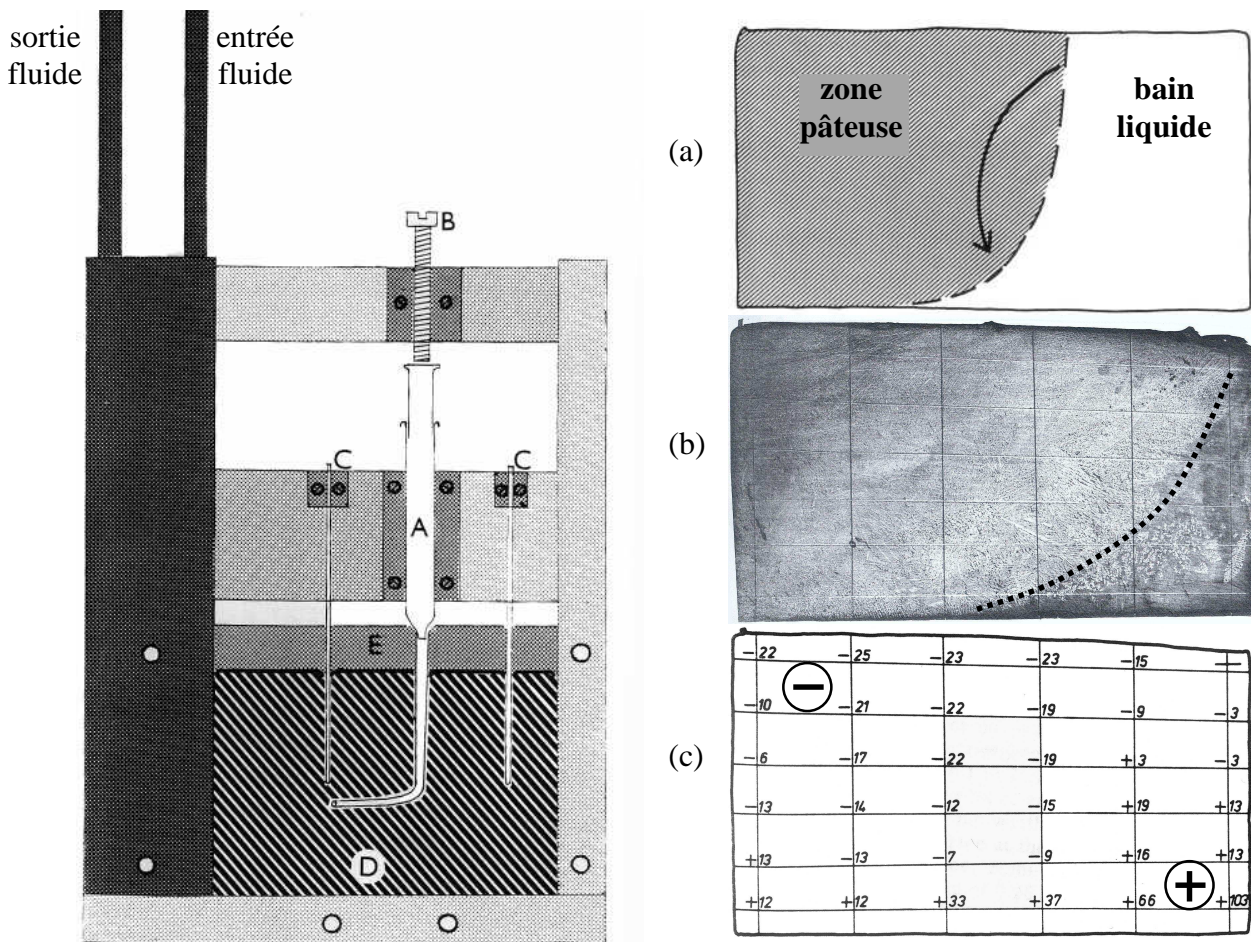


Fig. II.31 : A gauche [Heb73]: schéma présentant l'expérience menée par Hebditch et Hunt. Les thermocouples C permettent de suivre l'évolution en température du lingot qui se développe dans la cavité D. Le refroidissement est assuré par le bloc refroidisseur parcouru par le fluide dont on voit les tubes d'entrée et de sortie, en haut du dispositif. Les autres parois sont adiabatiques. A droite [Heb74]: a) Position du front au cours de la solidification, schématisée à partir des mesures, pour un alliage Sn-5%pds Pb. Le plomb rejeté provoque la mise en mouvement du liquide dans le sens direct. Ce mouvement entraîne un enrichissement en élément d'alliage dans la partie basse du lingot ce qui ralentit l'avancée du front. Ce phénomène explique son retard dans cette zone. b) Carte de structure du même lingot en fin de solidification, présentant des domaines colonnaires et équiaxes séparés par la ligne tracée en trait pointillé. c) Carte de composition relative correspondante. Une nette ségrégation dans la partie inférieure droite du lingot est visible (signe +). A l'inverse, la partie supérieure gauche est ségrégée négativement (signe -).

L'intérêt de cette étude est de montrer le rôle principal que joue le phénomène convectif dans le champ de ségrégation finale. Le rejet de soluté crée un gradient de masse volumique dans le liquide qui induit une force mettant le liquide en mouvement. D'autre part, celui-ci traverse la zone pâteuse, de manière plus ou moins importante selon sa perméabilité, la 'nettoyant' de ses éléments d'alliage qui se retrouvent en solution dans le bain liquide (Fig. II.31 a). L'une des conséquences de ces mouvements est l'apparition d'une stratification dans le liquide qui se présente sous la forme de couches de mêmes densités.

D'autres expérimentations ont également été menées par Quillet et al. [Qui03.1, Qui03.2] sur des alliages étain-bismuth. L'expérience développée est proche de celle de Hebditch [Heb73, Heb74]. La lingotière mesure 6 cm de large sur 5 cm de haut. Son épaisseur est de 1 cm. Un flux de chaleur en est extrait de manière régulière sur l'une de ses parois verticales, les autres étant adiabatiques. La densité du bismuth étant supérieure à celle de l'étain, on prévoit l'apparition de ségrégations sur la partie inférieure du lingot. Ces ségrégations apparaissent clairement lorsque l'on procède à une radiographie X (Fig. II.32 a). Cette radiographie met également en évidence la formation de freckles qui se présentent sous la forme de lignes blanches allongées. Ces freckles demeuraient invisibles dans les expériences d'Hebditch, peut être en raison d'une analyse trop grossière des concentrations, faite à l'échelle du centimètre.

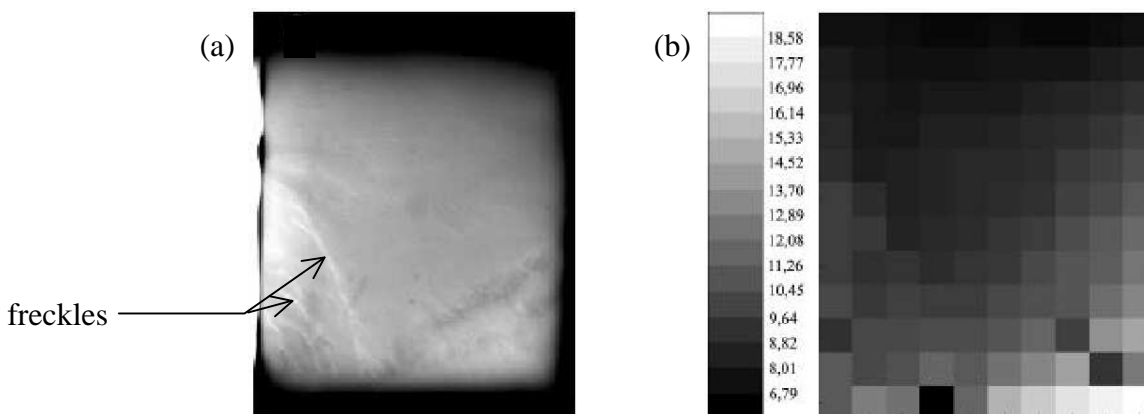


Fig. II.32 : a) Analyse aux rayons X d'un lingot d'alliage Sn-10%pbds Bi. Les lignes descendantes blanches qui apparaissent du côté solidifié initialement sont la marque de canaux fortement ségrégés correspondant aux freckles. b) Carte des compositions massiques moyennes mesurées par Quillet sur une grille de 10×12 éléments carrés, de côté 5 mm. Le lingot a pour dimension 5 cm×6 cm [Qui03.2].

#### II.4.2. Modélisation de la ségrégation

La modélisation de la ségrégation dans les lingots est typique d'une étude 'multi-échelles'. Le calcul des champs de composition peut se faire par l'utilisation d'équations moyennées macroscopiquement [Wan96.1, Wan96.2, Bec96, Ahm98, Jal00, Qui03.1] mais il nécessite de connaître également l'enrichissement du liquide en soluté à l'échelle microscopique, au cours de l'augmentation de la fraction solide. Dans ce but des équations de microségrégation ont été développées à l'échelle des bras secondaires des dendrites. Dans une première partie, nous nous intéresserons aux lois définissant cette microségrégation avant de discuter des approches macroscopiques de la ségrégation.

### II.4.2.a. Microségrégation

L'expression la plus simple de l'évolution de la fraction de solide en fonction de la composition en éléments d'alliage demeure la loi des leviers. Dans le cadre d'un système binaire, on considère que le composé diffuse parfaitement dans les phases en présence. Les profils de composition ont été présentés à la figure II.1 et la fraction de solide formée est alors donnée par l'équation II.1.

Par la suite, Gulliver et Scheil [Gul13, Sch42] ont développé un modèle de microségrégation dans lequel l'hypothèse de la diffusion du soluté dans la phase solide est négligée. La justification de cette non-diffusion est aisée en se référant aux temps caractéristiques de diffusion soit  $\lambda_2^2 / D_c^s$ , à l'échelle de l'espacement interdendritique secondaire,  $\lambda_2$ .

Si l'on considère un espacement interdendritique voisin de  $50 \mu\text{m}$  et un coefficient de diffusion chimique dans la phase solide compris entre  $10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  et  $10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , comme donné par Kurz [Kur92], on obtient un temps caractéristique compris entre 2500 s et 25000 s. Cette valeur, élevée à l'échelle du temps total de solidification d'un lingot, justifie que l'on ne puisse pas considérer une homogénéisation solutale complète à l'échelle microscopique. Ce raisonnement est valable pour la majorité des alliages métalliques à l'exception des alliages fer-carbone. Dans ce dernier cas, le coefficient de diffusion du carbone dans le fer étant élevé, de l'ordre de  $10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ , on obtient un temps caractéristique de 2,5 s. A cette échelle, la diffusion du carbone dans la phase solide peut être considérée comme parfaite. On se rapproche alors plus de l'hypothèse implicite faite pour l'application de la loi des leviers. De même, dans les alliages métalliques, le coefficient de diffusion dans la phase liquide est généralement compris entre  $10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  et  $10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  [Kur92], ce qui permet de faire l'hypothèse d'une phase liquide homogène en composition.

La relation de Gulliver-Scheil provient de l'écriture de l'équation de conservation en élément d'alliage à l'échelle d'un volume élémentaire fermé :

$$w^{s/l} \delta g^s + \delta(w^l g^l) = 0 \quad (\text{II.100})$$

où  $w^{s/l}$  représente la composition en élément d'alliage dans le solide à l'interface solide/liquide et  $w^l$  la composition de la phase liquide, supposée uniforme et en équilibre thermodynamique avec la phase solide à l'interface solide/liquide, soit  $w^{s/l} = k w^{l/s} = k w^l$  d'après l'équation II.2.

On obtient alors une expression de la fraction liquide en fonction de la composition, valable jusqu'à atteindre la composition eutectique  $w_E$  :

$$g^l = \left( \frac{w^l}{w_0} \right)^{\frac{1}{k-1}} \quad (\text{II.101})$$

Enfin, il est également possible de considérer une diffusion partielle du soluté dans la phase solide. Brody et Flemings [Bro66] et Clyne et Kurz [Cly81.1] proposent de considérer que la diffusion se fait sur une épaisseur caractéristique dans le solide considéré comme un système de longueur  $\delta$ . La loi de solidification en résultant s'écrit alors :

$$u g^s = 1 - \left( \frac{w^l}{w_0} \right)^{-\frac{u}{1-k}} \quad (\text{II.102})$$

avec  $u$  égal à  $1-2 \alpha' k$  où :

$$\alpha' = \alpha \left[ 1 - \exp\left(-\frac{1}{\alpha}\right) \right] - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{1}{2\alpha}\right) \quad (\text{II.103 a})$$

$$\alpha = \frac{D_c^s t_f}{\delta^2} \quad (\text{II.103 b})$$

avec  $t_f$  le temps local de solidification.

Combeau et al. [Com96] ont développé des modèles de microségrégation prenant également en compte le phénomène de rétrodiffusion du soluté dans la phase solide. Ils présentent l'avantage de s'appliquer aux systèmes ouverts. A partir de la résolution macroscopique des équations de conservation du soluté et de la chaleur, on déduit les variations de composition et d'enthalpie dans le volume considéré. Celles-ci permettent alors d'en déduire le nouveau profil de composition par une méthode de collocation et/ou de différences finies. La prévision des refusions et la transformation eutectique sont également considérées. Cette méthode nécessite de conserver plus d'informations au cours d'un calcul mais permet d'obtenir ainsi un historique de l'évolution solutale. Il est également possible d'aboutir à un profil de concentration non monotone.

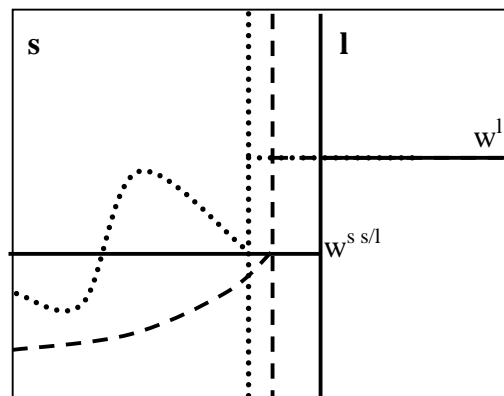


Fig. II.33 : Evolution de la concentration dans les phases solide (s) et liquide (l) pour une température donnée. Ligne continue : règle des leviers avec modèle de diffusion infini dans les deux phases. Ligne discontinue : relation de Gulliver-Scheil. La composition du solide augmente progressivement sans diffusion en retour dans le solide. Ligne pointillée : Méthode de collocation développée pour le calcul de la microségrégation par Combeau et al. [Com96].

## II.4.2.b. Macro-ségrégation

A une échelle macroscopique, une ségrégation apparaît également dans les lingots. Celle-ci est due à des phénomènes de diffusion solutale se déroulant à l'échelle du procédé et aux déplacements des grains équiaxes, provoquant notamment le cône de sédimentation décrit à la figure II.28 b). Cependant la principale origine de la macroségrégation réside dans la mise en mouvement du liquide permettant le transport des éléments d'alliage dans l'ensemble du lingot. Les raisons de cette mise en mouvement sont nombreuses :

➤ Phénomène de retrait : A l'exception de quelques corps aux propriétés physiques spécifiques (diamant, eau, semi-conducteurs ...), la transformation liquide  $\rightarrow$  solide s'accompagne toujours d'une augmentation de la masse volumique. En effet, la structure ordonnée de la matière en phase solide augmente sa compacité par rapport à son état en phase liquide. En conséquence, on observe à l'interface de solidification une brusque diminution du volume massique, de l'ordre de quelques pour-cents dans le cas des alliages métalliques. La conséquence principale de cette diminution, appelée 'retrait', est un apport de liquide vers le front qui cherche à combler les zones laissées vacantes par le liquide solidifié. Ce type de convection est responsable des ségrégations inverses observées en début de solidification sur les lingots métalliques.

Dans le cadre de leur modèle, Flemings et al. [Fle67, Fle68.1, Fle68.2] considèrent un petit élément de volume (Fig. II.34) parcouru par le liquide à une vitesse relative par rapport au solide  $v^{l-s}$ .

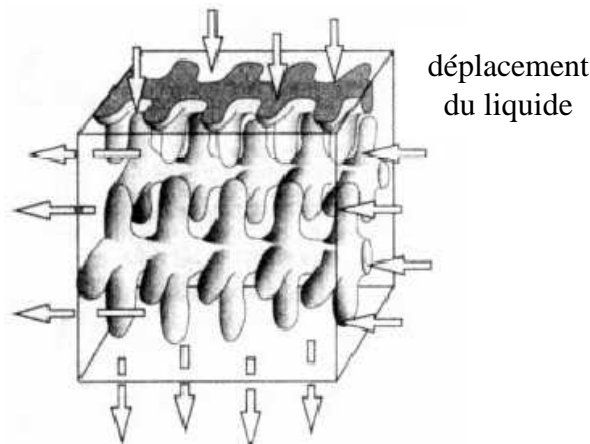


Fig II.34 : Schéma du réseau dendritique parcouru par le liquide [Bec00].

Sous l'hypothèse d'une diffusion solutale nulle dans la phase solide, les auteurs aboutissent à une expression liant la microségrégation à l'intensité du mouvement liquide :

$$\frac{\partial g^l}{\partial w^l} = - \left( \frac{1-\beta}{1-k} \right) \left[ 1 + \frac{v^{l-s} \cdot \nabla T}{\varepsilon} \right] \frac{g^l}{w^l} \quad (\text{II.104})$$

où  $\beta$  représente le retrait du à la transformation solide :  $\beta = 1 - \frac{\rho^l}{\rho^s}$  (II.105)

et  $\varepsilon$  la vitesse de refroidissement :  $\varepsilon = \frac{\partial T}{\partial t}$  (II.106)

Dans le cas où les deux valeurs  $\beta$  et  $v^{l-s}$  sont nulles, on est ramené aux conditions de Scheil et on retrouve l'équation différentielle définissant la relation de Gulliver-Scheil :

$$\frac{\partial g^l}{\partial w^l} = - \frac{1}{1-k} \frac{g^l}{w^l} \quad (\text{II.107})$$

En présence d'un retrait de solidification ( $\beta$  positif) et d'une vitesse de liquide nulle, la relation II.104 montre également qu'il existe une ségrégation positive. La ségrégation inverse observée en début de solidification (Fig. II.30) correspond à ce type de phénomène.

Enfin, dans le cas où la vitesse  $v^{l-s}$  a un sens contraire au gradient de température  $\nabla T$ , le terme  $v^{l-s} \cdot \nabla T$  serait négatif. Si ce produit est suffisamment important, la dérivée de la fraction de solide par rapport à la concentration de la phase liquide est positive. Un phénomène de refusion apparaît alors conduisant à un enrichissement du liquide en élément d'alliage. Ce phénomène explique la formation des canaux ségrévés précédemment décrits.

➤ Convection naturelle : La masse volumique du liquide évolue en fonction de la température ou de la composition. Ainsi, lors du refroidissement, le liquide se contracte. Un enrichissement en soluté permet également d'accroître ou de diminuer la masse volumique du liquide. Ces variations de la masse volumique sont caractérisées par les coefficients d'expansion thermique  $\beta_{th}$  et solutale  $\beta_c$  définis par les équations :

$$\beta_{th} = - \frac{1}{\rho^l} \frac{\partial \rho^l}{\partial T} \quad (\text{II.108})$$

$$\beta_c = - \frac{1}{\rho^l} \frac{\partial \rho^l}{\partial w^l} \quad (\text{II.109})$$

Les gradients de la masse volumique créent des mouvements convectifs en raison des différences dans la poussée d'Archimède qu'ils induisent. Néanmoins, le coefficient d'expansion solutal étant fréquemment plus de 10 fois plus élevé que le coefficient d'expansion thermique, la convection solutale est souvent prédominante, notamment dans les systèmes fortement alliés.

Jalanti [Jal00] utilise le modèle de Flemings et le développe afin de l'inclure dans son propre modèle de prédiction de la macroségrégation. Dans celui-ci une prise de moyenne est effectuée au niveau d'un volume élémentaire représentatif permettant l'écriture d'équations de conservation moyennées pour la masse, la chaleur, le soluté et la quantité de mouvement du liquide. La résolution de ces équations se fait par la méthode des éléments finis. Il en déduit l'évolution temporelle des champs de concentration, de température et de fraction de solide.

Ahmad et al. [Ahm98] ont présenté une comparaison des résultats obtenus avec les modèles développés par Jalanti [Jal00] et Combeau, dans le cas de l'utilisation d'une loi des leviers pour la macroségrégation. Cette comparaison se base sur les expériences de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] menées sur les alliages Pb-48%pds Sn et Sn-5%pds Pb. Les conditions thermiques expérimentales sont estimées à partir du temps total de solidification [Jal00]. Les

profils obtenus se révèlent similaires, validant les approches employées (Fig. II.35). De plus, la méthode en volumes finis prédit l'apparition de freckles sur le lingot de Sn-5%pds Pb.

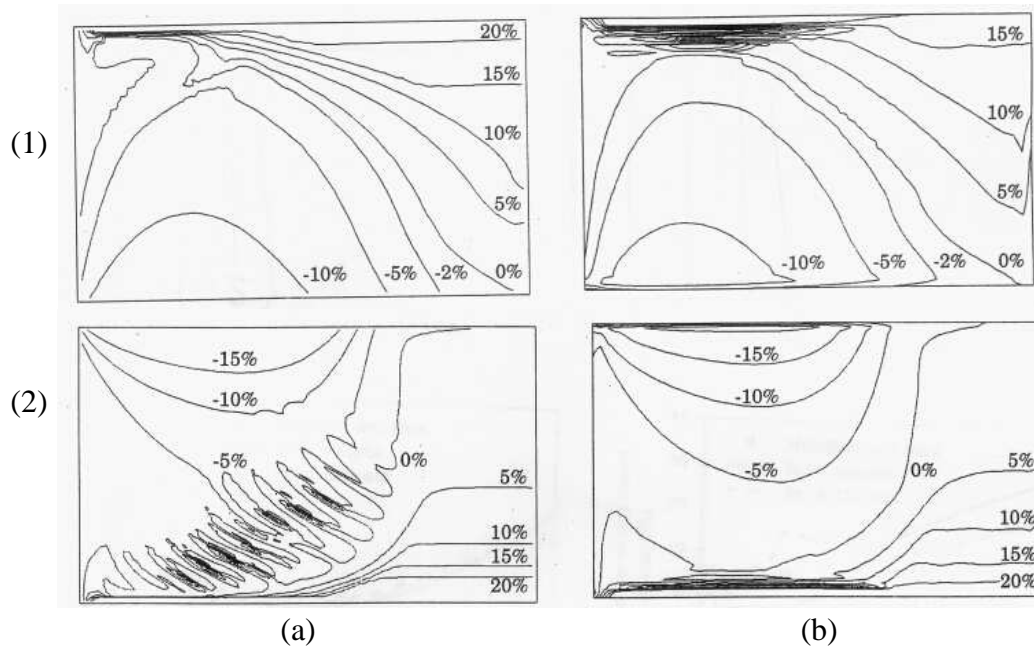


Fig. II.35 [Jal00]: Comparaison des profils de composition obtenus par la méthode des volumes finis (a) et des éléments finis (b). La simulation numérique a été réalisée pour des alliages de Pb-48%pds Sn (1) et Sn-5%pds Pb (2).

➤ Convection forcée : Il est possible d'appliquer des forces volumiques au liquide en cours de solidification, par exemple en imposant un champ magnétique. Les forces créées permettent le brassage du liquide et son homogénéisation. Une autre source de mouvements se trouve dans la chute des grains équiaxes qui provoquent la remontée du liquide à leur périphérie.

Ce mouvement de sédimentation des grains ainsi que les cartes de composition associées sont étudiées par Wang et Beckermann dans le cas de la solidification de deux alliages Al-4%pds Cu [Wan96.2] et  $\text{NH}_4\text{Cl}$ -70%pds  $\text{H}_2\text{O}$  [Bec96]. Pour cela, ils proposent de modéliser l'évolution des phases solide et liquide dans une approche eulérienne, développée en considérant les domaines solide et liquide interdendritique et extradendritique [Wan93]. Un système couplé d'équations moyennées de conservation de la masse, du soluté et de l'énergie est écrit pour chacune de ces phases. A ces équations se rajoutent deux équations de conservation de la quantité de mouvement faisant notamment intervenir la force de friction volumique  $\mathbf{M}$ , correspondant aux interactions interfaciales entre domaine liquide et solide. Une équation de bilan de soluté est également écrite entre les deux phases permettant de prendre en considération la vitesse de changement de phase. L'évolution de la solidification dans un lingot peut ainsi être simulée par la résolution simultanée de ce système pour les deux phases. Elle permet de mettre en évidence les causes des inhomogénéités de composition et de structures observées expérimentalement.

L'étude de la solidification d'un alliage Al-4%pds Cu [Wan96.2] montre, à solide fixe, la formation de canaux ségrégués positivement en bas de lingots et orientés de manière descendante. Ils correspondent à la formation de freckles, précédemment décrits, et schématisés à la figure

II.28 b) sous la forme des profils de ségrégation en A. Le sens de circulation direct du liquide, inverse de celui ayant conduit à la formation des ségrégations présentées à la figure II.28 b, en est à l'origine. Wang et Beckermann montrent que cette zone connaît simultanément une refusion du solide. Cependant ils considèrent que les études expérimentales sur la formation de ces canaux font défaut en raison de la difficulté à prédire leurs localisations, ce qui rend difficile toute comparaison expérimentale.

La prise en considération dans ce calcul du mouvement de la phase solide permet de réduire l'intensité de la macroségrégation prédite, les effets des mouvements des phases solide, pauvre en soluté, et liquide, riche en soluté, étant concurrents. Lorsque la densité de grains, initialement fixée à  $10^9 \text{ m}^{-3}$ , augmente pour atteindre  $10^{11} \text{ m}^{-3}$ , cette diminution de l'intensité de la ségrégation apparaît de manière plus évidente.

Les auteurs comparent également l'évolution des structures et des profils de températures entre l'expérience précédemment décrite au paragraphe II.3.2.a. sur l'alliage  $\text{NH}_4\text{Cl}$ -70%pds  $\text{H}_2\text{O}$  et les prédictions de leur modèle appliqué à cette expérience. Ils montrent la formation d'un 'lit' de grains équiaxes sédimentés, correspondant à l'arrêt des particules pour une fraction volumique locale de grains bloquante,  $g_a^b$ , précédemment fixée à 63,7 %. Pour un volume de référence  $V_0$ , le terme  $g_a^b$  se définit comme le rapport du volume total des grains,  $V_a$ , sur  $V_0$ . La structure fortement équiaxe des grains conduit à ce que leurs fractions volumiques de solide ne dépasse alors pas 5 %.

Il existe une différence évidente entre les évolutions temporelles prédites et mesurées de l'épaisseur de ce lit de grains. Cette différence est attribuée par les auteurs à la fragmentation des bras des dendrites durant les premiers instants de l'expérience. Ce processus conduit à la formation de germes de grains mais n'est pas notable lors des premiers instants de la solidification. Les simulations réalisées se basent sur l'hypothèse d'une densité de germination constante, de  $10^9 \text{ m}^{-3}$ , et sur l'apparition de grains sur les germes dès lors que la température de liquidus locale est atteinte. Cette comparaison montre la nécessité d'une modélisation fine du processus de fragmentation comme source de germes, ce qui était également une conclusion de l'étude menée sur l'alliage Al-4%pds Cu.

Les cartes de composition obtenues montrent une macroségrégation importante, expliquée par les boucles de convection dans le liquide et la sédimentation des grains. Ces grains se forment avec une composition pauvre en éléments d'alliage et sédimentent pour former un cône de sédimentation ségrégé négativement. Le liquide, enrichi en eau, remonte dans le bain liquide, enrichissant positivement la partie supérieure du lingot. Ces prédictions sont conformes aux observations générales faites sur les lingots industriels (Paragraphe II.4.1.a.).

Ludwig et Wu [Lud04] proposent un modèle de solidification des alliages basés sur la résolution simultanée d'un système d'équations couplées similaire à celui développé par Wang et Beckermann [Wan96.1], mais propres à la solidification des grains globulaires, ce qui évite l'étude de la morphologie des grains dendritiques. De manière similaire à Wang et Beckermann, ils proposent l'introduction dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement propre à la phase solide d'un terme de viscosité solide,  $\mu^s$ , devenant infini lorsque la fraction volumique de



grain,  $g_a^b$ , est atteinte. Le critère de blocage mécanique des grains correspond alors à avoir une fraction volumique de grain égale à  $g_a^b$ . Les surfusions de germination des grains sont données selon une loi gaussienne. A la différence des calculs de Wang et Beckermann [Wan96.2, Bec96], le retrait de solidification est considéré, les masses volumiques des deux phases étant prises différentes ( $\rho^s \neq \rho^l$ ) mais la convection thermosolutale est ignorée. Des conditions de non-glissement aux parois sont appliquées qui impliquent la formation d'une zone solide immobile aux premiers temps de calcul.

Les auteurs appliquent leur modèle à un alliage Al-4%pds Cu solidifié en lingotière, de manière similaire à celui étudié par Wang et Beckermann [Bec96]. La simulation en deux dimensions montre la formation d'une ségrégation négative en bas de lingot, due à l'accumulation des grains équiaxes. Simultanément cette sédimentation provoque une remontée du liquide et un enrichissement en soluté de la partie supérieure du lingot. Ces résultats sont identiques à ceux de Wang et Beckermann [Bec96]. Ludwig et Wu montrent ainsi le rôle important que joue le mouvement des grains dans l'évolution du champ de composition. Ils donnent trois origines à la formation de macroségrégation : la disparition des grains équiaxes et leur remplacement par un liquide enrichi, l'arrivée d'un liquide ségrégué positivement en raison du retrait de solidification et le mouvement du soluté induit par la sédimentation des grains.

Récemment, Krane [Kra04] a proposé de modéliser la solidification d'un alliage ternaire Pb-5%pds Sb-35%pds Sn à l'aide d'un système d'équation de conservation propres à une unique phase, mélange des phases solide et liquide. Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'enthalpie et du soluté sont ainsi résolues. L'intérêt de ce travail est l'étude de l'influence de la fraction volumique de grain bloquant la sédimentation des cristaux,  $g_a^b$ . Aux faibles valeurs de ce terme, l'influence de la sédimentation des cristaux sur la macroségrégation est faible, l'évolution de la composition dans le lingot étant peu importante. Ce paramètre  $g_a^b$  est ensuite augmenté jusqu'à atteindre une valeur de 0,6 qui est voisine de celle correspondant à un empilement de sphères ( $g_a^b = 0,637$ ). Des évolutions importantes de la composition en soluté apparaissent alors et les profils de composition de l'étain et de l'antimoine évoluent de manière importante autour de leurs valeurs moyennes. Cependant, les résultats expérimentaux se rapprochent des calculs menés aux faibles valeurs de  $g_a^b$ , ce qui incite Krane à considérer que le modèle d'empilement des sphères qui conduit à la valeur seuil de 63,7 % est incorrect pour modéliser l'empilement de grains équiaxes en fond de lingot.

### **III. Modèles microscopiques**

Nous venons d'étudier les différentes recherches qui ont été menées dans le but de comprendre et prévoir l'évolution de la solidification dans des lingots métalliques. Ces travaux permettent d'estimer les cinétiques de croissance des pointes de dendrites. Ils donnent également le moyen de connaître les évolutions des structures de solidification et de prévoir les champs de composition en résultant. Nous allons présenter maintenant notre travail basé sur un modèle s'appuyant sur la méthode des automates cellulaires et développé à l'aide de ces recherches. Afin d'introduire ce modèle, nous détaillerons d'abord l'utilisation que nous avons faite de la grille de cellules qui permet la représentation de la structure de grains. Nous présenterons ensuite les algorithmes de capture des cellules puis, nous expliquerons la manière dont nous avons cherché à modéliser les cinétiques gouvernant ces captures de cellules. Enfin nous détaillerons l'algorithme utilisé pour calculer les micro pas de temps.

#### **III.1. Présentation de la méthode des automates cellulaires**

La méthode de modélisation des structures granulaires développée dans ce travail a déjà fait l'objet de plusieurs présentations par Gandin et al. [Gan94, Gan95, Gan96.1, Gan97, Gan99, Tak00]. Ses points fondamentaux vont être rappelés ici.

##### **III.1.1. Approche stochastique de la modélisation**

Les structures granulaires se développant lors du refroidissement d'un lingot peuvent être considérées comme un ensemble de petits domaines pâteux ou solides connexes. Cette assimilation se fait, en deux dimensions, à l'aide d'une grille de cellules carrées, de longueur  $l_{CA}$ , recouvrant l'ensemble du domaine étudié. Les grains s'étant partiellement développés dans l'une de ces cellules en modifient l'état. La partie de la grille qui contient, au moins partiellement, du solide correspond alors aux cellules partageant ce même état. Une représentation de ce type de modélisation est donnée à la figure III.1. Les branches des grains dendritiques, dont le développement de l'interface  $s/l$  n'est pas directement simulé par le modèle, recouvrent progressivement des groupes de cellules voisines. C'est l'ensemble de ces cellules recouvertes qui permet de définir la forme du grain. On nomme 'pâteuses' les cellules partiellement solidifiées afin de les différencier des cellules 'liquides'. Cette discrétisation de l'espace en cellule trouve son origine dans les travaux de Von Neumann [Rap98] qui a développé ce type de modélisation afin de reproduire à l'échelle macroscopique des phénomènes complexes à partir d'un ensemble de règles définies à l'échelle microscopique.

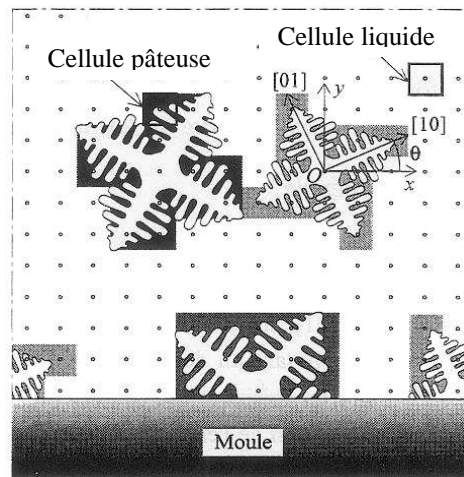


Fig. III.1: Représentation de grains dendritiques recouvrant partiellement un domaine initialement liquide. Seuls les centres des cellules sont représentés ici sous la forme de petits cercles vides. On définit deux types de cellules au cours du processus de solidification : les cellules ne contenant que du liquide ('Cellule liquide') et les cellules ayant quitté cet état en étant partiellement recouvertes par les branches dendritiques ('Cellule pâteuse') [Gan94].

Le modèle développé repose sur un ensemble de règles déterministes ce qui le différencie notablement de la majorité des autres méthodes de modélisation en automates cellulaires. Ces règles font changer l'état d'une cellule à partir de l'état de ses voisines ou en fonction de paramètres extérieurs, calculés à une échelle macroscopique. Les règles de transition sont généralement parfaitement connues. Seules subsistent des règles de transition stochastiques pour la description des phénomènes dont la physique est moins connue, telle la germination.

### III.1.2. Informations propres aux cellules

Le couplage développé entre la méthode en automates cellulaires (grille de cellules - CA) et la résolution macroscopique d'équations de conservation moyennées (maillage en éléments finis défini à partir de nœuds - FE) conduit à définir certains paramètres à ces deux échelles. Les informations contenues au niveau des cellules sont utilisées pour modifier celles existantes aux nœuds. Réciproquement, les paramètres connus aux nœuds nous permettent de faire évoluer ceux des cellules. Avant de détailler les principes de la méthode CA développée, il est nécessaire de préciser les informations propres à chaque cellule.

#### III.1.2.a. Position et interpolation

Le domaine se solidifiant est recouvert par un maillage en éléments finis auquel on superpose la grille de cellules. On définit alors pour chaque cellule  $v$  de centre  $C_v$ , de coordonnées  $(x_v, y_v)$ , son élément  $F_v$  d'appartenance (Fig. III.2). Certaines variables, connues au niveau des nœuds  $n$  qui entourent la cellule  $v$ , sont interpolées à l'aide des coefficients d'interpolation linéaires  $c_v^n$ . Les valeurs calculées au centre de la cellule  $v$  sont égales à la somme des produits des variables nodales par les coefficients d'interpolation respectifs de ces nœuds.

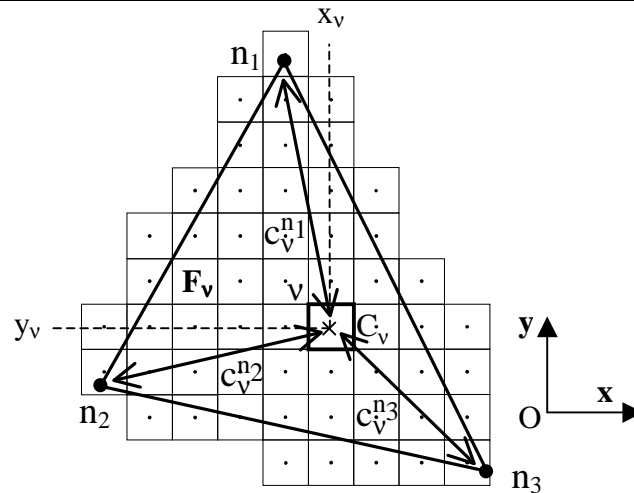


Fig. III.2: Schéma d'un élément triangulaire  $F_v$  de sommets  $n_1$ ,  $n_2$  et  $n_3$ . Le centre  $C_v$  de la cellule  $v$  a pour coordonnées  $(x_v, y_v)$ . Elle possède respectivement les coefficients d'interpolation  $c_v^{n1}$ ,  $c_v^{n2}$  et  $c_v^{n3}$  par rapport aux nœuds  $n_1$ ,  $n_2$  et  $n_3$ .

### III.1.2.b. Voisinage et croissance

En plus de ses coordonnées, chaque cellule  $v$  possède un numéro qui facilite son repérage et permet son ordonnancement. Par ce moyen, on repère, en deux dimensions, ses huit cellules voisines dont elle pourra modifier les états (Fig. III.3). Cet ensemble constitue son voisinage  $\{N_v\}$ .

Le développement du grain recouvrant la cellule se fait par l'intermédiaire d'une forme de croissance quadrilatérale centrée en un point  $G_v$  et dont les sommets  $S_v^{[ij]}$  (avec  $ij \in \{10, 01, \bar{1}0, 0\bar{1}\}$ ) représentent les 4 pointes de dendrites s'y trouvant. L'angle  $\theta_v$  entre la demi-diagonale  $G_v S_v^{[10]}$  et la direction  $Ox$  définit l'orientation cristallographique du grain se développant dans la cellule. Cette orientation est conservée durant la croissance. De plus, les déplacements des grains se limitent, dans notre modèle, à des mouvements de translation. Pour ces raisons, le quadrilatère a des diagonales perpendiculaires dont les angles d'orientation demeurent constants. Grâce à cette propriété, pour le définir, il suffit de connaître les longueurs des 4 demi-diagonales  $G_v S_v^{[ij]}$ .

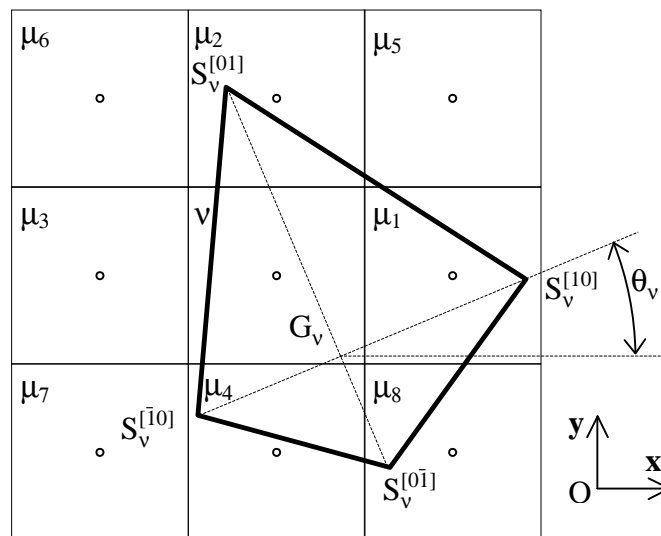


Fig. III.3: Schéma d'une cellule  $v$  entourée de ses 4 premières voisines,  $\mu_1$ ,  $\mu_2$ ,  $\mu_3$ ,  $\mu_4$  et 4 secondes voisines,  $\mu_5$ ,  $\mu_6$ ,  $\mu_7$ ,  $\mu_8$ . Une forme de croissance est associée à la cellule  $v$  sous l'aspect d'un quadrilatère de sommets  $S_v^{[10]}$ ,  $S_v^{[01]}$ ,  $S_v^{[0\bar{1}]}$ ,  $S_v^{[\bar{1}0]}$ , de centre  $G_v$  et d'orientation  $\theta_v$ . Le centre  $G_v$  est représenté dans  $v$  ce qui n'est pas toujours vérifié.

### III.1.2.c. Etat

Afin de caractériser le caractère ‘pâteux’ ou ‘liquide’ d’une cellule ainsi que l’avancement de sa croissance, deux indices lui sont attribués. Le premier est appelé ‘indice d’état’,  $I_v^S$ , et dépend de l’état des cellules voisines de la cellule  $v$ . Le second est nommé ‘indice de grain’,  $I_v^G$ , et dépend de la valeur de la fraction volumique de zone pâteuse de la cellule  $v$ ,  $g_v^m$ , grandeur représentant la fraction de la cellule  $v$  recouverte par le développement du domaine pâteux. Les valeurs possibles pour chacune de ces variables sont :

➤ **Pour  $I_v^S$  :**

$$I_v^S = 0 :$$

$v$  est non capturée, c’est à dire liquide

$$I_v^S = + 1 :$$

$v$  est capturée et possède au moins l’une de ses voisines  $\mu_i$  non capturée ( $\exists i \in [1,8] / I_{\mu_i}^S = 0$ )

$$I_v^S = - 1 :$$

$v$  est capturée et toutes ses voisines  $\mu_i$  le sont également ( $\forall i \in [1,8], I_{\mu_i}^S \neq 0$ )

➤ **Pour  $I_v^G$  :**

$$I_v^G = + 1 :$$

$v$  est capturée et sa fraction volumique de zone pâteuse,  $g_v^m$ , est strictement inférieure à 1 ( $g_v^m < 1$ )

$$I_v^G = - 1 :$$

$v$  est capturée et sa fraction volumique de zone pâteuse est égale à 1 ( $g_v^m = 1$ )

### III.1.2.d. Grandeurs caractéristiques

En plus des informations relatives à la position  $(x_v, y_v)$ , à l’interpolation  $(F_v, c_v^n)$ , au voisinage  $\{N_v\}$ , à la croissance  $(G_v, S_v^{[ij]})$  et à l’état  $(I_v^S, I_v^G)$ , il est nécessaire d’ajouter les grandeurs suivantes pour décrire la solidification d’une cellule  $v$  :

$H_v$ :	enthalpie volumique
$w_v$ :	composition massique moyenne
$w_v^l$ :	composition massique moyenne du liquide
$T_v$ :	température
$g_v^s$ :	fraction volumique de solide
$g_v^m$ :	fraction volumique de zone pâteuse
$g_v^{s,m}$ :	fraction de solide interne à la zone pâteuse
$\Delta T_v^{\text{capt}}$ :	surfusion de capture

La surfusion de capture d’une cellule,  $\Delta T_v^{\text{capt}}$ , correspond à la surfusion à laquelle le solide commence à s’y développer. Ce terme donne ainsi la valeur de la surfusion au front de solidification.

## III.2. Capture des cellules

La fraction de solide d'une cellule  $v$  devient non nulle dès lors qu'elle a été capturée et n'est plus liquide ( $I_v^S \neq 0$ ). Parallèlement, cet instant marque le début du développement de la zone pâteuse par l'avancée des quatre sommets des dendrites associées  $S_v^{[ij]}$  (avec  $ij \in \{10,01,\bar{1}0,\bar{0}\bar{1}\}$ ). Trois causes possibles sont à l'origine de ce processus de capture : la germination, la croissance et le déplacement d'un grain. Nous présenterons successivement la manière dont ont été modélisées ces phénomènes par la technique des automates cellulaires ainsi que l'initialisation des variables qui leurs sont associées.

### III.2.1. Germination

Certaines cellules sont considérées comme 'germantes'. Lorsque leur température décroît et devient suffisamment faible, elles ont la possibilité de donner naissance à un germe qui correspond à l'initialisation d'une forme de croissance. Pour que ce processus se déroule, trois conditions sont nécessaires qui correspondent à des tests successifs :

➤ **Cellule libre**

Un grain ne peut se former par germination que sur une cellule  $v$  qui n'est pas encore occupée par un autre grain. Il est donc nécessaire d'avoir  $I_v^S$  égal à 0.

➤ **Température de liquidus atteinte**

Une cellule  $v$  pourra contenir du solide si sa température,  $T_v$ , est inférieure à sa température de liquidus locale,  $T_L(w_v)$ . Cette condition revient à avoir :

$$T_v < T_M + m w_v \quad (\text{III.1})$$

Ce test est réalisé en considérant la relation suivante pour définir la température de la cellule :

$$H_v = C_p T_v + \Delta_s^l H_f \quad (\text{III.2})$$

où  $C_p$  est la capacité calorifique volumique de l'alliage, supposée identique dans les deux phases, et  $\Delta_s^l H_f$  l'enthalpie volumique de fusion. Ces deux grandeurs seront prises constantes, indépendantes de la température et de la composition.

Si le liquide est suffisamment enrichi pour approcher la composition eutectique, on doit également considérer que la fraction de solide pourra être positive, et la cellule germer, dès lors que :

$$T_v < T_E \quad (\text{III.3})$$

Il s'agit là d'une façon de traiter la solidification eutectique d'un liquide, sans prise en compte d'une éventuelle surfusion de transformation eutectique.

➤ **Surfusion de germination atteinte**

Le site de germination présent dans la cellule  $v$  peut former un germe lorsque sa surfusion  $\Delta T_v^{\text{germ}}$  est atteinte. On vérifie que la surfusion de la cellule  $v$  dépasse cette valeur seuil par :

$$T_L(w_v) - T_v^{\text{int}} > \Delta T_v^{\text{germ}} \quad (\text{III.4})$$

où  $T_v^{\text{int}}$  est la température de la cellule  $v$  interpolée à partir des nœuds définissant la maille  $F_v$ .

Lorsque ces trois conditions sont successivement remplies, un grain d'orientation  $\theta_v$  est créé, représenté par une forme de croissance carrée (Fig. III.4). L'angle  $\theta_v$ , choisi aléatoirement, correspond à l'orientation cristallographique du germe présent dans la cellule. Le centre de la forme de croissance  $G_v$  se confond avec le centre de la cellule,  $C_v$ . La longueur initiale  $G_v S_v^{[ij]}$  choisie identique pour les 4 demis-diagonales est prise égale à une très petite valeur de  $10^{-10}$  m, pour des raisons numériques. Les évolutions des sommets et du centre de la cellule  $v$  vont ensuite être simulées, permettant ainsi la capture des cellules voisines.

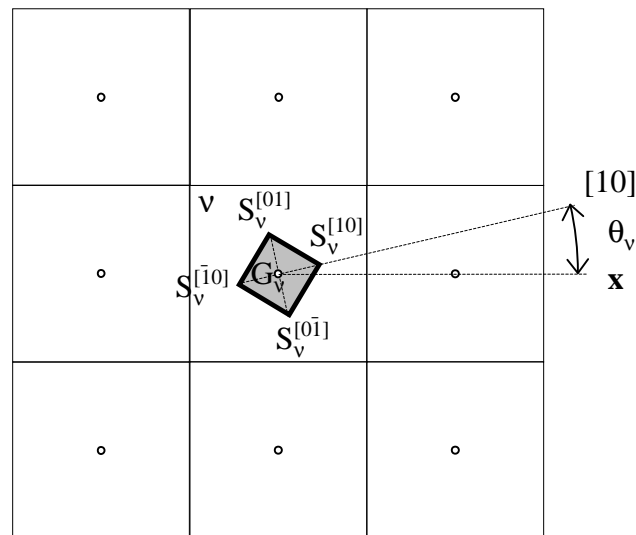


Fig. III.4 : Représentation, après germination, de la forme de croissance associée à la cellule  $v$  (trait épais). Elle se présente sous la forme d'un petit carré désorienté de l'angle  $\theta_v$  et centré sur le centre de la cellule ( $G_v$  et  $C_v$  se confondent).

## III.2.2. Croissance

Le développement d'une forme de croissance associée à la cellule  $v$  de centre  $G_v$  et de sommets  $S_v^{[ij]}$  ( $ij \in \{10,01,\bar{1}0,0\bar{1}\}$ ) lui permet de recouvrir les centres de ses cellules voisines  $\mu$ . Ceci est représenté sur la figure III.5. La face  $S_v^{[10]} S_v^{[01]}$  capture le point  $C_\mu$  lors de sa propagation. Si les deux premières conditions précitées sont vérifiées, c'est à dire si la cellule  $\mu$  est liquide ( $I_\mu^S = 0$ ) et si son enthalpie est suffisamment faible pour que la solidification soit possible ( $H_\mu < C_p (T_M + m w_\mu) + \Delta_s^1 H_f$ ), la cellule est capturée et devient 'pâteuse'. Elle poursuit à son tour son développement ce qui permet le passage à l'état 'pâteux' d'autres cellules voisines. Il est envisageable également que le centre  $C_\mu$  soit capturé par la forme de croissance d'une cellule voisine mais que la solidification soit néanmoins thermodynamiquement impossible ( $H_\mu > C_p (T_M + m w_\mu) + \Delta_s^1 H_f$ ). Dans un tel cas, qui reste exceptionnel, la cellule  $\mu$  n'est pas capturée.

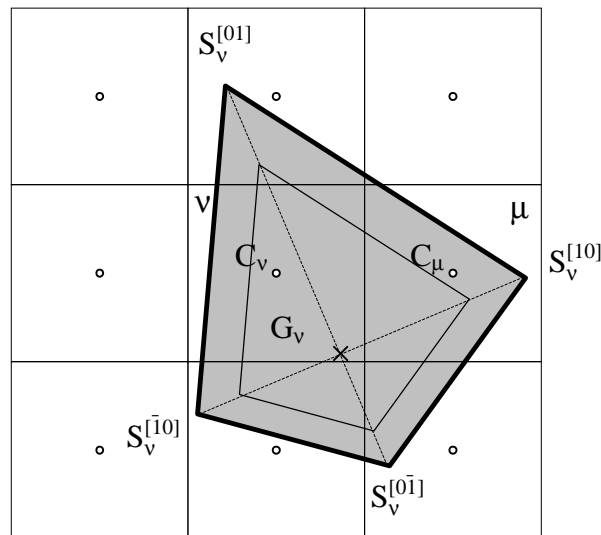


Fig. III.5 : Schéma de la forme de croissance associée à la cellule  $v$  de centre  $G_v$ . Initialement elle est représentée en trait fin, centrée sur  $G_v$ . Son développement la conduit à recouvrir le centre  $C_\mu$  de sa première cellule voisine  $\mu$ . ( $\mu$  correspond à  $\mu_1$  en se référant à la figure III.3).

La vérification 'visuelle' du dépassement du centre d'une cellule  $\mu$  par un des côtés de la forme de croissance d'une cellule  $v$  voisine est aisée. Mathématiquement, le test réalisé pour vérifier cette condition de capture géométrique passe par le parcours du centre  $C_\mu$  de chacune des cellules  $\mu$  voisines de la cellule  $v$ . Pour vérifier si la face  $S_v^{[10]} S_v^{[01]}$  permet au point  $C_\mu$  d'être capturé, les 3 produits vectoriels :  $C_\mu G_v \wedge C_\mu S_v^{[10]}$ ,  $C_\mu S_v^{[10]} \wedge C_\mu S_v^{[01]}$  et  $C_\mu S_v^{[01]} \wedge C_\mu G_v$  sont calculés et doivent tous pointer vers le même demi-espace. Si ce test est vérifié, on peut en conclure que le point  $C_\mu$  se trouve dans le triangle  $G_v S_v^{[10]} S_v^{[01]}$  et a donc été capturé par le côté  $S_v^{[10]} S_v^{[01]}$ . Si ce test n'est pas vérifié, le calcul est répété en considérant successivement les trois autres faces  $S_v^{[01]} S_v^{[10]}$ ,  $S_v^{[10]} S_v^{[0\bar{1}]}$  et  $S_v^{[0\bar{1}]} S_v^{[10]}$ . Si le test n'est pas vérifié pour chacun des quatre côtés considérés, la cellule voisine  $\mu$  n'a pas été capturée par la cellule  $v$ .



## III.2.2.a. Initialisation de la forme de croissance d'une cellule capturée

Le passage de l'état 'liquide' à 'pâteux' d'une cellule  $\mu$  qui vient d'être capturée par croissance de la cellule  $\nu$  s'accompagne de l'initialisation d'un certain nombre de paramètres. En parcourant l'ensemble des cellules voisines  $\mu$ , on cherche à savoir si l'une d'elles est encore liquide ( $I_\mu^S = 0$ ). Si le test est positif,  $I_\nu^S$  devient égal à +1, s'il est négatif  $I_\nu^S$  est égal à -1. Le même test est fait pour mettre à jour l'indice de croissance  $I_\mu^S$  de la cellule  $\mu$  qui vient d'être capturée par germination (paragraphe III.2.1.). En effet, il se peut que cette cellule soit entièrement entourée de cellules non liquides auquel cas  $I_\mu^S = -1$ . D'autre part, si la cellule  $\mu$  commence sa croissance, l'indice de grain  $I_\mu^G$  est égal à +1 à partir de cet instant. La forme de croissance, c'est à dire le polygone de sommets les points  $S_\mu^{[ij]}$ , est initialisée au même moment (Fig. III.6).

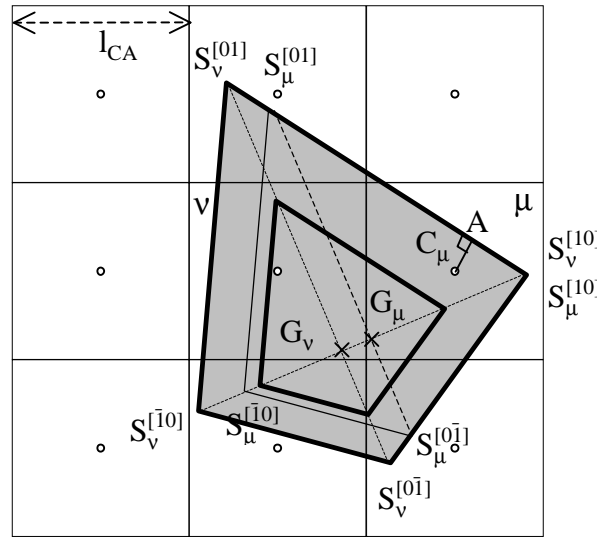


Fig. III.6 : Représentation de la forme de croissance associée à la cellule  $\nu$ , centrée en  $G_\nu$  (trait épais). Lorsque ses sommets atteignent les points  $S_\nu^{[10]}$ ,  $S_\nu^{[01]}$ ,  $S_\nu^{[10\bar{1}]}$  et  $S_\nu^{[01\bar{1}]}$ , elle dépasse le centre  $C_\mu$  de la cellule voisine  $\mu$ . Cette dernière est alors capturée et une forme de croissance représentée par le quadrilatère  $S_\mu^{[10]} S_\mu^{[01]} S_\mu^{[10\bar{1}]} S_\mu^{[01\bar{1}]}$  lui est associée. Une procédure spécifique est suivie pour déterminer la position de ces points.

Une procédure similaire à celle présentée en trois dimensions par Gandin [Gan99] est utilisée. Elle est schématisée sur la figure III.6. Le quadrilatère  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[01]} S_\nu^{[10\bar{1}]} S_\nu^{[01\bar{1}]}$  a capturé le centre  $C_\mu$ . On repère par la procédure décrite précédemment la face par laquelle cette capture a eu lieu. Dans le cas de la figure III.6, il s'agit de  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[01]}$ . Le point  $C_\mu$  est projeté sur le côté  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[01]}$  sous la forme du point A. Le sommet le plus proche de A est recherché en comparant les distances  $AS_\nu^{[10]}$  et  $AS_\nu^{[01]}$ . Le schéma III.6 montre qu'il s'agit de  $S_\nu^{[10]}$ . Les longueurs  $AS_\nu^{[10]}$  et  $AS_\nu^{[01]}$  sont alors tronquées à  $\sqrt{2} l_{CA}$ , où  $l_{CA}$  représente la dimension d'une cellule de la grille, pour calculer la longueur  $S_\mu^{[10]} S_\mu^{[01]}$  :

$$S_\mu^{[10]} S_\mu^{[01]} = \text{Min} [AS_\nu^{[10]}, \sqrt{2} l_{CA}] + \text{Min} [AS_\nu^{[01]}, \sqrt{2} l_{CA}] \quad (\text{III.5})$$

Cette procédure permet de limiter, au moins dans l'étape d'initialisation, la dimension des cotés de la forme de croissance à une valeur de  $2\sqrt{2} l_{CA}$  correspondant à la capture, par la cellule  $\mu$ , de l'ensemble de ses voisins dans le cas où le centre  $G_\mu$  de la forme de croissance se confondrait

avec  $C_\mu$ . Dans le cas plus général étudié ici, il limite la dimension des cotés de la forme de croissance et évite ainsi un accroissement continu de ces quatre longueurs qui pourraient être reportées de cellules en cellules par la procédure de capture.

Le rapport  $\lambda$  est calculé sous la forme :

$$\lambda = \frac{S_\mu^{[10]} S_\mu^{[01]}}{S_\nu^{[10]} S_\nu^{[01]}} \quad (\text{III.6})$$

Le point  $G_\mu$ , centre de la forme de croissance associée à la cellule  $\mu$ , est tel que :

$$G_\mu S_\nu^{[10]} = \lambda G_\nu S_\nu^{[10]} \quad (\text{III.7})$$

La relation III.5 permet également d'obtenir un ratio  $\lambda$  régulièrement inférieur à 1, par l'équation III.6. Ceci conduit à rapprocher le centre de croissance  $G_\mu$  d'une cellule  $\mu$  de son centre  $C_\mu$ . Dans le cas contraire, le ratio  $\lambda$  serait systématiquement égal à 1 et toutes les cellules d'un grain auraient une forme de croissance centrée au même point, le centre de la cellule germante ayant initié le grain, ceci apparaissant incorrect.

Afin de conserver l'orientation initiale du grain, les deux formes de croissance sont semblables et les faces définissant le sommet le plus proche de A sont juxtaposées. Pour cette raison le point  $S_\mu^{[10]}$  correspond au point  $S_\nu^{[10]}$ . Les deux sommets  $S_\mu^{[01]}$  et  $S_\mu^{[0\bar{1}]}$  se trouvent respectivement sur les cotés  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[01]}$  et  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[0\bar{1}]}$  et le sommet  $S_\mu^{[\bar{1}0]}$  sur la diagonale  $S_\nu^{[10]} S_\nu^{[\bar{1}0]}$ . Ces points vérifient les relations :

$$G_\mu S_\mu^{[01]} = \lambda G_\nu S_\nu^{[01]} \quad (\text{III.8 a})$$

$$G_\mu S_\mu^{[0\bar{1}]} = \lambda G_\nu S_\nu^{[0\bar{1}]} \quad (\text{III.8 b})$$

$$G_\mu S_\mu^{[\bar{1}0]} = \lambda G_\nu S_\nu^{[\bar{1}0]} \quad (\text{III.8 c})$$

La position de ces points permet de calculer les longueurs initiales des 4 demi-diagonales par :

$$G_\mu S_\mu^{[10]} = \| G_\mu S_\mu^{[10]} \| \quad (\text{III.9 a}) \quad G_\mu S_\mu^{[01]} = \| G_\mu S_\mu^{[01]} \| \quad (\text{III.9 b})$$

$$G_\mu S_\mu^{[\bar{1}0]} = \| G_\mu S_\mu^{[\bar{1}0]} \| \quad (\text{III.9 c}) \quad G_\mu S_\mu^{[0\bar{1}]} = \| G_\mu S_\mu^{[0\bar{1}]} \| \quad (\text{III.9 d})$$

Par des relations similaires à (III.7) et (III.9 a,b,c,d), on calcule également les valeurs des 4 demi-diagonales correspondant à l'instant exact de capture,  $G_\mu S_\mu^{[ij]} \text{capt}$  (Fig. III.7). Ces valeurs permettent de définir une forme de croissance initiale et de calculer son aire  $\mathcal{A}_\mu^{\text{capt}}$ . Si l'on considère que le développement du grain se poursuit de manière homothétique, c'est à dire que les 4 demi-diagonales ont des vitesses de croissance proportionnelles à leurs longueurs, laissant les normales des faces de croissance  $\langle 11 \rangle$  inchangées, il existe une forme de croissance maximale telle que les 8 cellules voisines de  $\mu$  soient capturées. A cette forme est associée une aire  $\mathcal{A}_\mu^{\text{max}}$  également calculée. A partir de l'aire courante de la forme de croissance,  $\mathcal{A}_\mu$ , ces termes permettent de définir une valeur de la fraction volumique de zone pâteuse associée à la cellule  $\mu$ ,  $g_\mu^m$  :

$$g_\mu^m = \text{Min} \left[ \frac{\mathcal{A}_\mu - \mathcal{A}_\mu^{\text{capt}}}{\mathcal{A}_\mu^{\text{max}} - \mathcal{A}_\mu^{\text{capt}}}, 1 \right] \quad (\text{III.10})$$

La phase solide présente dans une cellule est contenue dans le volume de la zone pâteuse. Ainsi, la fraction volumique de solide est le produit de la fraction de zone pâteuse  $g_\mu^m$  et d'une fraction volumique de solide interne à cette zone,  $g_\mu^{s,m}$  :

$$g_\mu^s = g_\mu^m g_\mu^{s,m} \quad (\text{III.11})$$

L'enthalpie volumique  $H_\mu$  et la composition massique moyenne de soluté  $w_\mu$  dans une cellule  $\mu$  ne sont pas modifiées par sa capture et constituent donc des variables connues, de même que la fraction volumique de zone pâteuse, déterminée par l'équation III.10. Les autres variables caractérisant l'état de la cellule  $\mu$  et présentées en III.1.2.d sont sa composition massique moyenne du liquide,  $w_\mu^l$ , sa température  $T_\mu$ , sa fraction volumique de solide  $g_\mu^s$  et sa fraction volumique de solide interne à la zone pâteuse  $g_\mu^{s,m}$ . Ces deux derniers termes sont reliés à  $g_\mu^m$  par l'équation III.11. La surfusion de capture  $\Delta T_\mu^{\text{capt}}$  a été déterminée lors de la modification de l'état de la cellule. Les quatre termes inconnus sont déterminés à l'aide de quatre équations. La première consiste en la loi de microségrégation qui fixe la relation existant entre  $T_\mu$ ,  $g_\mu^{s,m}$  et  $w_\mu^d$ , ce terme représentant la composition massique du liquide interdendritique, c'est à dire du liquide présent dans la zone pâteuse et en équilibre thermodynamique avec la phase solide.  $w_\mu^d$  se déduit de la lecture du diagramme de phase, la température  $T_\mu$  correspondant à la température de liquidus pour la composition  $w_\mu^d$  :

$$T_\mu = T_M + m w_\mu^d \quad (\text{III.12})$$

La seconde relation est l'équation de conservation de l'enthalpie qui lie l'enthalpie de la cellule à sa température et sa fraction volumique de liquide,  $g_\mu^l$ , par :

$$H_\mu = C_p T_\mu + \Delta_s H_f g_\mu^l \quad (\text{III.13})$$

où la fraction volumique de liquide  $g_\mu^l$  est telle que :

$$g_\mu^l + g_\mu^s = 1 \quad (\text{III.14})$$

La troisième relation est l'équation III.11 qui relie  $g_\mu^{s,m}$ ,  $g_\mu^s$  et  $g_\mu^m$ . Enfin, la composition moyenne dans le liquide,  $w_\mu^l$ , est calculée par l'équation de conservation de la masse totale de soluté :

$$w_\mu = g_\mu^m ( g_\mu^{s,m} w_\mu^s + g_\mu^{l,m} w_\mu^d ) + ( 1 - g_\mu^m ) w_\mu^f \quad (\text{III.15})$$

où  $w_\mu^s$  représente la composition moyenne en élément d'alliage dans la phase solide,  $g_\mu^{l,m}$  la fraction volumique de liquide interne à la zone pâteuse ( $g_\mu^{l,m} + g_\mu^{s,m} = 1$ ) et  $w_\mu^f$  la composition, supposée uniforme, du liquide extradendritique c'est à dire présent dans la cellule hors de la zone pâteuse. Ce calcul se base sur l'hypothèse que la cellule retrouve, hors du domaine pâteux, sa composition moyenne, ce qui correspond à égaliser les compositions massiques  $w_\mu^f$  et  $w_\mu$ .

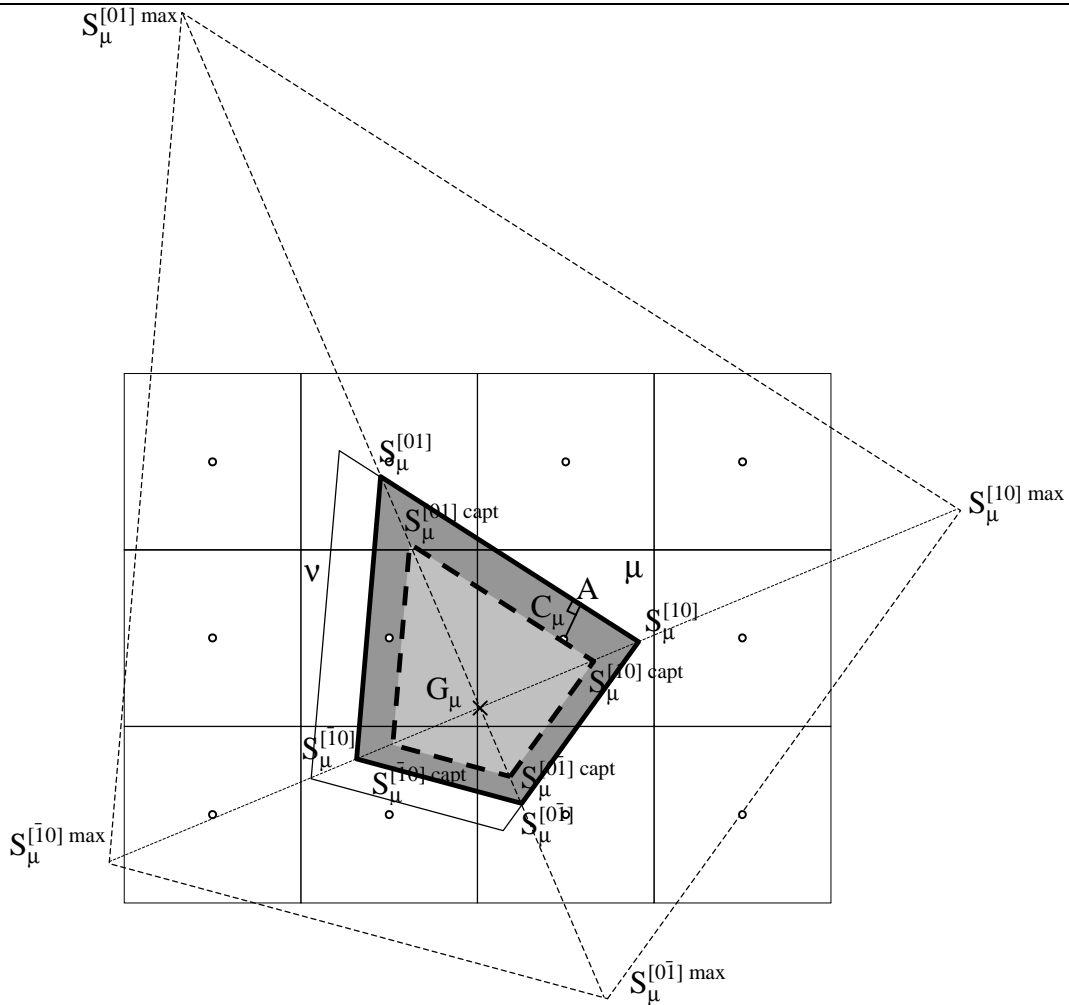


Fig. III.7 : La cellule  $\nu$  a capturé la cellule  $\mu$ . On définit pour cette dernière une forme de croissance initiale (trait plein épais et domaine grisé) centrée sur  $G_\mu$ . On précise parallèlement à ce calcul la forme de croissance initiale (traits pointillés épais, aire  $\mathcal{A}_\mu^{capt}$ , demi-diagonales  $G_\mu S_\mu^{[ij] capt}$ ,  $ij \in \{10, 01, \bar{1}0, 0\bar{1}\}$ ) et la forme de croissance maximale (traits pointillés fins, aire  $\mathcal{A}_\mu^{max}$ , demi-diagonales  $G_\mu S_\mu^{[ij] max}$ ,  $ij \in \{10, 01, \bar{1}0, 0\bar{1}\}$ ). Cette dernière est ici donnée par la forme homothétique à la forme de croissance, centrée en  $G_\mu$ , et qui capture la cellule voisine située en bas à droite. Les sept autres voisines ont alors également leur centre dans ce domaine. La dernière cellule à avoir été capturée et qui fixe les dimensions de la forme de croissance maximale est la cellule voisine située en bas à droite. Elle fixe la taille maximale attendue de la forme de croissance car il n'apparaît pas obligé qu'elle croisse au-delà.

### III.2.2.b. Modèle géométrique et validation

Dans notre modèle, la forme de croissance associée à une cellule croît en même temps que se développent les branches primaires. Une cinétique de croissance dendritique est appliquée à chacune des 4 demi-diagonales  $G_\nu S_\nu^{[ij]}$  qui permettent de représenter cette forme (Fig. III.5). Pour une cellule  $\nu$ , cette cinétique est fonction des conditions de croissance propres à chacun des 4 sommets de la forme de croissance. A un instant  $t$ , la longueur  $G_\nu S_\nu^{[ij]}$  de la demi-diagonale  $[ij]$  est donnée par intégration de la vitesse de croissance de cette pointe,  $v_p^{[ij]}$ , depuis l'instant  $t_0$  de naissance du bras dendritique jusqu'à  $t$ , additionnée à sa longueur initiale à  $t_0$  :

$$G_\nu S_\nu^{[ij]} = \int_{t_0}^t v_p^{[ij]}(t) dt + G_\nu S_\nu^{[ij]} \Big|_{t_0} \quad (\text{III.16})$$

Ce processus s'opère lors de chacun des pas de temps  $\delta t$  choisis pour la modélisation en CA du développement de la structure granulaire. Ainsi l'intégration correspond à la sommation durant l'intervalle de temps écoulé entre  $t$  et  $t + \delta t$  de la longueur  $\delta G_v S_v^{[ij]}$ , égale à  $v_p^{[ij]}(t) \delta t$ .

Dans le but de valider notre modèle de croissance, nous nous sommes intéressés à l'exemple simple d'un grain d'alliage Al-7%pds Si se développant dans un domaine rectangulaire de dimension  $2\text{ cm} \times 2\text{ cm}$  où le gradient thermique  $G_{th}$  est maintenu constant à  $250\text{ K m}^{-1}$  (Fig. III.8) et la vitesse de refroidissement  $\dot{T}$  fixée à  $0,1\text{ K s}^{-1}$ . Une seule cellule germante a été placée au centre du domaine, avec une surfusion de germination fixée à  $2\text{ }^\circ\text{C}$  et une orientation cristallographique de  $20^\circ$ . La taille des cellules est de  $50\text{ }\mu\text{m}$ . La croissance se réalise en présence de convection, le liquide étant mis en mouvement avec la vitesse  $\mathbf{u}^l$ , constante, égale à  $0,5\text{ m s}^{-1}$  (Fig. III.8). Afin de modéliser la croissance, nous avons repris, dans ce cas particulier, le modèle développé par Takatani et al. [Tak00]. La vitesse de développement d'une pointe de dendrite est donnée par la loi suivante, obtenue par corrélation :

$$v_p(\Delta T, \mathbf{u}^l) = A \Delta T^2 \left( 1 + k_a \tanh(k_b u^l) [\varepsilon - \cos(\alpha)] \right) \quad (\text{III.17})$$

où la constante  $A$  est égale à  $10^{-4}\text{ m s}^{-1}\text{ K}^{-2}$ , les termes  $k_a$  et  $k_b$  à  $0,5$  et  $5$  et le coefficient  $\varepsilon$  à  $0,2$ .  $\alpha$  correspond à l'angle entre le vecteur  $\mathbf{u}^l$  et l'axe dendritique  $[ij]$  pour lequel  $v_p^{[ij]}(t)$  est calculé.

Sous ces conditions de développement, l'évolution d'une forme de croissance associée à une cellule  $v$  est schématisée sur la figure III.8. L'arrivée du liquide sur la pointe  $S_v^{[10]}$  constitue une condition favorable permettant à la pointe de progresser plus rapidement et déformant d'autant la forme de croissance. A l'inverse, la pointe  $S_v^{[01]}$  est lente à croître. A une échelle spatiale supérieure, on observe la croissance d'un grain déformé, développé préférentiellement vers la partie gauche du domaine.

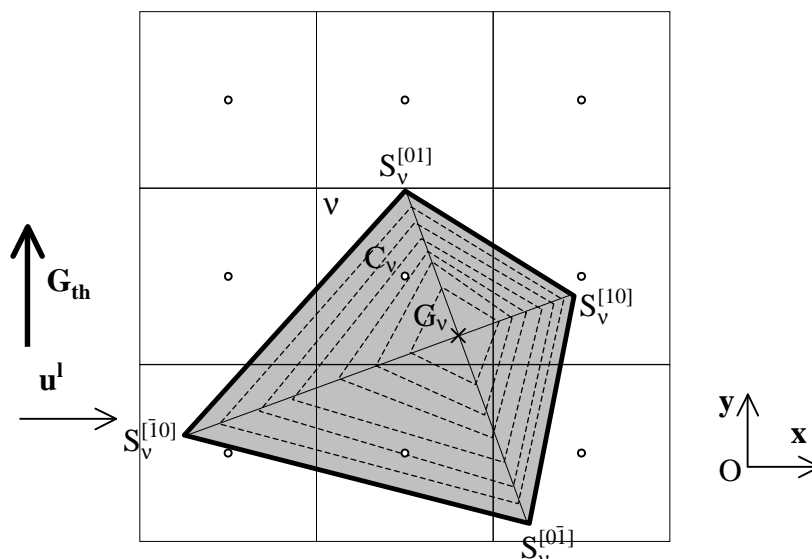


Fig. III.8 : Evolution schématique au cours du temps de la forme de croissance d'une cellule  $v$ . Les différentes formes sont représentées en traits pointillés jusqu'à atteindre, au temps courant, le contour représenté en trait plein. Le profil déformé des formes de croissance s'explique par le sens du mouvement du fluide représenté par le vecteur  $\mathbf{u}^l$ .  $G_{th}$  indique la direction du gradient thermique.

La donnée conjointe d'un algorithme de croissance et d'un algorithme de capture de cellules permet d'étudier le développement du grain formé par le recouvrement progressif de cellules voisines. Nous avons représenté la forme granulaire finale, obtenue à l'aide notre modèle, après sept secondes de croissance, à la figure III.9.

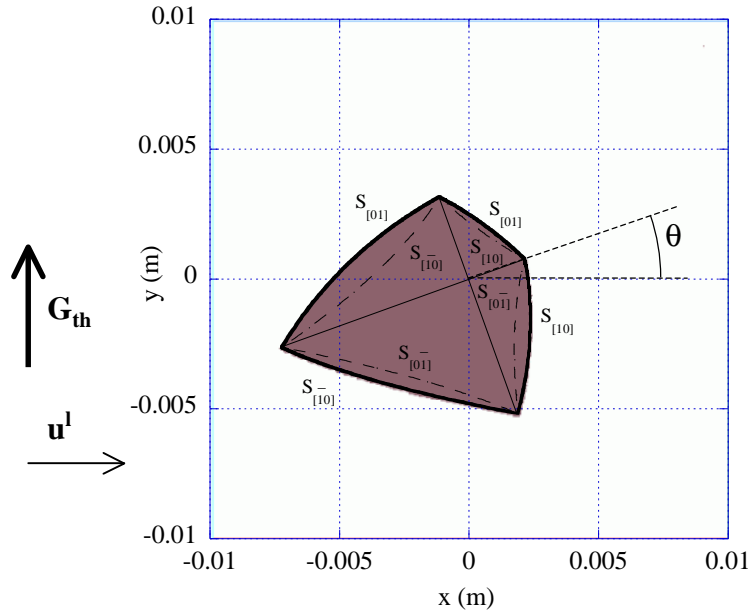


Fig. III.9 : Grain d'alliage aluminium-silicium après 7 s de croissance. Le gradient thermique est représenté par la flèche épaisse ( $G_{th} = 250 \text{ K m}^{-1}$ ), les isothermes horizontales se déplacent à  $400 \mu\text{m s}^{-1}$  ( $\dot{T} = 0.1 \text{ K.s}^{-1}$ ) et la surfusion de germination du grain est prise égale à  $2^\circ\text{C}$ . L'orientation cristallographique du grain est de  $20^\circ$ . Les traits pointillés et épais continus représentent les positions extrêmes des sommets des branches dendritiques, calculées analytiquement. Les axes du grain sont les deux lignes dessinées en trait fin.

Les 4 principales branches  $[10]$ ,  $[01]$ ,  $[\bar{1}0]$ ,  $[0\bar{1}]$  représentées en traits continus fins se développent les premières en début de croissance et constituent les branches primaires. Les déstabilisations qui apparaissent sur celles-ci donnent ensuite naissance à des branches secondaires. On a représenté, sur la figure III.9, 8 contours (traits épais continus et traits fins pointillés) correspondant aux positions extrêmes des sommets de ces branches secondaires. Celles-ci ont été calculées à partir des solutions analytiques développées par Gandin et al. [Gan96.1] et Takatani et al. [Tak00] pour des conditions de croissance identiques aux nôtres. Ainsi dans le premier quadrant (en haut, à droite), la courbe en trait plein montre les positions des pointes des axes  $[01]$  apparues après la croissance de la branche primaire  $[10]$  puis, consécutivement, sur celle-ci, des branches secondaires  $[01]$ . À l'inverse la courbe en traits pointillés correspond à la croissance de la branche primaire  $[01]$  puis des branches secondaires  $[10]$ . Ces deux courbes montrent deux positions possibles de la frontière du grain dans ce quadrant. Cependant, les branches  $[10]$ , en rencontrant des températures plus faibles, se développent plus rapidement en début de solidification que les branches  $[01]$  et empêchent le développement de ces dernières. Les branches secondaires  $[10]$  qui ont crû à partir des branches primaires  $[01]$  sont en retrait par rapport aux branches secondaires  $[01]$  apparues sur les branches primaires  $[10]$ . Ainsi, la courbe

extérieure (trait épais continu) représente le contour théorique du grain dans ce quadrant. Les mêmes raisons expliquent que dans les second, troisième et quatrième quadrants, les pointes  $S_v^{[01]}$ ,  $S_v^{[\bar{1}0]}$  et  $S_v^{[10]}$  désignent également la périphérie du grain.

La forme granulaire calculée, représentée en grisé, est parfaitement entourée par les courbes extérieures données par la résolution analytique de Gandin et al. [Gan96.1] et Takatani et al. [Tak00]. Pour ces conditions simples de solidification, les modèles de croissance et de capture choisis sont validés algorithmiquement par l'approche théorique.

### III.2.3. Déplacement

Le modèle de déplacement que nous proposons reprend et développe le travail de Jalanti [Jal96] et Gandin et al. [Gan98]. Nous avons considéré que deux grains en contact, c'est-à-dire qu'au moins une des cellules d'un de ces grains a pour premier voisin une cellule de l'autre grain, sont attachés. Ils constituent alors un ensemble solidaire, dénommé 'amas', dont tous les grains partagent la même vitesse de déplacement,  $\mathbf{v}_a$ . Le calcul de cette vitesse de déplacement est alors celui de la vitesse d'un tel amas. L'amas se présente sous la forme d'un attachement de grains voisins eux-mêmes modélisés par l'ensemble des cellules qui les composent (Fig. III.10).

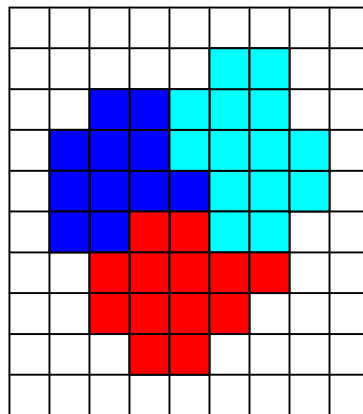


Fig. III.10 : Amas formé par la réunion de 3 grains et représenté par l'ensemble des cellules recouvertes par les grains qui le composent.

Le calcul de la vitesse  $\mathbf{v}_a$  d'un amas de grains à un instant  $t$  permet de prédire sa trajectoire. Durant l'intervalle de temps  $\delta t$ , il se déplace du vecteur  $\mathbf{v}_a \times \delta t$ . Le caractère discret de la modélisation par la méthode des automates cellulaires empêche d'opérer un mouvement de l'information des cellules à chaque pas de temps de calcul. Le déplacement se réalise par l'utilisation d'un vecteur  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$ , propre à chaque amas et que l'on incrémente continûment. Si l'amas est composé d'un seul grain, le vecteur a été initialisé à  $\mathbf{0}$  lors de la germination de ce grain. Si l'amas est le résultat de la rencontre de plusieurs amas et/ou grains, le vecteur est initialisé proportionnellement à la taille des amas. Ainsi, si un amas  $a_1$ , composé de  $N_{a_1}$  cellules, possède un vecteur déplacement  $\mathbf{u}_{a_1}^{\text{dépl}}$  et recouvre une cellule liquide voisine d'un autre amas  $a_2$ ,

composé de  $N_{a_2}$  cellules, on considère que ces deux amas s'attachent pour former un unique amas  $a_{1+2}$ . Le nouvel amas est formé de  $N_{a_1} + N_{a_2}$  cellules. Si  $\mathbf{u}_{a_2}^{\text{dépl}}$  est le vecteur déplacement de  $a_2$ , la valeur initiale de  $\mathbf{u}_{a_{1+2}}^{\text{dépl}}$  est :

$$\mathbf{u}_{a_{1+2}}^{\text{dépl}} = \frac{N_{a_1} \mathbf{u}_{a_1}^{\text{dépl}} + N_{a_2} \mathbf{u}_{a_2}^{\text{dépl}}}{N_{a_1} + N_{a_2}} \quad (\text{III.18})$$

L'utilisation du vecteur  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$  permet d'opérer un mouvement des cellules recouvertes par l'amas selon un principe de 'seuil'. Sur la figure III.11 nous avons représenté cet algorithme dans un cas simple. On considère un amas,  $a$ , composé d'un unique grain,  $g$ , lui-même recouvrant une unique cellule  $v$ . Le vecteur déplacement  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$  est initialement nul.

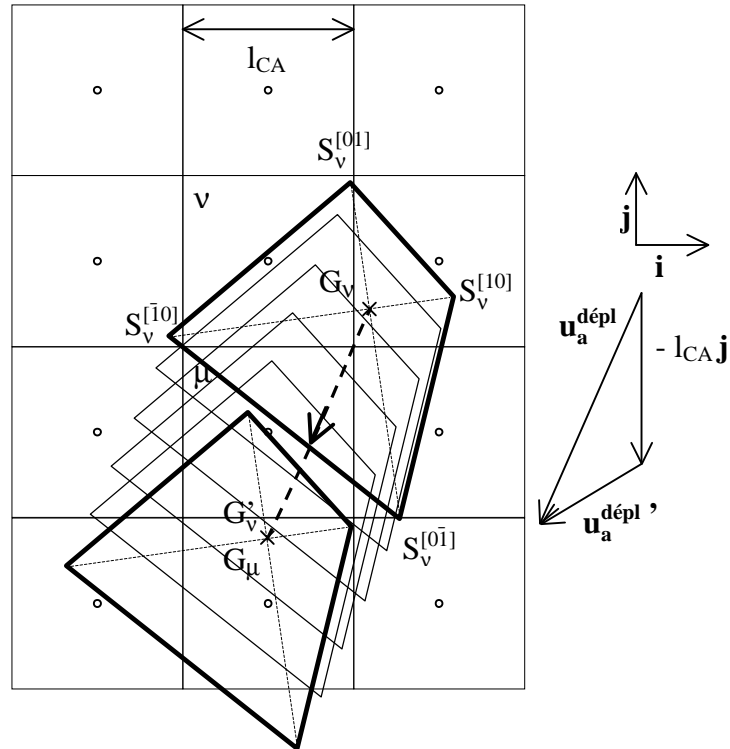


Fig. III.11 : Mouvement de la forme de croissance associée à la cellule  $v$ . Cette forme est représentée à l'instant initial par le quadrilatère en trait plein (partie supérieure). Son déplacement est montré par les différentes positions occupées au cours d'instant successifs (quadrilatères en trait fin). Après 5 mouvements, on aboutit à une forme de croissance dessinée en trait plein dans la partie inférieure. Aucune croissance simultanée du grain n'est considérée dans ce schéma.

La forme de croissance associée à cette cellule est représentée, au début du mouvement, sous la forme du quadrilatère supérieur, en trait épais. La vitesse  $\mathbf{v}_a$  calculée aux divers instants entraîne son déplacement vers la partie basse gauche du domaine. De  $G_v$ , le centre de croissance de la cellule  $v$  est déplacé au bout de 5 pas de temps en  $G'_v$ . La forme de croissance est alors représentée en trait plein en bas du schéma.  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$  évolue simultanément de  $\mathbf{0}$  à la valeur du vecteur  $\mathbf{G}_v \mathbf{G}'_v$ . A cet instant, une des composantes de ce vecteur dépasse la longueur d'une cellule. En effet, la composante selon  $\mathbf{j}$  de  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$  est négative et de valeur absolue supérieure à  $l_{CA}$ , la longueur d'une cellule ( $|\mathbf{u}_a^{\text{dépl}} \cdot \mathbf{j}| > l_{CA}$ ). On considère alors que la cellule recouverte par le grain  $g$  n'est plus  $v$  mais  $\mu$ , sa voisine inférieure. L'ensemble des informations propres à la cellule  $v$  et détaillées au



paragraphe III.1.2 deviennent alors propriétés de  $\mu$ . Le vecteur déplacement de l'amas est diminué de  $(-l_{CA} \mathbf{j})$  et devient égal à  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$ . Dans le cas d'un dépassement de la composante horizontale, les informations sont transportées dans la cellule voisine correspondante. Après déplacement, l'aire maximale de la forme de croissance,  $\mathcal{A}_v^{\text{max}}$ , est recalculée afin de tenir compte de la nouvelle position du centre de croissance.

Généralement un amas est composé de plusieurs grains, eux-mêmes recouvrant un grand nombre de cellules. Le vecteur  $\mathbf{u}_a^{\text{dépl}}$  croît en même temps que sont déplacées, de manière identique, les formes de croissance de toutes ses cellules. Lorsque l'une des composantes de ce vecteur dépasse la valeur limite  $l_{CA}$ , l'ensemble des informations des cellules est déplacé. Ce mouvement en bloc est schématisé sur la figure III.12. Les propriétés des cellules se retrouvent, non modifiées, dans leurs voisines inférieures (flèches verticales descendantes égales au vecteur  $-l_{CA} \mathbf{j}$ ). On considère que l'amas recouvre alors ces dernières. Une difficulté se pose en ce qui concerne le transport des informations des cellules liquides devenant solides (les 6 cellules marquées d'une croix sur la figure III.12 a) et des cellules solides redevant liquides (les 6 cellules marquées d'une croix sur la figure III.12 b). Dans le but de conserver l'énergie, la masse et la quantité de soluté totale au cours de cet échange, on transporte, par un mouvement ascendant, les informations des cellules initialement liquides dans les cellules redevant liquides (flèches ascendantes sur les côtés du schéma).

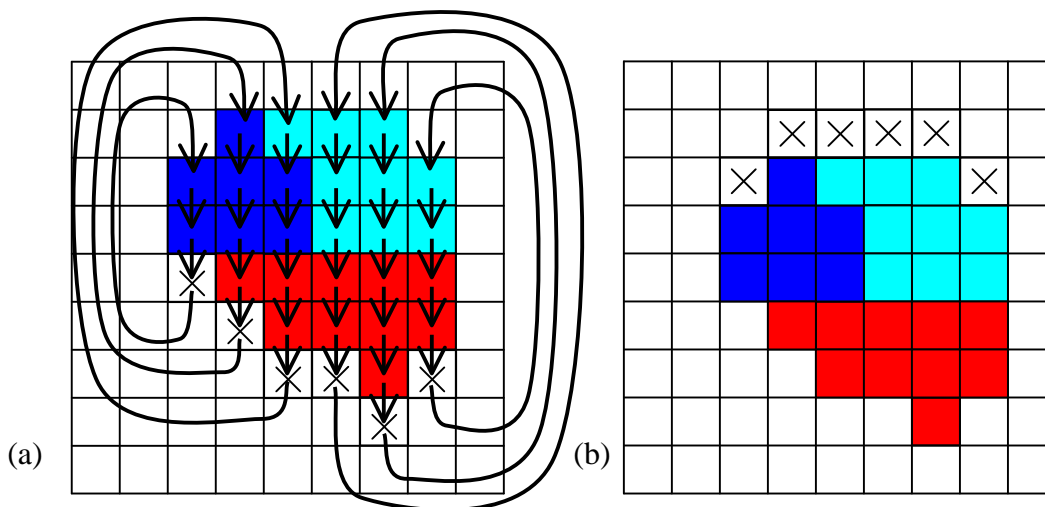


Fig. III.12 : a) Déplacement simultané des cellules d'un amas. Ce dernier est déplacé vers le bas de la longueur d'une cellule. L'information de l'ensemble des cellules recouvertes est déplacée d'une ligne et se retrouve dans les cellules voisines inférieures. Les flèches représentent le transport des informations. b) Positions finales des cellules après déplacement. Les informations des cellules liquides capturées par le déplacement descendant de l'amas (cellules X en a) ont été transférées aux cellules libérées situées au dessus du grain (cellules X en b).

### III.3. Cinétiques de capture des cellules

Nous venons de présenter les algorithmes qui permettent de modéliser la capture des cellules par germination ou croissance ainsi que ceux relatifs aux déplacements des amas. L'utilisation de ces modèles s'appuie sur des lois physiques qui permettent le calcul des cinétiques de capture des cellules par germination ou croissance des grains ainsi que par le déplacement des amas. Nous allons présenter ici ces différentes cinétiques de capture. Dans une première partie, nous détaillerons les cinétiques de germination utilisées. Nous présenterons ensuite le calcul des cinétiques de croissance des pointes des dendrites. Enfin, nous exposerons la résolution que nous avons faite du bilan des forces à l'échelle des amas et qui permet le calcul de leur vitesse de déplacement,  $v_a$ .

#### III.3.1. Germination

Dans un liquide en surfusion, deux types de germination hétérogène sont discernables : la germination surfacique, sur les parois du moule, et la germination volumique, sans connexion avec le moule. Les parois de la lingotière présentent des zones facilitant l'apparition de germes (anfractuosités, défauts de surface, oxydes ...). De même dans le volume liquide des particules favorisent la formation de grains (inoculants, impuretés ...). Afin de modéliser cette germination, nous avons repris le modèle développé par Thévoz [Thé88] et utilisé par Gandin [Gan95] en considérant une distribution gaussienne de la densité de germes formés en fonction de la surfusion.

On considère qu'un nombre fixé de sites de germination sont présents initialement en surface et en volume et qu'ils sont donnés respectivement par les densités maximales surfacique  $n_{\text{surf}}^{\text{max}}$  et volumique  $n_{\text{vol}}^{\text{max}}$ . Le déclenchement brusque de ces sites se fait avec des surfusions moyennes égales à  $\Delta T_{\text{surf}}^{\mu}$  et  $\Delta T_{\text{vol}}^{\mu}$  et des écarts-types valant  $\Delta T_{\text{surf}}^{\sigma}$  et  $\Delta T_{\text{vol}}^{\sigma}$ . Il est à noter qu'une approche expérimentale est nécessaire pour déterminer la valeur des triplets ( $n^{\text{max}}$ ,  $\Delta T^{\mu}$ ,  $\Delta T^{\sigma}$ ) (. = surf ou . = vol) à utiliser pour un alliage donné. Sous ces hypothèses, le nombre de germes, par unité de surface ou de volume,  $n$ , formés à une surfusion  $\Delta T$  est égal à :

$$\text{En surface : } n_{\text{surf}}(\Delta T) = \int_0^{\Delta T} \frac{dn_{\text{surf}}}{d\Delta T^{\#}} d\Delta T^{\#} = \int_0^{\Delta T} \frac{n_{\text{surf}}^{\text{max}}}{\Delta T_{\text{surf}}^{\sigma} \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta T^{\#} - \Delta T_{\text{surf}}^{\mu}}{\Delta T_{\text{surf}}^{\sigma}}\right)^2\right] d\Delta T^{\#} \quad (\text{III.19})$$

$$\text{En volume : } n_{\text{vol}}(\Delta T) = \int_0^{\Delta T} \frac{dn_{\text{vol}}}{d\Delta T^{\#}} d\Delta T^{\#} = \int_0^{\Delta T} \frac{n_{\text{vol}}^{\text{max}}}{\Delta T_{\text{vol}}^{\sigma} \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\Delta T^{\#} - \Delta T_{\text{vol}}^{\mu}}{\Delta T_{\text{vol}}^{\sigma}}\right)^2\right] d\Delta T^{\#} \quad (\text{III.20})$$

Le modèle en deux dimensions modifie la valeur du paramètre  $n_{\cdot}^{\max}$  pour des raisons stéréologiques. La densité maximale de germes apparaissant dans ce cadre sur la modélisation 1D que nous faisons des surfaces est donnée par  $n_{\text{surf}}^{\max}$  et celle apparaissant sur la modélisation 2D du volume liquide par  $n_{\text{vol}}^{\max}$ . Ces valeurs sont reliées à  $n_{\text{surf}}^{\max}$  et  $n_{\text{vol}}^{\max}$  par les relations stéréologiques [Und70] suivantes :

$$n_{\text{surf}}^{\max} = \left[ \frac{4}{\pi} n_{\text{surf}}^{\max} \right]^{1/2} \quad (\text{III.21})$$

$$n_{\text{vol}}^{\max} = \left[ \frac{6}{\pi} n_{\text{vol}}^{\max 2} \right]^{1/3} \quad (\text{III.22})$$

Dans le cadre de notre travail, il est nécessaire de passer de cette modélisation continue de la germination à une approche discrète. Le caractère germant n'est plus local mais correspond toujours à au moins une cellule. Les relations (III.19, III.21), d'une part, et (III.20, III.22), d'autre part, permettent de choisir, au début de la simulation, un ensemble de cellules germantes en contact avec la surface de la lingotière et dans le volume liquide. Pour réaliser cette initialisation, on parcourt, par des incréments de surfusion  $\delta(\Delta T)$  faibles, un domaine suffisamment important autour des deux surfusions moyennes  $\Delta T_{\text{surf}}^{\mu}$  et  $\Delta T_{\text{vol}}^{\mu}$ . Le produit de l'intégrale de la densité de germination considérée (III.19 ou III.20) entre  $\Delta T^{\#}$  et  $\Delta T^{\#} + \delta(\Delta T)$  par la longueur de surface ou le volume du domaine donne un nombre de germes. On choisit ensuite des cellules de manière aléatoire parmi l'ensemble des cellules correspondantes en surface ou en volume. Sur chacune d'elles, une valeur de surfusion de germination  $\Delta T_v^{\text{germ}}$  est fixée, égale à  $\Delta T^{\#}$ . Une orientation cristallographique d'angle  $\theta_v$  choisie aléatoirement parmi 45 valeurs régulièrement espacées de  $2^\circ$  dans l'intervalle  $[-44^\circ, +44^\circ]$  lui est attribuée. Cette valeur correspond à l'orientation de la branche [10] (Fig. III.3) qui fait un angle avec l'horizontale compris entre  $-45^\circ$  et  $+45^\circ$ .

Après cette étape d'initialisation, chaque cellule  $v$  possédant un caractère germant est repérée par un couple de valeurs  $(\Delta T_v^{\text{germ}}, \theta_v)$ . Le choix aléatoire des cellules conduit à ce que plusieurs d'entre-elles possèdent ce caractère germant pour différents couples de valeurs. Dans ce cas, seule la plus faible valeur de ces surfusions et l'angle correspondant seront conservés.

### III.3.2. Croissance

Selon les hypothèses posées préalablement, différentes lois de croissance sont applicables à la pointe d'une dendrite. Elles consistent à relier la valeur de la vitesse de croissance aux paramètres propres à la cellule. Dans notre travail, nous avons posé deux simplifications :

$$\Rightarrow \text{Absence de surfusion cinétique : } \Delta T_K = \frac{v_p}{\mu_0} = 0 \quad (\text{III.23})$$

$$\Rightarrow \text{Absence de surfusion thermique : } \Delta T_{\text{th}} = T^{s/l} - T^{l\infty} = 0 \quad (\text{III.24})$$

Sous ces conditions, la force motrice de croissance de la pointe se limite à la surfusion chimique à laquelle s'ajoute la surfusion de courbure. La surfusion totale  $\Delta T_T$ , que nous noterons par la suite  $\Delta T$ , s'exprime alors sous la forme :

$$\Delta T = \Delta T_c + \Delta T_\kappa \quad (\text{III.25})$$

avec pour valeur de la surfusion chimique :

$$\Delta T_c = m w^{1\infty} \frac{(1-k) \Omega_c}{(1-k) \Omega_c - 1} \quad (\text{III.26})$$

où la sursaturation est donnée à :

$$\Omega_c = \frac{w^{1s/l} - w^{1\infty}}{w^{1s/l} (1-k)} \quad (\text{III.27})$$

et pour valeur de la surfusion de courbure :

$$\Delta T_\kappa = \frac{2 \Gamma}{r_p} \quad (\text{III.28})$$

La composition moyenne en élément d'alliage loin de la pointe de la dendrite,  $w^{1\infty}$ , est prise égale à la composition moyenne de la cellule  $w_v$ . En effet, au regard de la faible valeur du rayon de courbure de la pointe,  $r_p$ , de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ , on suppose que la diffusion solutale se déroule sur une distance de l'ordre de la dizaine de microns. En dehors de cette zone, on rejoint la composition à l'infini,  $w^{1\infty}$ . La cellule ayant une dimension de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$ , supérieure à la distance de diffusion, on suppose que la majorité du domaine liquide qu'elle contient est à cette composition de  $w^{1\infty}$ . Pour cette raison,  $w^{1\infty}$  sera supposée égale à  $w_v$  dans l'équation II.22. La surfusion totale est égale à la différence entre la température déduite de la composition  $w_v$  et la température interpolée au niveau des nœuds :

$$\Delta T = T_L(w_v) - T_v^{\text{int}} \quad (\text{III.29})$$

Il s'agit de la même expression que celle définissant la surfusion de capture  $\Delta T_v^{\text{capt}}$ .

La relation supplémentaire reliant  $v_p$  et  $r_p$  est le critère de stabilité marginale (II.54) dans lequel la longueur de capillarité  $l_c$  est donnée par la relation II.53. La constante de stabilité est prise voisine de celle correspondant à la déstabilisation du front plan (II.47).

En régime de diffusion pure, il suffit alors d'ajouter l'équation II.21 reliant la sursaturation  $\Omega_c$  au produit  $r_p v_p$  pour calculer la vitesse de croissance (et le rayon de courbure) de la pointe d'une dendrite croissant dans un liquide de surfusion  $\Delta T = T_L(w_v) - T_v^{\text{int}}$ . Ainsi, avec les égalités supplémentaires  $w^{s/l} = k w^{1s/l}$ ,  $w^{1\infty} = w_v$  et  $T_v^{\text{int}} = T_M + m w^{1s/l}$ , les relations II.21, II.53, II.54, II.47, II.22, III.25, III.28 et III.25 forment un système de huit équations à huit inconnues dont la solution peut être déterminée de manière unique. On connaît alors la valeur des termes  $l_c$ ,  $\Delta T_\kappa$ ,  $\Delta T_c$ ,  $\Delta T$ ,  $r_p$ ,  $v_p$ ,  $\sigma^*$  et  $\Omega_c$ .

Pour tenir compte de l'effet de la convection sur la cinétique, il faut modifier la solution d'Ivantsov comme présenté au chapitre II.2.2.b. Un défaut majeur des solutions exactes données par Ananth et Gill [Ana91] sur la valeur de la sursaturation en présence de convection (Eq. II.59, II.60, II.61) est leur limitation à un écoulement opposé à la direction de croissance de la pointe de la dendrite. Le fluide arrive rarement dans cette direction. Il présente une déviation qui modifie fortement le transport du soluté. Cette déviation est mesurée par l'angle  $\phi^{[ij]}$ , pris entre 0 et  $2\pi$ , qui est défini entre la direction de croissance  $[ij]$  de la dendrite et le vecteur vitesse du fluide,  $\mathbf{u}^{l\infty}$ , pris à l'infini (Fig. III.13).

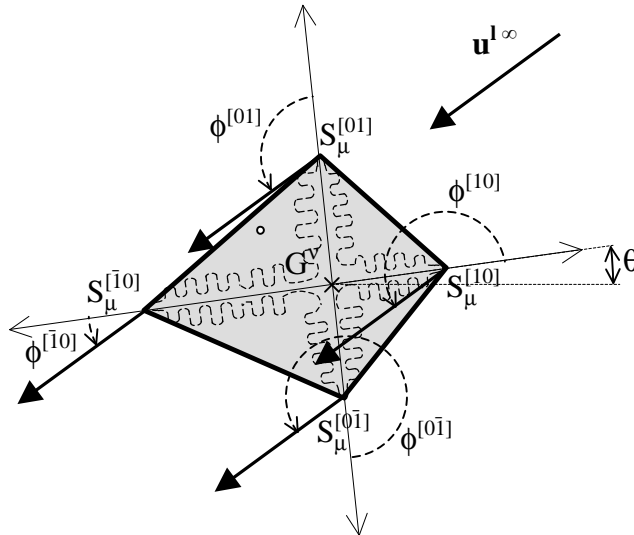


Fig. III.13 : Grain dendritique d'orientation cristallographique  $\theta$ . Le fluide, de vecteur vitesse loin du grain  $\mathbf{u}^{l\infty}$ , fait respectivement les angles  $\phi^{[ij]}$ ,  $ij \in \{10,01,\bar{1}0,0\bar{1}\}$ , avec les directions  $\langle 10 \rangle$ .

L'équation II.64 a été développée dans le cas d'un transport de la chaleur par la convection naturelle. L'épaisseur de la couche limite de diffusion thermique,  $\delta_{th}$ , s'exprime en fonction du nombre de Rayleigh,  $Ra$ . Les phénomènes de diffusion solutale et thermique obéissant à des équations de conservation similaires, il est possible de reprendre ce travail dans le cas de la diffusion solutale. Une couche limite d'épaisseur  $\delta_c$  est présente devant la pointe. Dans celle-ci le transport du soluté s'opère par diffusion. A l'extérieur de cette couche, la composition en soluté est fixée par les phénomènes convectifs. Nous avons généralisé l'approche de Sekerka et al. [Sek95] au cas où la vitesse de fluide  $\mathbf{u}^{l\infty}$  est connue afin d'estimer la valeur de la sursaturation à partir de la connaissance de  $\delta_c$ . Par ailleurs, cette approche permet de tenir compte de l'angle  $\phi$  sous la forme d'une augmentation de l'épaisseur de la couche limite solutale  $\delta_c$ . La valeur de la sursaturation s'exprime dans ce modèle sous la forme :

$$\Omega_c = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1\left( Pe_v \left( 1 + \frac{\delta_c}{2 r_p} \right) \right) \right] \quad (III.30)$$

avec  $\delta_c$  fonction décroissante de l'angle  $\phi$ .

## III.3.2.a. Méthode en couche limite

L'expression de la sursaturation de Ananth et Gill [Ana91], selon l'approximation de Stokes, présente l'intérêt d'avoir été déduite d'une solution exacte au problème d'écoulement du fluide autour d'un paraboloïde de révolution schématisant la dendrite. Pour tout triplet  $(Pe_v, Pe_u, Sc)$ , il existe donc une valeur d'épaisseur  $\delta_c$  permettant à l'expression III.30 d'égaliser la valeur de la sursaturation donnée par une extension de II.59 au cas de la diffusion solutale :

$$\Omega_c = 2 Pe_v \int_1^{\infty} \exp\left(-\ln \eta + (1-\eta^2) Pe_v - \frac{2 Pe_u}{E_1(Re)} [1-\eta^2+(1+\eta^2) \ln \eta]\right) d\eta \quad (III.31)$$

où le nombre de Reynolds  $Re$  vaut :

$$Re = \frac{Pe_v + Pe_u}{Sc} \quad (III.32)$$

Nous avons choisi de considérer la solution de Stokes (II.59) comme donnant, dans le cadre de notre travail, la valeur de la sursaturation chimique, en régime de convection, lorsque le fluide arrive frontalement à la pointe d'une dendrite. D'une part, cette solution présente l'intérêt d'être plus aisément calculable que la solution plus complexe donnée dans l'approximation d'Oseen (II.60). D'autre part, Appolaire [App99.2] a montré la similarité des résultats obtenus avec ces deux approximations dans le cas des nombres de Péclet hydrodynamique,  $Pe_u$ , inférieurs à l'unité.

La valeur du terme  $\delta_c$  calculée en égalisant les expressions III.30 et III.31 correspond à l'épaisseur de la couche limite solutale,  $\delta_c^\pi$ , présente au front de la dendrite pour un écoulement axial du liquide, soit à  $\phi = \pi$ .

D'autre part, l'expression de l'évolution de  $\delta_c$  par Sekerka et al. [Sek95], déduite par approximation des calculs de Merks et Prins [Mer54], reste valable. L'épaisseur de la couche limite solutale pour un angle  $\phi$  quelconque, à  $Pe_v$ ,  $Pe_u$  et  $Sc$  fixés, peut être calculée en posant l'égalité des sursaturations données par III.30 et III.31. L'épaisseur de la couche limite solutale déduite,  $\delta_c^\pi$ , permet ensuite d'obtenir  $\delta_c$ , pour un angle  $\phi$  donné, sous la forme :

$$\delta_c = \frac{\delta_c^\pi}{\sin\left(\frac{\phi}{2}\right)} \quad (III.33)$$

Il convient de fixer une expression générale pour  $\delta_c$ . Dans ce but, on approxime la pointe dendritique sous la forme d'une sphère de rayon  $r_p$ . On cherche alors à déterminer de manière approchée la valeur de l'épaisseur d'une couche limite solutale autour de cette géométrie en fonction de l'angle  $\phi$  (Fig. III.14).

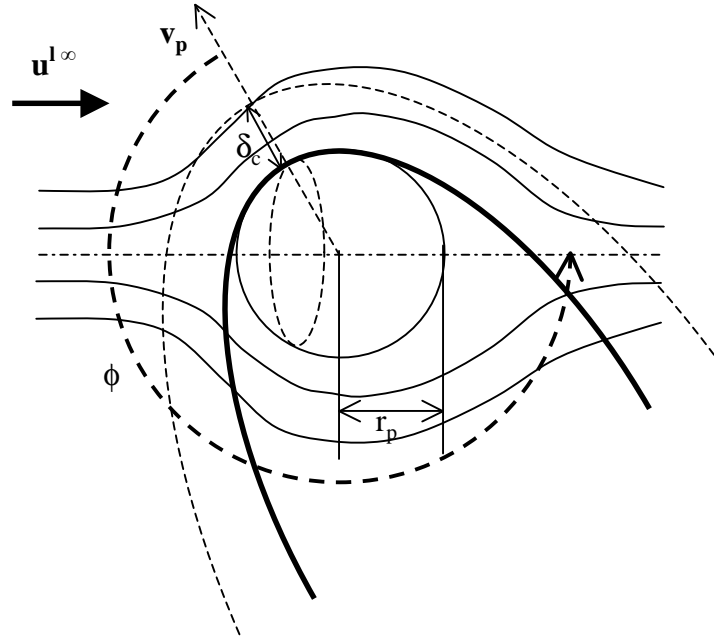


Fig. III.14 : Représentation des lignes de courant (traits pleins) autour de la pointe dendritique (trait pleins épais). Le liquide arrive selon l'angle  $\phi$  (traits épais pointillés), compris entre 0 et  $2\pi$ , avec la vitesse relative par rapport au grain,  $u^{l\infty}$ . La couche limite solutale qui se forme (traits pointillés) a une épaisseur  $\delta_c$  au sommet de la pointe. On l'estime en assimilant cette pointe à une sphère (cercle en trait plein) de rayon  $r_p$ .

Poirier et Geiger [Poi94] relie  $\delta_c$  au nombre de Sherwood,  $Sh_{2r_p}$ , relatif au diamètre de la sphère, d'une manière similaire à Sekerka et al. [Sek95] :

$$\delta_c = \frac{2 r_p}{Sh_{2r_p} - 2} \quad (\text{III.34})$$

La corrélation présentée par Poirier et Geiger [Poi94] sur  $Sh_{2r_p}$  s'exprime sous la forme :

$$Sh_{2r_p} = 2 + 0,66 Re_{2r_p}^{1/2} Sc^{1/3} \quad (\text{III.35})$$

Le nombre de Reynolds relatif au diamètre de la sphère vaut :

$$Re_{2r_p} = \frac{2 r_p u^{l\infty}}{v^l} \quad (\text{III.36})$$

Poirier indique cependant que ces paramètres ne sont pas valables dans le cas des métaux liquides.

L'introduction de l'angle  $\phi$  par Sekerka et al. [Sek95] modifie cette expression sous la forme :

$$Sh_{2r_p} = 2 + D_1 Re_{2r_p}^{D_2} Sc^{D_3} F(\phi) \quad (\text{III.37})$$

où la fonction  $F$  permet de tenir compte de l'accroissement du transfert de soluté avec l'augmentation de  $\phi$ . Dans l'approximation de Sekerka et al. [Sek95], elle est égale à :

$$F(\phi) = 1,22 \sin\left(\frac{\phi}{2}\right) \quad (\text{III.38})$$

Les relations III.30-37 permettent d'exprimer la sursaturation chimique  $\Omega_c$  sous la forme :

$$\Omega_c = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1 \left( Pe_v \left( 1 + \frac{4}{D_1 Re_2 r_p^{D_2} Sc^{D_3} \sin\left(\frac{\phi}{2}\right)} \right) \right) \right] \quad (III.39)$$

De l'expression III.36, on déduit l'expression du nombre de Reynolds :

$$Re_2 r_p = \frac{4 Pe_u}{Sc} \quad (III.40)$$

où le nombre de Péclet hydrodynamique  $Pe_u$  fait référence à la vitesse relative d'avancée du liquide,  $u^{l\infty}$ , par rapport au grain qui porte la dendrite. La relation III.39 s'écrit alors :

$$\Omega_c = Pe_v \exp(Pe_v) \left[ E_1(Pe_v) - E_1 \left( Pe_v \left( 1 + \frac{4}{D_1 4^{D_2} Pe_u^{D_2} Sc^{D_3-D_2} \sin\left(\frac{\phi}{2}\right)} \right) \right) \right] \quad (III.41)$$

Nous avons préalablement recherché un domaine de variation des 3 nombres adimensionnels  $Pe_v$ ,  $Pe_u$  et  $Sc$  propres au phénomène de croissance des dendrites en présence de convection. Eu égard aux valeurs du rayon de courbure, de la vitesse de la pointe dendritique et de la vitesse du liquide, il a été décidé de prendre :

$$Pe_v \in [10^{-4}, 10] \quad (III.42)$$

$$Pe_u \in [10^{-2}, 10] \quad (III.43)$$

$$Sc \in [50, 500] \quad (III.44)$$

Dans ce domaine d'étude, les coefficients  $D_1$ ,  $D_2$  et  $D_3$  de (III.41) permettant d'approcher au mieux l'expression d'Ananth et Gill (III.31) dans le cas  $\phi = \pi$  doivent être trouvés par la méthode des moindres carrés appliquée à un ensemble de valeurs du triplet  $(Pe_v, Pe_u, Sc)$  régulièrement espacées. Il s'agit de minimiser le terme  $\chi$ , fonction de  $D_1$ ,  $D_2$  et  $D_3$  défini par :

$$\chi = \sum_{k=1}^N \left( \frac{\Omega_{c k}^{AG} - \Omega_{c k}^{CP}}{\Omega_{c k}^{AG}} \right)^2 \quad (III.45)$$

$\Omega_{c k}^{AG}$  fait référence à l'expression de Ananth et Gill (III.31) et  $\Omega_{c k}^{CP}$  à la corrélation que nous proposons (III.41). L'indice  $k$  parcourt l'ensemble des  $N$  triplets de valeurs  $(Pe_v, Pe_u, Sc)_k$  préalablement choisies. Ces valeurs évoluent entre les extrémités des domaines, sous la forme d'une progression géométrique de pas constant égal à  $10^{-1/64}$ . Un total de  $321 \times 193 \times 65$  triplets a été ainsi défini. L'algorithme de minimisation utilisé est celui développé par Levenberg et Marquardt [Mar63] tel que nous l'avons trouvé détaillé [Pre86].



Les valeurs permettant à  $\chi$  d'être minimal sont :

$$D_1 = 0,5773 \quad (\text{III.46 a})$$

$$D_2 = 0,6596 \quad (\text{III.46 b})$$

$$D_3 = 0,5249 \quad (\text{III.46 c})$$

Un bilan de ces résultats est présenté au tableau III.1. La corrélation développée accroît notablement la précision du calcul comparativement aux expressions de Wang et Beckermann [Wan96.1] ou Poirier et Geiger [Poi94]. La moyenne des écarts relatifs diminue d'un facteur 5 par rapport aux précédents travaux. La dispersion des résultats autour de la valeur théorique est également atténuée. On montre que l'écart maximum qui atteignait 46,7 % avec la corrélation de Wang et Beckermann [Wan96.1] (Eq. II.70) et 48,4 % avec celle de Poirier et Geiger [Poi94] (Eq. III.35) chute à moins de 10 %. Nous avons ainsi un outil pour estimer rapidement l'épaisseur de la couche limite solutale à la pointe de la dendrite et la sursaturation en résultant sans qu'il soit nécessaire de calculer l'intégrale proposée par Ananth et Gill [Ana91].

	$ \Delta\Omega/\Omega ^\mu$ (%)	$ \Delta\Omega/\Omega ^\sigma$ (%)	$ \Delta\Omega/\Omega ^{\max}$ (%)	$Pe_v^{\max}$ (-)	$Pe_u^{\max}$ (-)	$Sc^{\max}$ (-)
Wang et Beckermann [Wan96.1]	10,2	12,6	46,7	$10^{-4}$	10	500
Poirier et Geiger [Poi94]	9,2	13,9	48,4	$10^{-4}$	10	50
Corrélation proposée [Gan03]	1,9	2,5	8,3	$10^{-4}$	0,01	50

Tab. III.1 : Ecarts mesurés sur les sursaturations entre la solution d'Ananth et Gill [Ana91] et les corrélations proposées par Wang et Beckermann [Wan96.1], Poirier et Geiger [Poi94] et celle présentée ici [Gan03].  $|\Delta\Omega/\Omega|^\mu$  représente l'écart relatif moyen,  $|\Delta\Omega/\Omega|^\sigma$  l'écart-type et  $|\Delta\Omega/\Omega|^{\max}$ , la valeur maximale de cet écart sur les points de calculs.  $Pe_v^{\max}$ ,  $Pe_u^{\max}$  et  $Sc^{\max}$  donnent les valeurs de ces termes en ce point où la corrélation est la plus inexacte. Le domaine d'étude où nous avons recherché la corrélation correspond à  $Pe_v \in [10^{-4}, 10]$ ,  $Pe_u \in [10^{-2}, 10]$ ,  $Sc \in [50, 500]$ .

Les figures III.15 présentent l'évolution du nombre de Péclet  $Pe_v$  en fonction de la sursaturation pour les deux valeurs du nombre de Schmidt correspondant aux extrémités du domaine de variation,  $Sc = 50$  (Fig. III.15 a) et  $Sc = 500$  (Fig. III.15 b). L'augmentation de  $Pe_v$  en fonction de  $\Omega_c$  est représentée pour trois valeurs du nombre de Péclet hydrodynamique,  $Pe_u$  :  $Pe_u = 0$  (absence de convection et  $\Omega_c = Iv(Pe_v)$ ),  $Pe_u = 0,1$  et  $Pe_u = 10$ . La corrélation que nous proposons ('Corrélation') permet, pour un angle  $\phi$  égal à  $\pi$ , de retrouver l'évolution donnée par la solution analytique ('Ananth et Gill'), les courbes se superposant. A l'inverse, un écart existe entre cette dernière évolution et la corrélation de Wang et Beckermann, particulièrement pour les valeurs importantes du Péclet hydrodynamique et pour la valeur du nombre de Schmidt de 500.

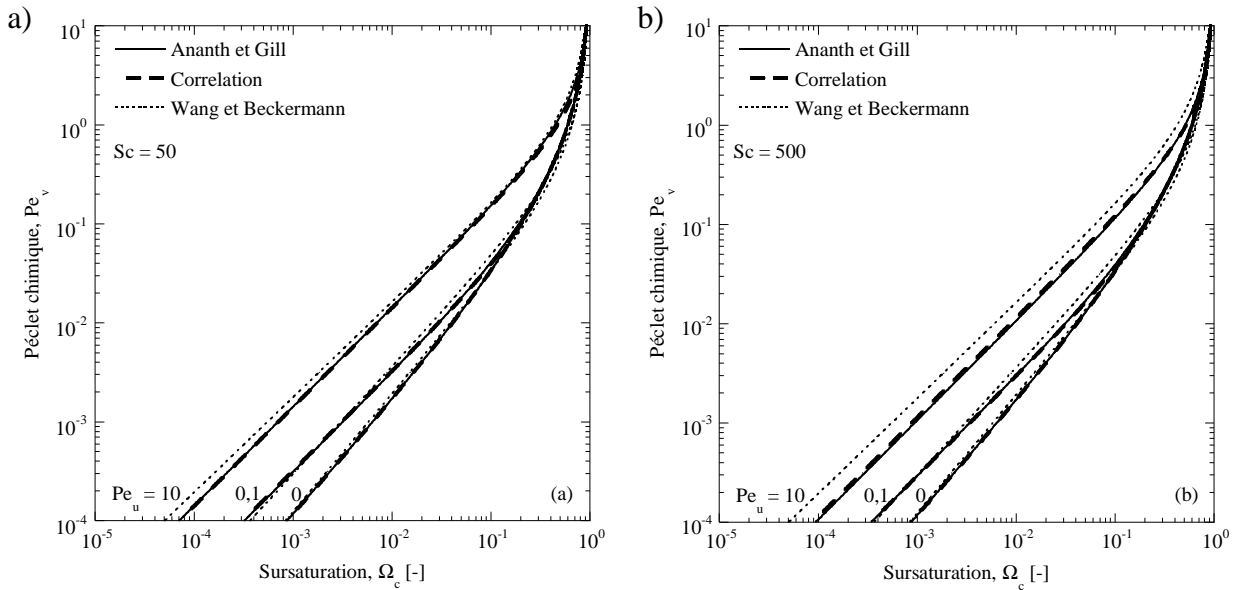


Fig. III.15 [Gan03] : Evolution du nombre de Péclet chimique  $Pe_v$  en fonction de la sursaturation pour les deux valeurs du nombre de Schmidt  $Sc = 50$  (a) et  $Sc = 500$  (b). Dans les deux cas, on s'intéresse aux évolutions pour les trois valeurs du nombre de Péclet hydrodynamique :  $Pe_u = 0$ ,  $Pe_u = 0,1$  et  $Pe_u = 10$ . Les résultats représentés ont été obtenus en utilisant l'approximation de Stokes de la solution analytique de Ananth et Gill [Ana91] (trait plein), la corrélation que nous avons développée [Gan03] (trait interrompu – 'Correlation'), avec un angle  $\phi$  égal à  $\pi$  et la corrélation proposée par Wang et Beckermann [Wan96.1] (trait pointillé).

Pour les mêmes modèles d'évolution de la sursaturation, nous avons calculé la vitesse de croissance de la pointe d'une dendrite se développant dans un alliage Al-7%pds Si, en fonction de la surfusion  $\Delta T$ , cette valeur étant la somme des surfusions chimique et de courbure. Les propriétés physiques utilisées pour l'alliage sont données dans le tableau III.2 et les résultats obtenus sont représentés à la figure III.16.

Propriété	Symbole	Valeur	Unité	Référence
Pente de liquidus	$m$	-6,5	$K (\%pds Si)^{-1}$	[Gan00.1]
Coefficient de partage	$k$	0,13	-	[Gan00.1]
Composition nominale	$w_0$	7	%pds	-
Masse volumique du liquide	$\rho^l$	2370	$kg m^{-3}$	[Gan00.1]
Coefficient de Gibbs-Thomson	$\Gamma$	$1,96 \cdot 10^{-7}$	$m K$	[Gan00.1]
Constante de stabilité marginale	$\sigma^*$	0,0253	-	[Hua81]
Viscosité dynamique	$\mu^l$	$1,38 \cdot 10^{-3}$	$Pa s$	[Lid94]
Température de liquidus	$T_L$	618	$^{\circ}C$	[Gan00.1]
Coefficient de diffusion à $T_L$	$D_c^l$	$6,45 \cdot 10^{-9}$	$m^2 s^{-1}$	[Gan00.1]
Nombre de Schmidt	$Sc$	90,6	-	-

Tab. III.2 [Gan03]: Propriétés physiques de l'alliage Al-7%pds Si utilisées pour calculer la vitesse de croissance d'une pointe de dendrite en fonction de la surfusion et de la vitesse du liquide.

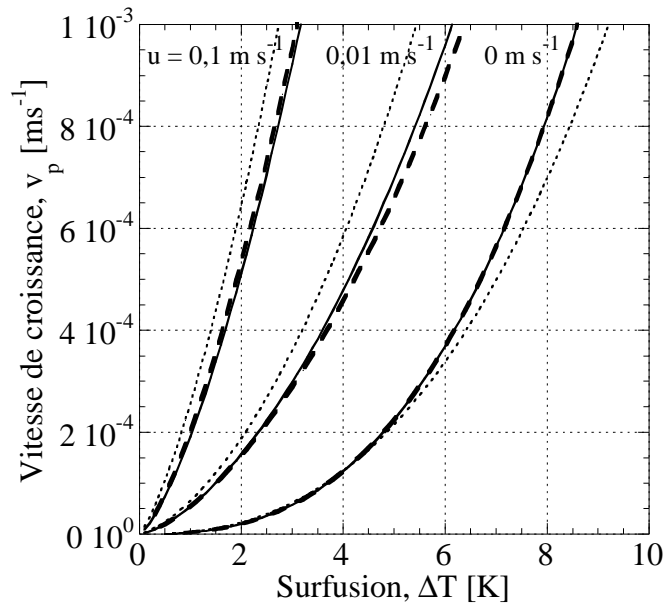


Fig. III.16 [Gan03] : Evolution, dans le cas d'un alliage Al-7%pds Si, en présence de convection, de la vitesse de croissance de la pointe de la dendrite,  $v_p$ , en fonction de la surfusion,  $\Delta T$ , et de la vitesse du liquide,  $u$ . Le liquide arrive frontalement sur la pointe ( $\phi = \pi$ ). Trois vitesses ont été utilisées :  $u = 0 \text{ m s}^{-1}$ ,  $u = 0,01 \text{ m s}^{-1}$ ,  $u = 0,1 \text{ m s}^{-1}$ . Les résultats représentés ont été obtenus en utilisant l'expression analytique de Ananth et Gill [Ana91] (trait plein), la corrélation proposée [Gan03] (trait interrompu) et la corrélation donnée par Wang et Beckermann [Wan96.1] (trait pointillé).

Ces résultats montrent également que la corrélation que nous proposons permet de retrouver les évolutions de vitesse données par le modèle analytique. Les courbes correspondant à notre modèle sont très proches de celles obtenues grâce à l'expression III.31. Comme le laissent suggérer les résultats de la figure III.15, on retrouve un écart plus important entre cette expression analytique et les résultats de la corrélation de Wang et Beckermann, alors même que la valeur du nombre de Schmidt reste relativement faible ( $Sc = 90,6$ ).

Enfin, afin d'étudier l'influence de l'angle d'arrivée du fluide, nous avons tracé pour deux valeurs de la surfusion,  $\Delta T = 3 \text{ K}$  et  $\Delta T = 5 \text{ K}$ , et deux vitesses du liquide,  $u = 0 \text{ m s}^{-1}$  et  $u = 0,01 \text{ m s}^{-1}$ , la valeur de la vitesse  $v_p$  en fonction de l'angle  $\phi$  (Fig. III.17) pour le même alliage Al-7%pds Si. Pour la première vitesse, on retrouve des courbes circulaires car le transport de soluté se réalise uniquement par diffusion. La valeur de la vitesse croît avec la surfusion et correspond à la valeur déduite de la sursaturation calculée par la relation d'Ivantsov. A surfusion fixée, l'apparition d'une vitesse de liquide ( $u = 0,01 \text{ m s}^{-1}$ ) permet d'augmenter la cinétique de croissance. Pour un angle  $\phi$  égal à  $0^\circ$ , on retrouve la valeur donnée par la relation d'Ivantsov et les deux courbes tracées pour une même surfusion se rejoignent. Pour un angle  $\phi$  égal à  $\pi$ , la valeur de la vitesse correspond à la sursaturation donnée par la relation de Ananth et Gill. Les vitesses de croissance calculées se retrouvent sur la figure III.16 pour la vitesse du liquide de  $0,01 \text{ m s}^{-1}$ . Entre les deux valeurs d'angle,  $v_p$  augmente d'abord rapidement puis plus lentement, lorsque  $\phi$  dépasse  $90^\circ$  et que le régime de croissance en convection s'est installé.

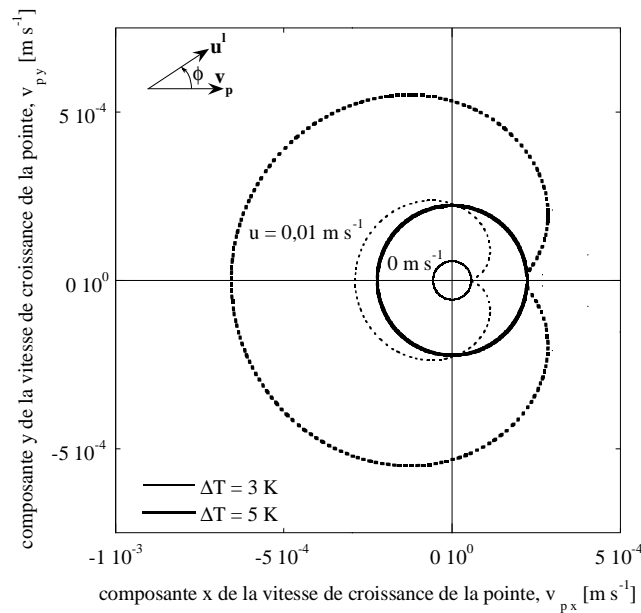


Fig. III.17 [Gan03] : Evolution de la vitesse de croissance de la pointe d'une dendrite d'alliage Al-7%*pds* Si en fonction de l'angle  $\phi$  pour les valeurs de surfusion de 3 K et 5 K et les vitesses de liquide de  $0 m s^{-1}$  et  $0,01 m s^{-1}$ .

### III.3.2.b. Comparaison avec les résultats de Glicksman

Dans le but de valider expérimentalement cette corrélation, nous avons comparé les vitesses qu'elle nous permet de calculer à celles mesurées par Glicksman et Huang [Gli82] pour différents angles d'arrivée du fluide (Fig. III.18), en régime de convection naturelle. L'expérience de croissance de pointe a été menée avec du succinonitrile pur. Il ne s'agit plus de croissance solutale mais thermique. Cependant, le raisonnement développé précédemment reste valable, les phénomènes de diffusion de soluté étant remplacés par des phénomènes de diffusion de la chaleur. Le nombre de Sherwood,  $Sh$ , est remplacé par le nombre de Nusselt,  $Nu$ , et le nombre de Schmidt,  $Sc$ , par le nombre de Prandtl,  $Pr$ . Malgré le remplacement du terme de diffusion solutal  $D_c^l$  par un terme de diffusion thermique  $D_{th}^l$ , le domaine de variation de ces nombres reste suffisamment voisin de celui précédemment donné pour que la corrélation s'applique. Les paramètres utilisés pour réaliser les calculs sont ceux résumés au tableau III.3.

Propriété	Symbole	Valeur	Unité	Référence
Masse volumique du liquide	$\rho^l$	970	kg m <sup>-3</sup>	[Gli82]
Viscosité dynamique	$\mu^l$	4,6.10 <sup>-3</sup>	Pa s	[Gli82]
Surfusion adimensionnelle	$\Delta_s^l H_f / C_p^l$	23,125	K	[Gli82]
Constante de stabilité marginale	$\sigma^*$	0,02	-	[Gli82]
Entropie volumique de fusion	$\Delta_s^l S_f$	1,47.10 <sup>5</sup>	J K <sup>-1</sup> m <sup>-3</sup>	[Gli82]
Nombre de Prandtl	Pr	41	-	[Gli82]
Coefficient de diffusion thermique	$D_{th}^l$	1,16.10 <sup>-7</sup>	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	[Gli82]
Tension interfaciale	$\gamma^{sl}$	8,96.10 <sup>-3</sup>	J m <sup>-2</sup>	[Gli82]
Volume molaire	$V_m$	76.10 <sup>-6</sup>	m <sup>3</sup> mol <sup>-1</sup>	[Kur92]

Tab. III.3 [Gli82, Kur92] : Propriétés thermodynamiques et physiques du succinonitrile pur utilisés pour comparer les résultats de notre modèle avec les mesures expérimentales de Glicksman et Huang [Gli82].

Nous avons choisi d'utiliser la valeur de  $\sigma^*$  de 0,02 présentée par Glicksman et Huang [Gli82] et de ne considérer que les seules surfusions thermique et de courbure. Nous avons superposés les profils mesurés (symboles carrés et circulaires) et approchés par les lignes en traits continus avec nos propres résultats (traits discontinus) (Fig. III.18).

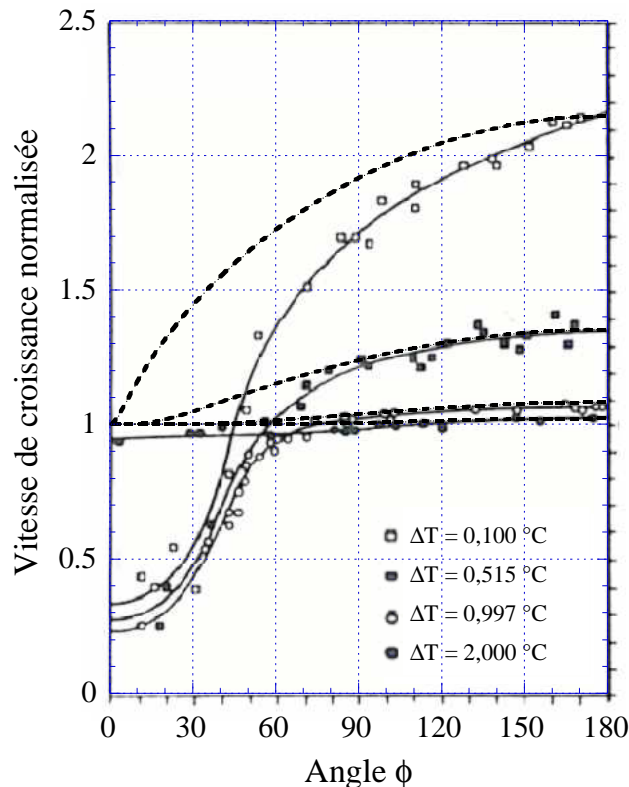


Fig. III.18 : Evolution de la vitesse de croissance d'une pointe de dendrite de succinonitrile pur croissant en régime de convection. En abscisse est donné l'angle  $\phi$ . On a représenté en ordonné l'évolution du rapport de la vitesse d'avancée de la pointe à la vitesse adoptée en régime de diffusion pure, calculée par les relations d'Ivantsov [Iva47] et le critère de Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77]. L'évolution des cinétiques est représentée pour 4 valeurs de surfusion  $\Delta T$ . Les vitesses d'arrivée du liquide, inconnues à la lecture des résultats de Glicksman et Huang [Gli82], ont été choisies afin d'obtenir un rapport identique à celui représenté à  $\phi = \pi$ . Ces vitesses valent respectivement  $50 \mu\text{m s}^{-1}$  ( $\Delta T = 0,1^\circ\text{C}$ ),  $350 \mu\text{m s}^{-1}$  ( $\Delta T = 0,515^\circ\text{C}$ ),  $500 \mu\text{m s}^{-1}$  ( $\Delta T = 0,997^\circ\text{C}$ ) et  $2 \text{mm s}^{-1}$  ( $\Delta T = 2,0^\circ\text{C}$ ).

La corrélation permet d'estimer la vitesse de manière très correcte sur les angles  $\phi$  les plus élevés jusqu'à des valeurs de  $90^\circ$ . Pour les surfusions les plus importantes, notamment à  $2^\circ\text{C}$ , la comparaison est moins aisée car l'angle d'arrivée du liquide modifie faiblement la vitesse de croissance. Néanmoins sur les valeurs de surfusion de  $0,515^\circ\text{C}$  et  $0,997^\circ\text{C}$ , on retrouve une décroissance progressive de la vitesse selon la valeur de  $\phi$  très proche des mesures. A l'inverse une surfusion faible de  $0,1^\circ\text{C}$  rend également difficile la comparaison. En effet, on se trouve dans ces conditions aux limites des domaines de variation initialement fixés pour établir la corrélation pour les nombres adimensionnels  $Pe_v$  et  $Pe_u$  ( $Pe_v > 10^{-4}$  et  $Pe_u < 10$ ). Les valeurs de ces termes rejoignent les valeurs présentées au tableau III.1 correspondant au point où la corrélation est la plus incorrecte. D'autre part, comme le montre Glicksman et Huang [Gli82] et Lee et al. [Lee93],  $\sigma^*$  varie fortement aux faibles surfusions, ce qui rend d'autant plus difficile les comparaisons. A l'opposé, pour la surfusion de  $2^\circ\text{C}$ , l'évolution semble correctement prédite sur l'ensemble du domaine de variation de  $\phi$ , le rapport restant voisin de 1.

Pour des angles  $\phi$  plus faibles, les écarts augmentent rapidement pour les trois premières surfusions et, pour un angle  $\phi$  voisin de  $50^\circ$ , le rapport devient inférieur à 1 : La croissance se fait plus lentement que dans le cas d'un régime de diffusion pure. Les courbes suivent ensuite une évolution voisine. Lorsque le fluide arrive par l'arrière de la branche, on retrouve une vitesse de croissance de l'ordre du tiers de la valeur qu'elle aurait en régime de diffusion. Par définition, nos résultats tendent tous vers 1 pour ces conditions de croissance. En effet, l'épaisseur de couche limite  $\delta_c$  calculée est infinie (III.33), le nombre de Nusselt tendant vers 2 et on retrouve l'équation d'Ivantsov. Il existe plusieurs origines au fort écart observé entre calculs et expériences pour ces valeurs d'angle.

D'une part l'approximation sphérique ne se justifie plus. S'il est possible d'approcher la pointe de la dendrite par une sphère aux forts angles  $\phi$ , avec une arrivée frontale du liquide, cette considération est plus difficilement justifiable pour des angles faibles. Le liquide 'voit' une branche dendritique par l'arrière. Il s'agit d'un tronc paraboloidal ou conique. La variation de la couche limite avec l'angle devient alors invalide. D'autre part un phénomène d'écrantage se produit. Si le liquide arrive par l'arrière, il est nécessaire de considérer son interaction avec l'ensemble du grain et des branches primaires et secondaires. Alors qu'il augmentait le gradient thermique en évacuant de la chaleur dans la situation précédente, le liquide arrive sur la pointe en diminuant ce gradient et en apportant probablement de la chaleur. La croissance est ralentie ce qui provoque la forte diminution de vitesse observée. Glicksman donne la même explication à cette observation qu'il considère comme le phénomène opposé à celui qui se produit lorsque la pointe croît dans le sens de la gravité et rencontre le liquide remontant par convection naturelle.

### III.3.3. Déplacement

Dans notre travail, nous avons cherché à modéliser le déplacement des amas constitués par le regroupement de grains équiaxes. Ce déplacement résulte du mouvement relatif du liquide les entourant et de la gravité. Ces deux phénomènes induisent des forces sur les amas dont le bilan permet de prédire leurs mouvements. Dans cette partie, nous allons présenter ce bilan et le calcul de la vitesse de déplacement,  $\mathbf{v}_a$ , qu'il permet.

Le mouvement des amas est étudié par l'intermédiaire des enveloppes des grains. Dans le chapitre précédent, nous avons montré que plusieurs forces agissent sur ces grains. De manière similaire à Ahuja et al. [Ahu92.2] et Jalanti [Jal96], nous avons choisi, dans le cadre de notre étude, de ne considérer que les trois principales forces stationnaires :  $\mathbf{P}$ , le poids,  $\mathbf{P}_A$ , la poussée d'Archimède et  $\mathbf{F}_D$ , la force de traînée (paragraphe II.3.2.b). Sous cette hypothèse, la vitesse relative de déplacement du grain  $\mathbf{v}_r = \mathbf{v}_a - \mathbf{v}^l$  est donnée par l'équation II.86.

Nous avons choisi d'assimiler la vitesse d'un amas à celle d'un grain dont la taille serait la somme des tailles des grains le constituant. Ainsi, la formule II.86 donne également la vitesse relative de déplacement de l'amas. La fraction de solide interne  $g^{s.m}$  correspond alors à celle de l'amas,  $g_a^{s.m}$ . Elle est la valeur moyenne des fractions de solide interne des grains rattachés. A la figure III.10, nous avons montré que dans le modèle CA, l'amas est représenté par l'ensemble des cellules recouvertes par les grains. Cette fraction volumique  $g_a^{s.m}$  est le rapport du volume de solide contenu dans les cellules sur le volume total des cellules. De même, le volume de l'enveloppe,  $V_e$ , est apparenté à celui de l'amas et l'aire de l'enveloppe projetée dans la direction de la vitesse  $\mathbf{v}_r$ ,  $A_e$ , est celle donnée pour l'amas. L'équation II.86 prend la forme :

$$\mathbf{v}_r = \left( \frac{2 g_a^{s.m} (\rho^s - \rho^l) V_e g}{\rho^l A_e C_D} \right)^{1/2} \mathbf{u}_g \quad (\text{III.47})$$

La fraction de solide interne,  $g_a^{s.m}$ , est donnée par la moyenne des fractions de solide de chacune des  $N_v^a$  cellules  $v_i$  composant l'amas :

$$g_a^{s.m} = \frac{1}{N_v^a} \sum_{i=1}^{N_v^a} g_{v_i}^{s.m} \quad (\text{III.48})$$

Les termes d'aire et de volume,  $A_e$  et  $V_e$ , sont calculés en assimilant l'enveloppe de l'amas à un octaèdre régulier de côté  $d_a$  et en considérant que les cellules capturées composent une section de cette enveloppe dans un plan médian (Fig. III.19 a). En effet, les grains étudiés sont de structure cristallographique  $\langle 100 \rangle$ . Ils se développent selon 6 directions, 4 étant dans le plan d'étude par hypothèse et les deux autres étant normales à ce plan. Le côté de cet octaèdre est déduit du nombre de cellules occupées par l'amas et de l'aire correspondante  $A_a$  égale à :

$$A_a = N_v^a l_{CA}^2 \quad (\text{III.49})$$

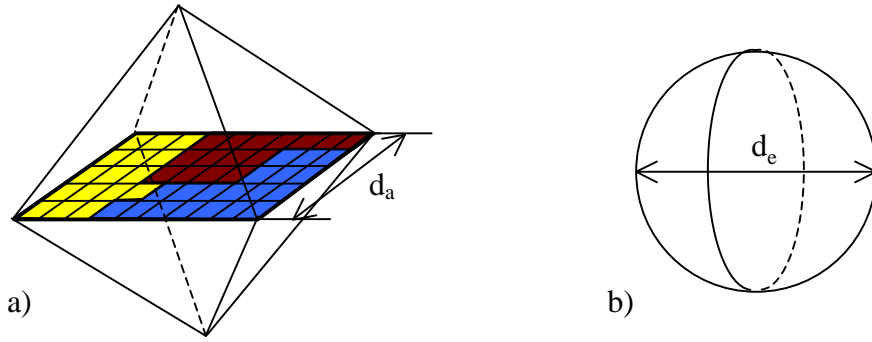


Fig. III.19 : a) Représentation de l'octaèdre régulier équivalent à l'amas. Sa base carrée de coté  $d_a$  a la même aire que l'amas ce que l'on représente en y regroupant l'ensemble des  $N_v^a$  cellules qu'il occupe. b) Sphère de diamètre  $d_e$  équivalente au volume octaédrique (Eq. III.52).

L'octaèdre régulier étant pris équivalent à l'amas, on considère qu'ils ont même aire de base ce qui permet de calculer  $d_a$  par :

$$d_a = \sqrt{A_a} = \sqrt{N_v^a} l_{CA} \quad (\text{III.50})$$

En égalisant les volumes de l'octaèdre régulier de longueur caractéristique  $d_a$  et celui de la sphère équivalente de diamètre  $d_e$ , il vient :

$$\frac{4}{3} \pi \left(\frac{d_e}{2}\right)^3 = \frac{\sqrt{2}}{3} d_a^3 \quad (\text{III.51})$$

soit

$$d_e = \frac{\sqrt{2} d_a}{\pi^{1/3}} \quad (\text{III.52})$$

Les valeurs de l'aire  $A_e$  et du volume  $V_e$  sont alors égales à :

$$A_e = 4 \pi \left(\frac{d_e}{2}\right)^2 \quad (\text{III.53})$$

$$V_e = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{d_e}{2}\right)^3 \quad (\text{III.54})$$

Par ailleurs, dans l'équation III.47, les masses volumiques  $\rho^s$  et  $\rho^l$  sont fonction de la composition du milieu et de la température. Dans un but de simplification, elles seront prises constantes durant l'ensemble du calcul.

Le dernier paramètre à définir est le coefficient de traînée,  $C_D$ . Nous avons choisi d'utiliser la relation de corrélation donnée par Haider et Levenspiel [Hai89] et modifiée par Ahuja [Ahu92.1] (Annexe 4), en tenant compte des coefficients correctifs de forme,  $C_g$ , et de porosité,  $C_f$ , soit l'équation II.89. Les paramètres  $C_1, C_2, C_3$  et  $C_4$ , intervenant dans l'équation II.89 et donnés à l'Annexe 4, dépendent du facteur de forme  $\psi$ . En considérant de nouveau une forme octaédrique régulière pour l'enveloppe, on obtient une aire égale à :

$$A_a = 2 \sqrt{3} d_a^2 \quad (\text{III.55})$$



Les relations III.52 et III.53 permettent alors d'obtenir pour valeur de  $\psi$  :

$$\psi = \frac{\pi^{1/3}}{\sqrt{3}} \approx 0,8456 \quad (\text{III.56})$$

Le terme de correction  $C_g$ , propre à la sédimentation de particules de structure dendritique, est donné par la relation de Ahuja et al. [Ahu92.2] et de Groh III et al. [Gro93], soit l'équation II.92. Le terme correctif  $C_f$ , relatif à la porosité de l'amas, s'exprime par la relation de Neale et al. [Nea73], soit l'équation II.93.

Le rayon normalisé  $\beta$  est fonction du rayon de la sphère équivalente  $d_e/2$  et donné par l'équation II.94. La perméabilité  $K$  de l'amas s'exprime par la relation de Carman-Kozeny. On considère, comme Jalanti [Jal96, Jal00], que les bras dendritiques sont assimilables à des hémisphères de rayon égal à la moitié de l'espacement dendritique secondaire  $\lambda_2$ . L'expression de  $K$  obtenue est alors :

$$K = \frac{(1-g_a^{s,m})^3 \lambda_2^2}{180 g_a^{s,m}{}^2} \quad (\text{III.57})$$

La valeur de  $g_a^{s,m}$  est connue de l'équation (III.48) et celle de  $\lambda_2$  est donnée comme un paramètre du modèle. Dans un but de simplification, cette valeur sera généralement constante bien que des lois de maturation telles celles détaillées par Appolaire [App99.2] soient utilisables.

Le nombre de Reynolds propre à l'amas qui apparaît dans l'équation (II.89) est déduit du diamètre équivalent  $d_e$  et de la viscosité dynamique du liquide  $\nu^l$  par l'équation II.90.

Les équations (III.47-57) et (II.89), (II.90), (II.92), (II.93) et (II.94) permettent le calcul de la vitesse relative de déplacement de l'amas  $\mathbf{v}_r$  par rapport à la vitesse  $\mathbf{v}^l$  du liquide qui l'entoure. Cette dernière est donnée en moyennant l'ensemble des vitesses de liquide vues par les  $N_v^a$  cellules qui le constituent. La vitesse de déplacement propre à l'amas,  $\mathbf{v}_a$ , est ensuite déduite par sommation de ces vitesses via l'équation II.79.

### III.4. Micro pas de temps

Le front de solidification avance de plusieurs dizaines de microns par seconde et les amas sédimentent à des vitesses de l'ordre de quelques millimètres par seconde [Ger02]. Ceci implique qu'ils peuvent parcourir en une seconde une distance égale à plusieurs fois la longueur d'une cellule, typiquement 100  $\mu\text{m}$ . Il est donc nécessaire d'étudier les phénomènes se déroulant à l'échelle du modèle d'automates cellulaires avec un pas de temps 'micro'  $\delta t$  suffisamment petit. Afin de prendre en considération de manière correcte l'avancée du front et le déplacement des amas, on cherchera à ce qu'il ne soit pas possible de capturer plus d'une cellule au cours du même pas de temps  $\delta t$ . Si  $v_p^{\max}$  désigne la vitesse maximale de croissance d'une pointe de dendrite dans

une cellule et  $v_a^{\max}$  la vitesse maximale de déplacement d'un amas,  $\delta t$  doit être choisi inférieur à une valeur  $\delta t^{\max}$  définie simultanément par :

$$\begin{cases} v_p^{\max} \delta t^{\max} \leq l_{CA} \\ v_a^{\max} \delta t^{\max} \leq l_{CA} \end{cases} \quad (\text{III.58})$$

Ces deux relations devraient conduire à avoir pour majorant du micro pas de temps :

$$\delta t^{\max} = \text{Min} \left[ \frac{l_{CA}}{v_p^{\max}}, \frac{l_{CA}}{v_a^{\max}} \right] \quad (\text{III.59})$$

Cependant, il est possible que ces deux vitesses correspondent à une même cellule  $v$ . Si les deux phénomènes se déroulent dans le même sens, une cellule connaîtrait simultanément la croissance la plus rapide et ferait partie de l'amas se déplaçant le plus rapidement. Il faut alors trouver un majorant à la somme des deux vitesses, commun à toutes les cellules. En majorant séparément ces deux termes, on choisit de procéder ainsi pour définir  $\delta t^{\max}$  :

$$\delta t^{\max} = \frac{l_{CA}}{v_p^{\max} + v_a^{\max}} \quad (\text{III.60})$$

D'autre part, la mise à jour des informations contenues dans les cellules se réalise dans un ordre de parcours déterminé. De cette manière, une cellule  $v$  en position favorable pour capturer une de ses voisines  $\mu$  peut ne pas réaliser cette capture. Lorsqu'une des voisines de  $\mu$ , moins bien située que ne l'est  $v$ , voit sa forme de croissance s'agrandir en premier, elle peut réaliser la capture de  $\mu$  et fixer l'orientation cristallographique de cette dernière. Un biais dans les cartes de structure granulaire apparaît si ce phénomène de 'privilege de capture' accordé aux premières cellules étudiées n'est pas pris en considération. Ce phénomène peut se révéler particulièrement préjudiciable dans le cas de la croissance colonnaire compétitive. La figure III.20 présente une telle situation. A l'instant  $t$ , aucune des deux formes de croissance des cellules  $v$  et  $\lambda$  (traits fins) ne permet la capture de la cellule  $\mu$ . A l'inverse, les formes de croissance propres à ces cellules à l'instant  $t + \delta t$  (traits épais) leurs permettent, à toutes les deux, de capturer la cellule  $\mu$ , car elles contiennent le centre  $C_\mu$ . Si le test de capture est d'abord réalisé sur la cellule  $\lambda$ , la cellule  $\mu$  fera partie du même grain et possèdera son orientation cristallographique. Ceci peut sembler incorrect car, à l'instant  $t$ , la forme de croissance de la cellule  $v$  est la plus proche du point  $C_\mu$ . Une évolution plus lente du micro pas de temps aurait permis une capture correcte. Il était donc légitime de croire que la cellule  $\mu$  devait être capturée par la cellule  $v$ .

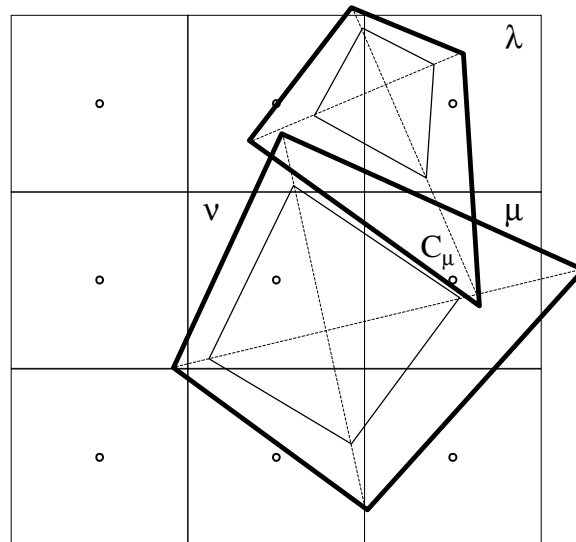


Fig. III.20 : Schéma montrant un biais dans la capture d'une cellule. Les formes de croissance associées aux cellules  $v$  et  $\lambda$  à l'instant  $t$  sont représentées en traits fins. Après croissance, elles occupent les positions représentées en traits épais et recouvrent toutes deux le centre  $C_\mu$  de la cellule  $\mu$ . Dans un but de simplification, le déplacement des grains n'a pas été considéré et les centres de croissance demeurent fixes.

Pour cette raison, le pas de temps  $\delta t$  doit être diminué afin de réaliser des captures plus fines et moins rapides. A cet effet, un paramètre multiplicateur,  $\alpha$ , pris entre 0 et 1 et propre au micro pas de temps, multiplie le micro pas de temps maximal. La valeur finale de  $\delta t$  s'écrit alors :

$$\delta t = \alpha \delta t^{\max} \quad (\text{III.61})$$

## IV. Couplage micro-macro

A l'échelle macroscopique, les équations de conservation sont résolues selon le modèle présenté par Jalanti [Jal00] à l'aide du logiciel Calcosoft. Cette résolution permet de connaître l'évolution des champs d'enthalpie, de composition moyenne et de vitesse du liquide aux nœuds du maillage en éléments finis. Dans ce chapitre, nous allons détailler de quelle manière le couplage se réalise entre les méthodes FE et CA. Dans une première partie nous reviendrons sur la résolution macroscopique. Nous présenterons ensuite le couplage thermique réalisé avec des phases fixes. Puis, nous étudierons la prise en compte du mouvement des phases afin de prédire la macroségrégation. Nous montrerons de quelle manière sont modélisés le transport des variables macroscopiques et les effets du déplacement des amas sur le mouvement du liquide. Nous présenterons enfin un algorithme résumant l'ensemble du travail de modélisation couplant les approches microscopiques et macroscopiques. Nous validerons les couplages thermiques et en macroségrégation par des comparaisons avec des résultats de modèles purement macroscopiques.

### IV.1. Equations macroscopiques

Parmi les approches macroscopiques possibles de résolution des équations de conservation, nous avons choisi de reprendre celle développée par Jalanti [Jal00] et Rappaz [Rap98] et qui a été implémentée dans le code Calcosoft [Cal02]. Le modèle est basé sur la prise de moyenne des grandeurs caractéristiques sur des domaines  $\Omega$ , dont le volume  $\Delta V$  est de l'ordre de quelques espacements interdendritiques  $\lambda_2$ . Les termes calculés correspondent aux valeurs moyennes de ces grandeurs volumiques. Pour une variable massique  $\xi$  on cherche à calculer l'évolution de  $\langle \rho \xi \rangle$  définit par :

$$\langle \rho \xi \rangle = \frac{1}{\Delta V} \int_{\Delta V} \rho \xi(\mathbf{x}, t) dV \quad (\text{IV.1})$$

$\langle \rho \xi^\alpha \rangle$  fait référence à la valeur moyenne de  $\rho \xi$ , pondérée sur le sous-domaine  $\Omega^\alpha$  et moyennée sur  $\Omega$  :

$$\langle \rho \xi^\alpha \rangle = \frac{1}{\Delta V} \int_{\Delta V} \rho \xi(\mathbf{x}, t) \chi^\alpha(\mathbf{x}, t) dV \quad (\text{IV.2})$$

où la fonction de distribution  $\chi^\alpha$  vaut 1 sur le domaine  $\Omega^\alpha$  et est nulle partout ailleurs.

De même,  $\langle \rho \xi \rangle^\alpha$  désigne la valeur moyenne de  $\rho \xi$  sur le domaine  $\Omega^\alpha$ , de volume  $\Delta V^\alpha$  :

$$\langle \rho \xi \rangle^\alpha = \frac{1}{\Delta V^\alpha} \int_{\Delta V^\alpha} \rho \xi(\mathbf{x}, t) \chi^\alpha(\mathbf{x}, t) dV = \frac{\Delta V}{\Delta V^\alpha} \langle \rho \xi^\alpha \rangle = \frac{\langle \rho \xi^\alpha \rangle}{g^\alpha} \quad (\text{IV.3})$$

où  $g^\alpha$  est la fraction volumique de la phase  $\alpha$  dans  $\Omega$ , rapport de la valeur  $\Delta V^\alpha$  sur  $\Delta V$ .

De même, si le domaine  $\Omega$  se décompose en un ensemble de sous-domaines indicés en  $\alpha$  parmi un ensemble I, on aura :

$$\langle \rho \xi \rangle = \sum_{\alpha \in I} \langle \rho \xi^\alpha \rangle = \sum_{\alpha \in I} g^\alpha \langle \rho \xi \rangle^\alpha \quad (\text{IV.4})$$

L'ensemble des équations macroscopiques résolues se présentent sous la forme générale :

$$\frac{\partial \langle \rho \xi \rangle}{\partial t} + \text{div} \langle \rho \xi \mathbf{v} \rangle + \text{div} \langle \mathbf{j}_\xi \rangle = \dot{Q}_\xi \quad (\text{IV.5})$$

avec  $\rho$  la masse volumique supposée uniforme et constante sur chacune des phases,  $\mathbf{j}_\xi$  le flux relatif à la grandeur  $\xi$  et  $\dot{Q}_\xi$  le terme source, responsable de la création de  $\xi$ .  $\langle \mathbf{v} \rangle$  désigne le champ de vitesse moyen des phases localement. De plus, la vitesse de chacune des phases en présence est supposée uniforme à l'échelle de  $\Omega$ . Sous cette condition, il est possible de définir  $\langle \mathbf{v} \rangle$  par :

$$\langle \mathbf{v} \rangle = g^s \langle \mathbf{v}^s \rangle + g^l \langle \mathbf{v}^l \rangle \quad (\text{IV.6})$$

où  $\langle \mathbf{v}^s \rangle$  est la vitesse de la phase solide et  $\langle \mathbf{v}^l \rangle$  celle de la phase liquide.

Cette équation IV.5 sert de support à l'écriture de l'ensemble des équations de conservation moyennées auxquelles nous nous intéressons. Celles-ci sont rappelées en Annexe 5. Les notations que nous adopterons par la suite seront similaires à celles de Jalanti [Jal00], en confondant  $\langle \xi \rangle$  avec  $\xi$  et  $\langle \xi \rangle^\alpha$  avec  $\xi^\alpha$ .

Comme nous l'avons déjà montré, la diffusion solutale dans les alliages métalliques est toujours faible au regard du transport convectif. Ainsi, la macroségrégation est principalement due au transport du soluté par le mouvement du liquide. Pour cette raison, Jalanti simplifie l'équation de conservation du soluté en négligeant le terme de transport diffusif dans les phases solide et liquide ( $D_c^l = D_c^s = 0$ ). Nos calculs ne feront donc pas apparaître d'évolution de la composition à l'échelle macroscopique lorsque le liquide sera supposé immobile. L'équation résolue en FE s'écrit :

$$\frac{\partial (\rho w)}{\partial t} + \text{div} (\rho w \mathbf{v}) = 0 \quad (\text{IV.7})$$

L'équation de conservation de la chaleur est similaire à l'équation IV.7 mais fait apparaître un terme de transport diffusif qui ne peut être négligé, la diffusion thermique étant importante dans les alliages métalliques :

$$\frac{\partial (\rho h)}{\partial t} + \text{div} (\rho h \mathbf{v}) - \text{div} (\kappa \mathbf{grad} T) = 0 \quad (\text{IV.8})$$

L'équation de conservation de la masse est utilisée dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement du liquide, afin de résoudre celle-ci par une méthode de pénalisation de la pression. Comme le remarque Jalanti [Jal00], cette méthode n'est utilisable que dans l'hypothèse

où la densité de toutes les phases est constante et égale ( $\rho^l = \rho^s = \rho$ ). Sous cette hypothèse, la dérivée temporelle de  $\rho$  (Annexe 5) est nulle et cette équation de conservation de la masse s'écrit :

$$\text{div}(\mathbf{v}) = 0 \quad (\text{IV.9})$$

Dans l'écriture de l'équation de conservation de la quantité de mouvement du liquide, l'approximation de Boussinesq est également utilisée par Jalanti [Jal00]. La masse volumique de la phase liquide,  $\rho^l$ , est supposée constante, exception faite du terme de gravité où elle est remplacée par  $\rho_b$ . Son expression devient une fonction linéaire de la température  $T$  et de la composition  $w^l$  :

$$\rho_b = \rho_0 [1 - \beta_{th} (T - T_0) - \beta_c (w^l - w_0^l)] \quad (\text{IV.10})$$

où  $\beta_{th}$  et  $\beta_c$  sont les coefficients d'expansion thermique et solutal et  $\rho_0$  une masse volumique de référence correspondant à la température  $T_0$  et la composition  $w_0^l$ .

Sous ces hypothèses, l'équation de conservation de la quantité de mouvement du liquide s'écrit :

$$\rho^l \frac{\partial (u_x)}{\partial t} + \frac{\rho^l}{g^l} \text{div}(u_x \mathbf{u}^c) - \mu \Delta u_x + M_x - g^l \frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial x} (\text{div} \mathbf{u}) = \rho_b g^l g_x \quad (\text{IV.11})$$

$$\rho^l \frac{\partial (u_y)}{\partial t} + \frac{\rho^l}{g^l} \text{div}(u_y \mathbf{u}^c) - \mu \Delta u_y + M_y - g^l \frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial y} (\text{div} \mathbf{u}) = \rho_b g^l g_y \quad (\text{IV.12})$$

$g_x$  et  $g_y$  sont les composantes selon  $x$  et  $y$  du vecteur gravité  $\mathbf{g}$ .  $\mathbf{u}$  désigne la vitesse moyenne relative de déplacement du liquide par rapport au solide, définie par :

$$\mathbf{u} = \mathbf{v} - \mathbf{v}^s \quad (\text{IV.13})$$

Cette valeur  $\mathbf{u}$  se résume, pour la méthode de résolution macroscopique de Jalanti [Jal00], à  $g^l \mathbf{v}^l$ , car la vitesse du solide sera supposée nulle dans la méthode de résolution macroscopique FE (ie.  $\mathbf{v}^s = \mathbf{0}$ ). Dans la suite de ce travail,  $\mathbf{u}$  sera ainsi toujours confondue avec la vitesse débitante de liquide,  $g^l \mathbf{v}^l$  (ie.  $\mathbf{u} = g^l \mathbf{v}^l$ ), et donc sera différente de l'expression IV.13. Pour la même raison, les équations IV.7 et IV.8 seront résolues macroscopiquement en considérant que, pour ces deux équations de conservation, la vitesse moyenne des phases,  $\mathbf{v}$ , représente la vitesse débitante du liquide,  $\mathbf{u} = g^l \mathbf{v}^l$ .  $\mathbf{u}^c$  est la vitesse calculée à l'itération précédant celle où est réalisée le calcul de  $\mathbf{u}$ . Le terme  $\varepsilon$  est un facteur très petit, de l'ordre de  $10^{-10}$ , utilisé dans la méthode de pénalisation. La divergence du champ de vitesse du solide étant nulle, car  $\mathbf{v}^s$  est nul, il permet d'écrire, avec  $P^l$  pour pression du liquide, l'équation IV.9 sous la forme :

$$\text{div} \mathbf{u} = -\varepsilon P^l \quad (\text{IV.14})$$

Le passage d'un liquide dans un milieu poreux crée une force, qualifiée de 'friction volumique', due aux contacts solide-liquide et exprimée en  $\text{N m}^{-3}$ . Dans le cas d'un milieu poreux, où la phase solide est fixe, cette force, notée  $\mathbf{M}$ , s'exprime sous la forme [Jal00] :

$$\mathbf{M} = g^l \frac{\mu}{K} \mathbf{u} \quad (\text{IV.15})$$

où  $K$  est la perméabilité du milieu pâteux de fraction volumique de liquide  $g^l$ .

Ce sont ces expressions qui, résolues, nous donneront les évolutions des champs macroscopiques d'enthalpie  $H$ , de composition moyenne  $w$  et de vitesse débitante liquide  $\mathbf{u}$ . Nous utiliserons ces valeurs dans le calcul 'micro' et les modifierons également.

## IV.2. Couplage avec phases fixes (thermique)

La solidification des cellules permet de traduire la solidification à l'échelle des éléments finis. Dans le cas simple où l'ensemble des phases, solide et liquide, sont fixes, nous allons détailler la méthode de rétrocession employée.

### IV.2.1. Rétrocession de la température et de la fraction solide

Les processus de solidification et de croissance qui s'opèrent dans chaque cellule  $v$  définissent la valeur des variables de température  $T_v$  et de fraction de solide  $g_v^s$ . Le couplage a pour but de rétrocéder les variations de ces deux grandeurs au niveau des nœuds entourant chaque cellule  $v$  (Fig. IV.1).

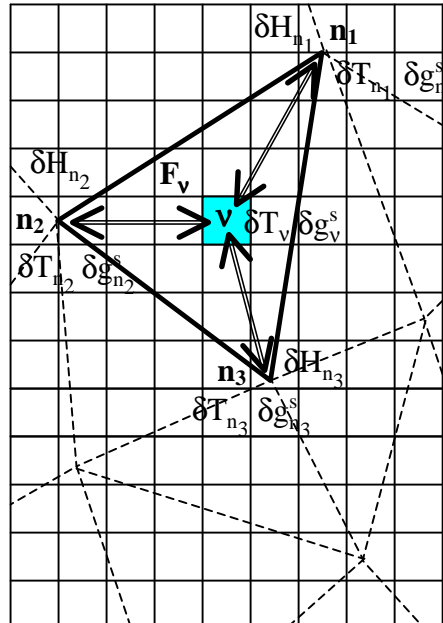


Fig. IV.1 : Représentation de la rétrocession en température et fraction de solide réalisée entre les cellules et les nœuds. Les variations d'enthalpie  $\delta H_{n_i}$  ( $i \in \{1,2,3\}$ ) permettent, par interpolation, de connaître la même variation au niveau de la cellule  $v$ ,  $\delta H_v$  (sens des flèches des nœuds  $n_i$  vers la cellule  $v$ ). La variation  $\delta H_v$  permet de calculer les variations de température  $\delta T_v$  et de fraction solide  $\delta g_v^s$  qui sont rétrocédées, en retour, aux nœuds  $n_i$  (sens des flèches de la cellule  $v$  vers les nœuds  $n_i$ ).

Les variations microscopiques d'enthalpie  $\delta H_n$  durant le micro pas de temps  $\delta t$ , entre deux instants  $t_m$  et  $t_m + \delta t$ , sont connues aux nœuds  $n$  du maillage en éléments finis par interpolation linéaire dans le temps des variations macroscopiques d'enthalpie  $\Delta H_n = H_n(t + \Delta t) - H_n(t)$ , calculées au cours du macro pas de temps,  $\Delta t$ . On a ainsi  $t \leq t_m \leq t_m + \delta t \leq t + \Delta t$ , où  $t_m$  désigne le temps courant, utilisé pour le modèle CA, entre deux temps macro  $t$  et  $t + \Delta t$ , utilisés pour la résolution par la méthode des FE. Afin de ne pas dépasser ce macro pas de temps de calcul, le micro pas de temps est tronqué à la quantité restante du pas de temps macro. Pour cette raison, on a toujours l'inégalité :

$$t_m + \delta t \leq t + \Delta t \quad (IV.16)$$

La variation d'enthalpie  $\delta H_n$  est alors proportionnelle au rapport de ces pas de temps :

$$\delta H_n = \frac{\delta t}{\Delta t} \Delta H_n \quad (IV.17)$$

Pour une cellule  $v$  d'un élément  $F_v$  dont les sommets  $n_i$  sont au nombre de  $N_n^F$ , une variation d'enthalpie  $\delta H_v^{int}$  est interpolée au centre de la cellule de coordonnées  $(x_v, y_v)$  par sommation pondérée des variations  $\delta H_{n_i}$  :

$$\delta H_v^{int} = \sum_{i=1}^{N_n^F} c_v^{n_i} \delta H_{n_i} \quad (IV.18)$$

où  $c_v^{n_i}$  est le coefficient d'interpolation de la cellule  $v$  relatif au nœud  $n_i$  ( $c_v^{n_i} \leq 1$ ). Il est défini par une fonction linéaire des coordonnées d'espace sur la surface de l'élément  $F_v$  [Rap98].

Cette variation incrémente la valeur d'enthalpie de la cellule  $v$  à l'instant  $t_m$  et donne la nouvelle valeur de l'enthalpie à  $t_m + \delta t$ ,  $H_v(t_m + \delta t) = H_v(t_m) + \delta H_v^{int}$ . En distinguant les situations possibles, la valeur de  $\delta H_v^{int}$  permet de connaître le nouvel état de la cellule  $v$  au temps  $t_m + \delta t$  et de déduire les variations de sa température,  $\delta T_v$ , et de sa fraction volumique de solide,  $\delta g_v^s$ , durant le micro pas de temps  $\delta t$ . L'expression générale de l'enthalpie permet d'exprimer  $H_v$  en fonction de  $T_v$  et de  $g_v^l$  sous la forme :

$$H_v = C_p T_v + \Delta_s^l H_f g_v^l \quad (IV.19)$$

La capacité calorifique volumique de l'alliage,  $C_p$ , et l'enthalpie volumique de fusion,  $\Delta_s^l H_f$ , seront considérées comme des constantes durant l'ensemble du calcul. Leurs variations en fonction de la température ou de la composition de la cellule seront négligées. Les fractions volumiques de liquide,  $g_v^l$ , et de solide,  $g_v^s$ , sont telles que :

$$g_v^l + g_v^s = 1 \quad (IV.20)$$

La fraction volumique de solide  $g_v^s$  est elle-même le produit de la fraction volumique de zone pâteuse,  $g_v^m$ , et de la fraction volumique de solide interne à cette zone,  $g_v^{s,m}$  :

$$g_v^s = g_v^m g_v^{s,m} \quad (IV.21)$$

Sous ces hypothèses, il est possible de donner une écriture différentielle à l'équation IV.19 :

$$\delta H_v = C_p \delta T_v - \Delta_s^l H_f \delta [g_v^m g_v^{s,m}] \quad (IV.22)$$



Les variations de température,  $\delta T_v$ , et de fraction volumique de solide,  $\delta g_v^s$ , propres à la cellule  $v$  au cours du micro pas de temps  $\delta t$  sont calculées à partir de deux équations. La première est constituée de l'équation de conservation de l'enthalpie IV.19 ou de sa forme différentielle IV.22. Si l'état de la cellule ne permet pas de définir explicitement l'une de ces deux variations, et donc de fournir une seconde équation simple, cette dernière sera donnée par une loi de solidification interne à la cellule qui reliera les variables  $T_v$  et  $g_v^{s.m}$ . Les cas qui suivent sont alors à distinguer.

➤ **Cellule liquide**

Si la cellule n'est pas capturée, la variation d'enthalpie correspond à une diminution de la température  $T_v$ , la variation de fraction solide interne  $\delta g_v^s$  étant égale à 0. Il n'y a pas de libération de chaleur latente, le second terme de l'équation IV.22 est nul et on a :

$$\begin{cases} \delta g_v^s = 0 \\ \delta T_v = \frac{\delta H_v^{\text{int}}}{C_p} \end{cases} \quad (\text{IV.23})$$

➤ **Cellule pâteuse**

Si la cellule est capturée mais pas encore totalement solidifiée ( $g_v^{s.m} < 1$ ), il se produit simultanément une variation de sa température et de sa fraction volumique de solide. Une loi de solidification est utilisée. Nous avons cherché à différencier les premières étapes de solidification, pour lesquelles  $g_v^m$  est inférieur à 1 de celles ultérieures, où la forme de croissance recouvre entièrement la cellule et  $g_v^m$  est égal à 1. Dans ce cas, la cellule est alors entièrement pâteuse.

Si  $g_v^m < 1$  :

La faible taille de la forme de croissance permet aux phénomènes diffusifs d'être importants et aux phases en présence d'être considérées comme homogène en composition. Ainsi, le domaine solide est à une composition uniforme  $w_v^{s.m}$ , en équilibre thermodynamique avec le domaine liquide interne à la zone pâteuse qui se trouve également à une composition uniforme. Nous avons choisi de considérer le liquide hors de cette zone pâteuse comme ayant une composition égale à la composition moyenne de la cellule,  $w_v$ . La conservation du soluté impose alors que le domaine pâteux possède une composition moyenne égale à  $w_v$ . La macroségrégation n'étant pas prise en considération dans le cas du couplage à phases fixes (couplage thermique), chaque cellule est un domaine fermé, de composition  $w_v$  égale à la composition nominale de l'alliage  $w_0$  tant pour la zone pâteuse que le liquide extradendritique.

Ces hypothèses conduisent à avoir pour loi de solidification la loi des leviers et, dans un diagramme de phase linéarisé, la fraction de solide interne est alors donnée par :

$$g_v^{s.m} = \frac{1}{1-k} \frac{T_L - T_v}{T_M - T_v} \quad (\text{IV.24})$$

La température de liquidus,  $T_L$ , correspond à la composition moyenne  $w_v$  ou  $w_0$  et la température  $T_v$  correspond à la composition du liquide interdendritique de la zone pâteuse.

Si  $g_v^m = 1$  :

Lorsque la zone pâteuse recouvre entièrement la cellule, on ne retrouve que les domaines liquide et solide internes à cette zone. Les fractions de solide totale,  $g_v^s$ , et interne à la zone pâteuse,  $g_v^{s,m}$ , se confondent. Dans le domaine fermé constitué par la cellule, nous avons considéré que le soluté diffuse parfaitement dans la phase liquide mais que cette diffusion n'a pas lieu dans la phase solide. Il s'agit des principes posés par Gulliver et Scheil [Gul13, Sch42] pour établir leur loi de solidification. Cette loi sera cependant modifiée afin de tenir compte du raccordement des deux états  $g_v^m < 1$  et  $g_v^m = 1$ . Lorsque la fraction de zone pâteuse sera égale à 1 pour la première fois, la fraction de solide vaudra  $g_v^{s*}$ , et  $g_v^s$  sera ensuite donné par :

$$g_v^s = 1 - \lambda \left( \frac{T_M - T_v}{T_M - T_L} \right)^{\frac{1}{k-1}} \quad (IV.25)$$

où le coefficient correcteur  $\lambda$ , originellement égal à 1 dans la loi de Gulliver-Scheil, est modifié afin d'exprimer la même valeur de la fraction de solide selon les lois de microségrégation utilisée si  $g_v^m < 1$  et  $g_v^m = 1$ . Il permet le raccordement de ces lois et vaut alors :

$$\lambda = \frac{1 - g_v^{s*}}{\left[ 1 - (1-k) g_v^{s*} \right]^{\frac{1}{1-k}}} \quad (IV.26)$$

Selon le cas étudié, les équations IV.24 ou IV.25 constituent la seconde relation permettant de connaître, avec la relation IV.19, le nouvel état de la cellule et les variations  $\delta g_v^{s,m}$  et  $\delta T_v$ . Rappelons que dans le cas où  $g_v^m < 1$ , la valeur de cette fraction volumique est connue via les conditions géométriques présentées au paragraphe II.2.2.a.

### ➤ *Cellule eutectique*

L'utilisation de la loi de Gulliver-Scheil conduit à un enrichissement important en élément d'alliage du liquide contenu dans la cellule. Lorsque sa composition,  $w_v^l$ , rejoint la composition eutectique,  $w_E$ , une transformation eutectique se déroule. En l'absence de surfusion eutectique, ce phénomène se déroule lorsque la température  $T_v$  est égale à la température eutectique  $T_E$ . La solidification se déroule alors de manière isotherme,  $T_v$  restant fixée à  $T_E$  et on a :

$$\begin{cases} \delta g_v^s = - \frac{\delta H_v^{\text{int}}}{\Delta_s^l H_f} \\ \delta T_v = 0 \end{cases} \quad (IV.27)$$

➤ **Cellule solide**

L'incrémentation successive de la fraction volumique permet de totalement solidifier la cellule et d'avoir  $g_v^s = 1$  et  $T_v < T_E$ . La cellule solide se refroidit ensuite de manière similaire à la cellule liquide, la variation de fraction solide étant alors nulle, et on a :

$$\begin{cases} \delta g_v^s = 0 \\ \delta T_v = \frac{\delta H_v^{\text{int}}}{C_p} \end{cases} \quad (\text{IV.28})$$

Selon l'état dans lequel se situe la cellule, il est possible de connaître, au cours du micro pas de temps de calcul,  $\delta t$ , les variations  $\delta g_v^s$  et  $\delta T_v$  des paramètres de fraction volumique de solide et de température. Ces variations sont ensuite additionnées aux valeurs de ces mêmes paramètres et permettent d'en déduire la nouvelle valeur de  $g_v^s$  et  $T_v$  à la fin du micro pas de temps. Si l'évolution de ces paramètres permet à la cellule de modifier son état (refusion, passage de l'état solide à l'état pâteux, etc), ce nouvel état est pris en considération et les fractions de solide et températures correspondantes calculées.

Le couplage thermique est réalisé par une rétrocession aux nœuds des variations calculées pour les cellules. Les variations des températures et des fractions de solide au nœud  $n$  sont obtenues en sommant l'ensemble des variations des  $N_v^n$  cellules  $v_i$  entourant ce nœud :

$$\delta T_n = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta T_{v_i} \quad (\text{IV.29 a})$$

$$\delta g_n^s = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta g_{v_i}^s \quad (\text{IV.29 b})$$

Cette sommation est pondérée par le coefficient d'interpolation  $c_{v_i}^n$ . Dans le but de la normaliser, un coefficient diviseur,  $\Lambda_n$ , est utilisé qui correspond à la somme de l'ensemble de ces coefficients d'interpolation :

$$\Lambda_n = \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \quad (\text{IV.30})$$

Il faut noter que des phénomènes de 'nivellement' sont introduits en choisissant de prendre, comme proposé par Gandin et Rappaz [Gan94], des coefficients de rétrocession proportionnels aux coefficients d'interpolation. Considérons un gradient de température donné au niveau du maillage FE, dans un milieu entièrement liquide, le processus de solidification n'étant pas pris en compte. Le modèle d'interpolation/rétrocession, couplé avec la résolution macroscopique de l'équation de conservation de la chaleur, reliant  $T_n$  à  $H_n$ , tend à ramener les

nœuds à la même température. En renouvelant plusieurs fois le calcul, on uniformise tous les nœuds à la même température. Même si ce nivellement semble souvent de faible amplitude, son contrôle passerait par l'utilisation de coefficients de rétrocession différents de  $c_{v_i}^n$ .

D'autre part, ce modèle d'interpolation/rétrocession ne permet pas de vérifier simultanément le bilan de conservation de l'énergie au niveau des nœuds et des cellules. L'écriture de l'équation de conservation IV.19 permet de vérifier ce bilan à l'échelle de la grille CA mais pas à une échelle supérieure. Ainsi, les valeurs des paramètres  $H_n$ ,  $T_n$  et  $g_n^s$  ne peuvent être reliés par une équation de conservation similaire à IV.19.

#### IV.2.2. Validation du couplage thermique

Dans le but de valider notre modèle, nous avons choisi de comparer ces résultats avec ceux du modèle en suivi de front appliqué à la solidification unidirectionnelle d'un lingot d'alliage Al-7%pds Si proposé par Gandin [Gan00.1] (Fig. IV.2). Le lingot, de longueur  $L$ , est mis en contact sur sa partie gauche avec un refroidisseur de température constante  $T^{\text{ext}}$ . Le flux de chaleur sortant,  $\dot{Q}_c$ , suit une condition de Fourier de coefficient de transfert  $h$ . Sur la paroi droite une condition adiabatique est imposée. La température initiale est choisie égale à  $T_0$ . La valeur de ces paramètres ainsi que les propriétés physiques de l'alliage sont données dans le tableau IV.1. Les calculs à l'échelle du maillage FE ont été réalisés avec un pas de temps macroscopique,  $\Delta t$ , de  $10^{-3}$  s. Cette faible valeur permet également d'avoir un pas de temps 'micro'  $\delta t$  égal à  $\Delta t$ . La vitesse de croissance dendritique utilisée,  $v_p$ , dépend de la surfusion du front,  $\Delta T$ , selon une loi en puissance déduite par corrélation des résultats du modèle de Kurz et al. [Kur86]. Le détail des calculs est repris dans l'article de Guillemot et al. [Gui03].

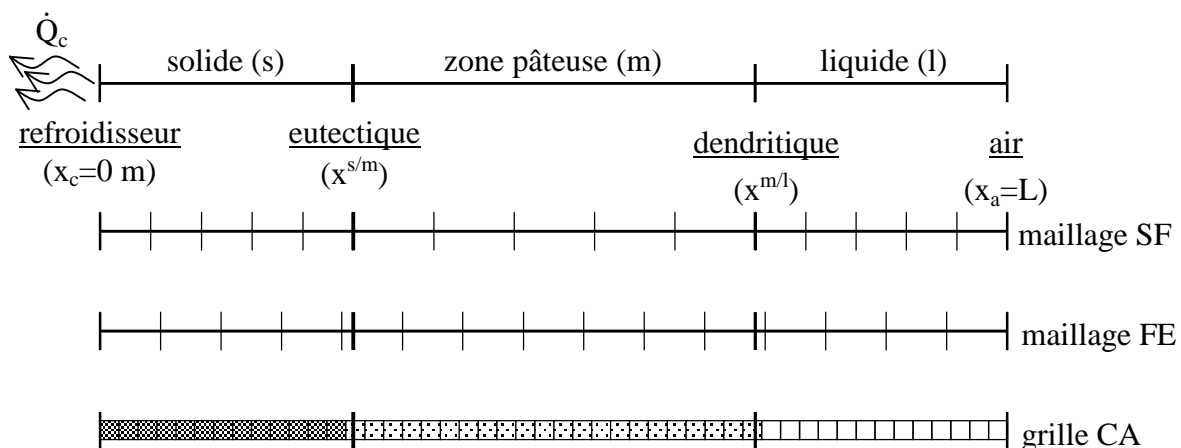


Fig. IV.2 : Représentation des conditions de refroidissement imposées à un lingot se solidifiant unidirectionnellement. Les trois zones apparaissant au cours de la solidification sont schématisées en haut : la zone solide (s), la zone pâteuse (m) et la zone liquide (l). Les positions des frontières eutectique et dendritique sont repérées par les abscisses  $x^{s/m}$  et  $x^{m/l}$ . Les maillages utilisés pour le calcul en suivi de front (SF) de Gandin [Gan00.1] et en élément finis (FE) dans notre modèle ont été également schématisés. Nous avons aussi représenté la grille de cellules (CA) qui se superpose au maillage FE.

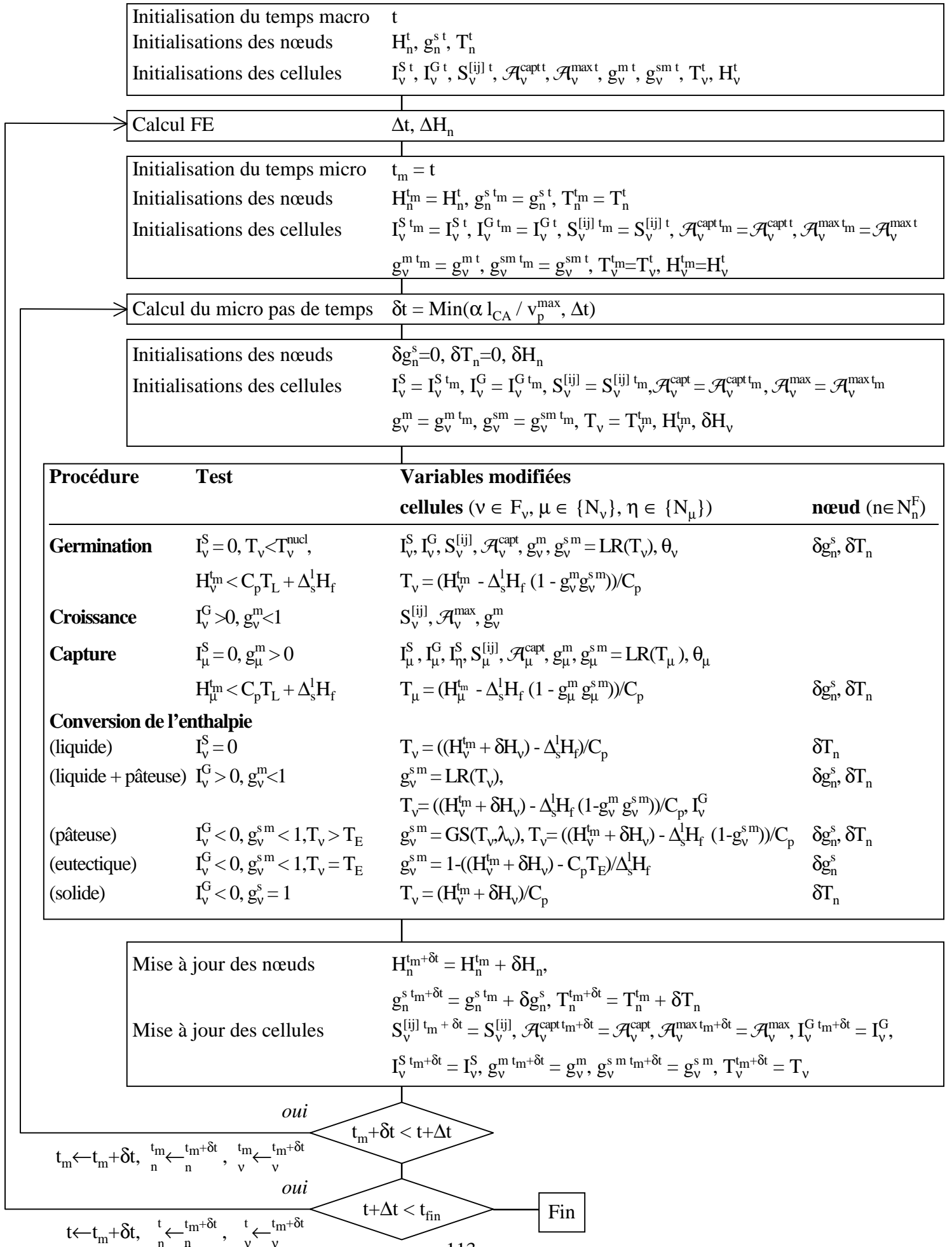
Conditions initiales/aux frontières	Symboles	Valeurs	Unités
Coefficient de transfert du refroidisseur	h	500.	Wm <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
Température du refroidisseur	T <sup>ext</sup>	100.	°C
Flux de chaleur droit	Q <sub>a</sub>	0.	Wm <sup>-2</sup>
Température initiale	T <sub>0</sub>	800.	°C
Longueur du lingot	L	0,1	m
Taille des cellules	l <sub>CA</sub>	50.10 <sup>-6</sup>	m
Pas de temps macro	Δt	10 <sup>-3</sup>	S
Nombre de mailles FE	N <sub>F</sub>	100	-
Propriétés	Symboles	Valeur	Unités
Conductivité thermique	κ	70.	Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>
Chaleur latente de fusion	Δ <sub>s</sub> <sup>l</sup> H <sub>f</sub>	9,5 10 <sup>8</sup>	Jm <sup>-3</sup>
Capacité calorifique	C <sub>p</sub>	2,6 10 <sup>6</sup>	Jm <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
Température de fusion	T <sub>M</sub>	663,5	°C
Température de liquidus	T <sub>L</sub>	618.	°C
Température eutectique	T <sub>E</sub>	577.	°C
Composition nominale	w <sub>0</sub>	7.	wt%Si
Coefficient de partage	k	0,13	-
Pente du liquidus	m	-6,5	Kwt% <sup>-1</sup>
Paramètres cinétiques de croissance $v_p = A_2 \Delta T^{N_2}$	A <sub>2</sub>	2,9 10 <sup>-6</sup>	ms <sup>-1</sup> K <sup>-N<sub>2</sub></sup>
	N <sub>2</sub>	2,7	-

Tab. IV.1 : Paramètres définissant les conditions thermiques imposées au lingot et les propriétés physiques de l'alliage Al-7%*pds* Si. Les paramètres du calcul réalisé pour obtenir les résultats présentés sont également indiqués.

Nous avons résumé l'algorithme décrivant les étapes de calcul successives réalisées dans le modèle de couplage thermique à la figure IV.3, avec prise en considération de la ségrégation à l'échelle microscopique (microségrégation).

Fig. IV.3 [Gui03]: Algorithme de couplage thermique entre les méthodes de résolution FE et CA..

(LR : 'Lever Rule' : loi de solidification des leviers, GS : Gulliver-Scheil : loi de solidification de Gulliver-Scheil)



Les évolutions des température et fraction de solide obtenues avec notre modèle CAFE sont présentées sur les figures IV.4 a) et b) pour différents points du lingot. Nous avons superposé ces courbes avec les résultats obtenus aux mêmes points par l'algorithme en suivi de front (SF) de Gandin [Gan00.1]. Le modèle que nous proposons permet de retrouver le résultat fourni par la solution en suivi de front. La superposition des courbes en température et le faible écart mesuré entre les courbes en fraction de solide valident notre démarche. Les écarts les plus importants sont observés sur les derniers nœuds lorsque le gradient de température devient faible [Gan00.1].

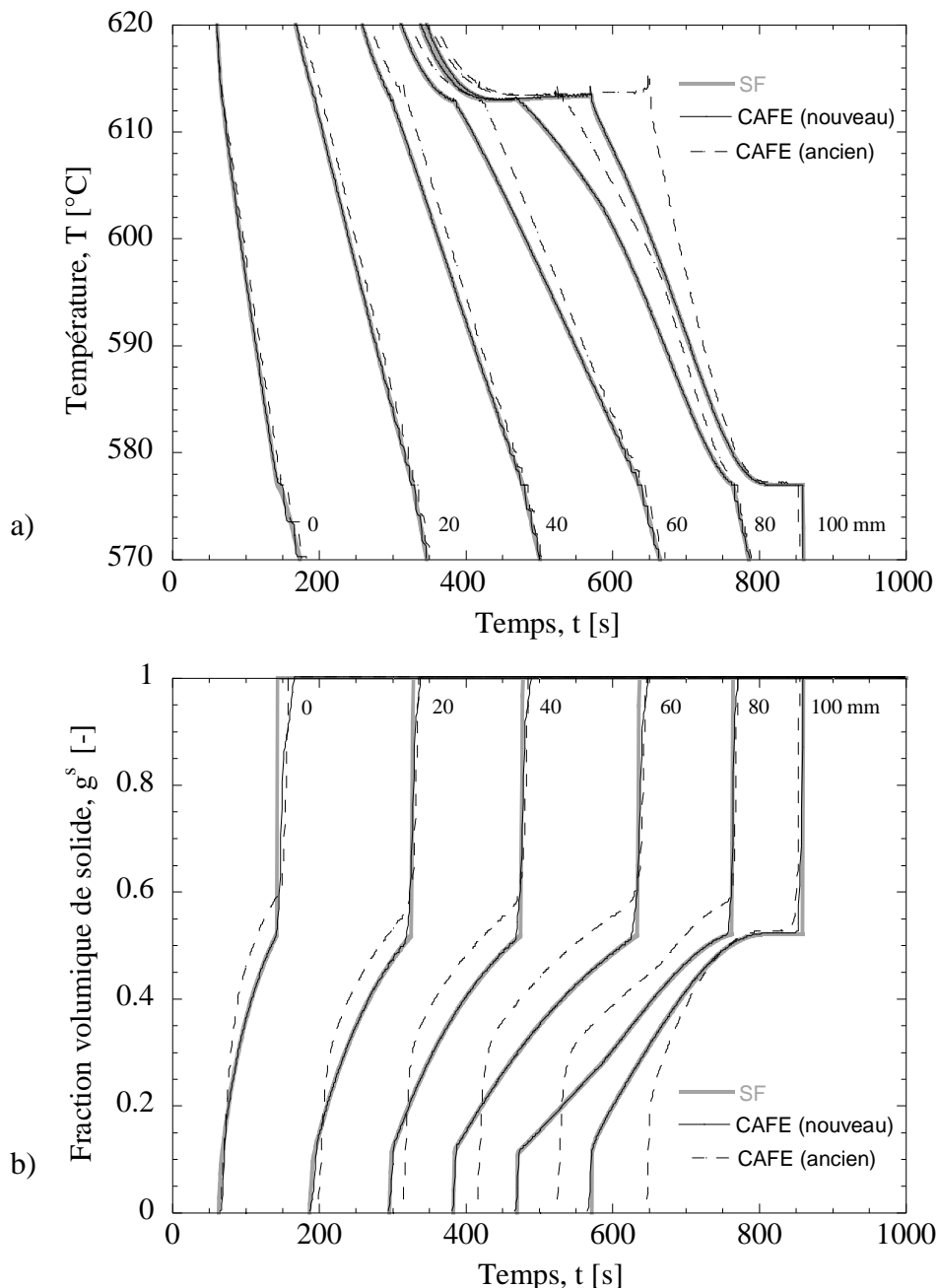


Fig. IV.4 : Evolution des températures (a) et des fractions de solide (b) dans le lingot. Les courbes ont été représentées pour 6 points régulièrement espacés de la paroi gauche (0 mm) à la paroi droite du lingot (100 mm) et dont les positions sont indiquées. Les résultats représentés ont été obtenus avec la méthode en suivi de front (SF - traits gris épais) et avec le couplage développé (CAFE (nouveau) - traits fins). Les résultats précédemment obtenus avec l'ancien couplage CAFE [Gan94] sont également présentés (CAFE (ancien) - traits discontinus).

Simultanément une remontée brusque en température est observable sur les courbes IV.4 a) en début de solidification. Celle-ci n'est pas causée par l'apparition d'un phénomène de recalescence mais par un mauvais suivi de la position du front à l'intérieur du domaine. Elle est attribuable au couplage 'faible' entre les approches macroscopiques et microscopiques. En effet, nous n'avons pas cherché à réaliser à nouveau des calculs microscopiques après avoir modifié les températures et fractions de solide aux nœuds. Il n'y a pas eu d'itérations effectuées jusqu'à convergence, ce qui aurait constitué un couplage 'fort'.

D'autre part, la comparaison que ces résultats nous permettent de faire avec le couplage CAFE précédemment développé [Gan94] montre une très nette amélioration. Tant les écarts observés sur les courbes de température que de fraction volumique de solide montrent qu'il existait une différence importante entre les évolutions prédites et celles attendues. Ce précédent modèle supposait notamment que la fraction volumique de zone pâteuse était égale à l'unité dès la capture de la cellule. Ainsi, les cellules avaient tendance à libérer une quantité de chaleur latente plus importante. Pour cette raison, les courbes en température apparaissent décalées vers la droite, montrant que le refroidissement est retardé par rapport à la solution exacte. Le même phénomène est observé, aux premiers instants de la solidification, sur les courbes d'évolution de la fraction volumique de solide (Fig. IV.4 b). L'introduction de cette fraction volumique de zone pâteuse,  $g^m$ , apporte un degré de liberté supplémentaire dans les prédictions de l'évolution thermique et permet d'approcher le processus de solidification de manière plus précise. Un autre point important est la mise à jour des températures et fractions de solide des cellules au cours de leur solidification en tenant compte de leur variation d'enthalpie interpolée.

Le tableau IV.2 présente un bilan des écarts mesurés entre le modèle CAFE et celui développé en suivi de front. Le nouveau couplage proposé présente une très nette amélioration. Pour les mêmes paramètres de calcul,  $N_F = 100$ ,  $\Delta t = 10^{-3}$  s,  $l_{CA} = 50$   $\mu\text{m}$ , l'écart moyen en température est divisé par 20 et l'écart maximal par 4. D'autre part, partant de la situation  $N_F = 100$ ,  $\Delta t = 10^{-1}$  s,  $l_{CA} = 50$   $\mu\text{m}$ , la lecture de ce tableau montre que le changement des paramètres, autres que le macro pas de temps, ne modifie que faiblement les écarts.

	$N_F$ [-]	$\Delta t$ [s]	$l_{CA}$ [ $\mu\text{m}$ ]	$ \Delta T ^\mu$ [ $^\circ\text{C}$ ]	$ \Delta T ^\sigma$ [ $^\circ\text{C}$ ]	$ \Delta T ^{\max}$ [ $^\circ\text{C}$ ]	$T^{\max}$ [ $^\circ\text{C}$ ]
CAFE (nouveau)	100	$10^{-3}$	50	0,08	0,12	3,88	572,99
	100	$10^{-1}$	50	0,30	0,29	8,75	568,16
	100	$10^{-1}$	10	0,29	0,29	8,75	568,16
	250	$10^{-1}$	50	0,38	0,35	8,84	568,16
CAFE (ancien)	100	$10^{-3}$	50	1,58	1,52	16,62	577,00

Tab. IV.2 [Gui03] : Bilan des écarts pour les courbes de températures tracées aux 6 points de la figure IV.4 entre le modèle CAFE [Gan94, Gui03] et les calculs réalisés en suivi de front [Gui00.1] : écart moyen,  $|\Delta T|^\mu$ , écart-type,  $|\Delta T|^\sigma$ , écart maximal,  $|\Delta T|^{\max}$ , et température correspondant à cet écart maximal,  $T^{\max}$ , en fonction des paramètres du calcul : nombre de mailles,  $N_F$ , macro pas de temps,  $\Delta t$ , et taille des cellules,  $l_{CA}$ .



Ainsi, la valeur  $\Delta t$  de  $10^{-3}$  s semble, en permettant de se rapprocher d'un calcul couplé, être celle qui permet d'approcher le plus la solution exacte de ce problème, fournie par le calcul SF. Ce point justifierait d'autant un développement futur du modèle pour permettre de faire des itérations entre les calculs CA et FE, permettant d'espérer alors pouvoir augmenter le pas de temps de calcul pour retrouver les résultats du modèle en suivi de front. Il est à noter cependant que le calcul réalisé avec un maillage plus fin de 250 éléments a permis de diminuer les oscillations observées avant que ne débute le phénomène de solidification sur les courbes d'évolution thermique des derniers nœuds. Ainsi, le raffinement du maillage, s'il ne permet pas de diminuer les écarts observés avec le calcul SF, augmente cependant le nombre de rétrocessions réalisées et 'lisse' les courbes. La lente et faible remontée en température observable finalement, autant sur la courbe SF que sur celle donnée par le couplage CAFE, est alors provoquée par le déplacement d'un gradient de température négatif devant le front de solidification.

### IV.3. Couplage avec phases en mouvement (macroségrégation)

Le couplage précédent peut être qualifié de 'statique' et 'fermé'. La solidification qui est déduite de la variation d'enthalpie aux nœuds ne fait pas intervenir de déplacement des phases solide et liquide et suppose que, en tout point, la composition moyenne reste inchangée et égale à  $w_0$ . Il correspond à un modèle d'interpolation/rétrocession considéré indépendamment du mouvement des phases et du transfert d'information de cellules en cellules produit par le mouvement du solide.

De manière similaire, la résolution macroscopique des équations de conservation détaillée par Jalanti [Jal00], telle que nous l'utilisons, ne tient pas compte du déplacement de la phase solide, celle-ci étant toujours prise immobile. Lorsque des grains équiaxes, libres de leur mouvement, apparaissent et se déplacent, ils modifient les champs macroscopiques. De même, le déplacement simultané du liquide et du solide et donc la force de frottement induite par leur mouvement relatif doivent être considérés. Dans cette partie nous allons présenter de quelle manière nous avons choisi de modifier les variables nodales afin de tenir compte du déplacement des phases. Nous commencerons par rappeler les principales hypothèses de notre modèle avant de nous intéresser au transport des variables macroscopiques. Nous expliquerons ensuite les raisons du changement du terme de friction volumique utilisé par Jalanti [Jal00] dans les expressions IV.11-12 et nous détaillerons le calcul de la composition moyenne dans la phase liquide aux nœuds du maillage,  $w_n^l$ . Enfin, nous présenterons la loi de solidification utilisée.

#### IV.3.1. Hypothèses principales

Le modèle couplé CAFE que nous avons développé est basé sur plusieurs hypothèses :

➤ Egalité des masses volumiques. Afin de ne pas prendre en considération les phénomènes de retrait qu'il aurait été difficile d'étudier par la méthode CA, nous avons considéré que les masses volumiques des milieux solide et liquide sont constantes et égales ( $\rho^s = \rho^l$ ). Nous avons

cependant utilisé l'approximation de Boussinesq dans la résolution de l'équation guidant le mouvement du liquide, ce qui conduit à modifier sa valeur dans le terme de force volumique lié à la gravité. La seconde exception à cette hypothèse concerne le mouvement des grains équiaxes. Afin de permettre un phénomène de sédimentation, nous leur avons imposé une masse volumique supérieure à celle du milieu liquide environnant.

➤ Différence des vitesses des domaines solide et liquide dans l'équation de conservation de la masse totale. L'équation de conservation de la masse (IV.9) est résolue à l'échelle CA, en considérant que la vitesse du domaine solide présent dans la cellule est opposée à celle du liquide environnant. Le déplacement du solide à la vitesse  $\mathbf{v}^s$  permet de calculer, à l'échelle du maillage FE, une vitesse du liquide  $\mathbf{v}^l$  qui est ainsi différente et conduit généralement à une remontée du liquide.

➤ Egalité des vitesses des domaines solide et liquide pour le transport des informations. Nous avons présenté précédemment (paragraphe III.2.3) la manière dont les informations sont déplacées de cellules en cellules. Le transport simultané des informations propres aux phases liquide et solide, conduit ainsi à considérer que, dans ce phénomène de transport à l'échelle CA, les domaines liquide et solide contenus dans la cellule se déplacent à la même vitesse. Pour une cellule  $v$  d'un amas, nous avons alors  $\mathbf{v}_v^l = \mathbf{v}_v^s = \mathbf{v}_a$ . Exception faite des évolutions résultant du calcul macroscopique FE, la dérivée particulaire des grandeurs moyennes d'enthalpie  $H$  ou de composition moyenne  $w$  d'une cellule est nulle.

Il apparaît ainsi que la ségrégation calculée à l'échelle macroscopique sera causée simultanément par le transport du liquide et la sédimentation des grains équiaxes. Nous allons détailler dans les paragraphes suivants les caractéristiques de ce couplage entre les approches CA et FE qui permettent la création d'une macroségrégation.

#### IV.3.2. Transport des variables thermodynamiques $H$ , $w$ , $T$ , $g^s$

Dans le cas d'une résolution à solide fixe des équations de conservation macroscopiques, il est possible de considérer que les propriétés des cellules sont déduites par interpolation des propriétés des nœuds. Une cellule étant plus ou moins proche d'un nœud donné, ses propriétés vont également être plus ou moins influencées par celui-ci. Les valeurs des enthalpies et des compositions moyennes des cellules sont donc déduites par interpolation des valeurs de ces termes aux nœuds les entourant, comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent. Lorsque le solide est mis en mouvement, le phénomène inverse se produit. Les propriétés des cellules varient et sont remplacées par celles d'une cellule voisine, exception faite d'une partie des cellules périphériques (Fig. III.12). Nous avons choisi d'adopter une démarche similaire à celle du modèle en température et fraction de solide précédent, en considérant une rétrocession des variations des cellules aux nœuds entourant ces cellules. Si une variable  $\xi$  évolue à l'échelle d'une cellule  $v$ , après déplacement de l'amas auquel elle appartient, de la quantité  $\delta'\xi_v$ , elle modifie la valeur de

ce même paramètre aux nœuds qui l'entourent. Pour un nœud donné  $n$ , cette variation  $\delta'\xi_n$  est proportionnelle à la variation dans la cellule  $v$  pondérée par les coefficients d'interpolation correspondant. Après déplacement de l'ensemble des amas présents, la variation au nœud de  $\xi$  correspond à une sommation de l'ensemble des  $N_v^n$  variations des cellules  $v$  (IV.31), ces variations étant nulles lorsque la cellule n'a pas eu à subir l'influence du déplacement d'un amas.

$$\delta'\xi_n = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta'\xi_{v_i} \quad (\text{IV.31})$$

Dans ce travail, quatre variables sont transportées par les cellules. Il s'agit de l'enthalpie ( $\xi = H$ ), de la composition moyenne ( $\xi = w$ ), de la température ( $\xi = T$ ) et de la fraction volumique de solide ( $\xi = g^s$ ). Successivement, on peut écrire :

$$\delta'H_n = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta'H_{v_i} \quad (\text{IV.32 a}) \quad \delta'w_n = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta'w_{v_i} \quad (\text{IV.32 b})$$

$$\delta'T_n = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta'T_{v_i} \quad (\text{IV.32 c}) \quad \delta'g_n^s = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n \delta'g_{v_i}^s \quad (\text{IV.32 d})$$

L'écriture en  $\delta'$  de ces variations permet de ne pas les confondre avec celle, en  $\delta$ , employée précédemment dans le cadre de la modélisation de la solidification et qui avaient trait à des évolutions temporelles durant le micro pas de temps  $\delta t$ . Il s'agit ici d'une variation brusque due à une mise à jour de la nouvelle position d'un amas.

### IV.3.3. Transport de la vitesse du liquide / Conservation de la masse

L'équation de conservation moyennée de la masse totale telle que résolue par Jalanti [Jal00] s'écrit sous la forme initiale IV.9, le champ de vitesse moyen,  $\mathbf{v}$ , étant de divergence nulle. Elle se base sur l'hypothèse simplificatrice que la densité de toutes les phases est constante et égale ( $\rho^s = \rho^l = \rho$ ), ce qui permet l'utilisation de la méthode de pénalisation en pression.  $\mathbf{v}$  désigne la vitesse moyenne de ces phases (Eq. IV.6).

La résolution de l'équation de conservation de la masse est faite par Jalanti [Jal00] sous l'hypothèse  $\mathbf{v}^s = \mathbf{0}$  et permet l'utilisation de la méthode de pénalisation pour calculer la vitesse débitante de liquide,  $\mathbf{u} = g^l \mathbf{v}^l$ , par les équations IV.11-12. Cependant, cette méthode de résolution est incompatible avec l'hypothèse  $\text{div } \mathbf{v}^s \neq 0$  que nous avons généralement maintenant, tant à l'échelle de l'automate que du maillage en éléments finis. En effet, la connaissance de la vitesse de sédimentation des amas déduite des équations du chapitre III, permet de calculer une vitesse moyenne de solide à l'échelle des cellules et de les rétrocéder aux nœuds. L'introduction de cette vitesse dans IV.9 donne pour valeur de la divergence de la vitesse  $\mathbf{v}$  :

$$\text{div } \mathbf{v} = \text{div} (g^l \mathbf{v}^l) + \text{div} (g^s \mathbf{v}^s) \quad (\text{IV.33})$$

Ainsi, l'expression de la divergence de  $\mathbf{v}$  se compose de la divergence de la vitesse débitante de liquide  $\mathbf{u}$  ( $= g^l \mathbf{v}^l$ ) et de la divergence du produit  $g^s \mathbf{v}^s$ , qui n'est pas nécessairement nul. Par conséquent, la divergence de  $\mathbf{v}$  étant nulle (IV.9), la divergence de  $\mathbf{u}$  prend une valeur non nulle, égale à  $-\text{div}(g^s \mathbf{v}^s)$ . L'hypothèse  $\mathbf{v}^s = \mathbf{0}$  émise par Jalanti permet l'utilisation de la méthode de pénalisation en pression, ce qui ne semble pas possible dès lors que  $\mathbf{v}^s$  est connu et différent de  $\mathbf{0}$ . En effet, le terme de pression  $P^l$  prend alors une valeur très grande due à la faiblesse du terme  $\varepsilon$ . Ceci empêche l'expression de  $P^l$ , apparaissant dans l'équation de Navier-Stokes A5.86-87 (Annexe 5), en fonction de  $\mathbf{u}$  telle que proposée en IV.14. Nous avons cependant choisi de conserver la résolution de l'équation de conservation de la quantité de mouvement du liquide (IV.11-12) sous l'hypothèse  $\text{div} \mathbf{v}^s = 0$  et  $\text{div} \mathbf{u} = -\varepsilon P^l$ . Dans ce but, nous avons décidé de calculer à l'échelle des cellules la variation de vitesse de liquide induite par la vitesse des amas et l'équation de conservation de la masse. C'est donc l'algorithme de couplage entre les méthodes CA et FE qui va permettre de tenir compte du fait que  $\text{div} \mathbf{v}^s \neq 0$  et donc  $\text{div} \mathbf{u} \neq 0$ .

Le déplacement des amas à l'échelle de la grille est induit par leur vitesse propre  $\mathbf{v}_a$ , soit  $\mathbf{v}^s = \mathbf{v}_a$ . La remontée du liquide, à la vitesse  $\mathbf{v}^l$ , due aux déplacements des grains, impose à la vitesse de déplacement moyenne,  $g^s \mathbf{v}_a + g^l \mathbf{v}^l$  d'être nulle, selon l'équation de conservation de la masse et en conservant l'approximation  $\rho^l = \rho^s$ , valeur constante. L'arrivée du solide à la vitesse  $\mathbf{v}_a$  chasse le liquide à la vitesse  $\mathbf{v}^l$  selon la même direction mais dans le sens de déplacement contraire. Ainsi la vitesse du liquide induite par le déplacement des variables d'une cellule à sa suivante produit, aux nœuds qui l'entourent, une variation de la vitesse débitante de liquide,  $g^l \mathbf{v}^l$ , égale à  $-g^s \mathbf{v}_a$ . On a pour variation totale de la vitesse débitante induite par le mouvement du solide à un nœud  $n$  :

$$\delta[g^l \mathbf{v}^l]_n = -\frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n g_{v_i}^s \mathbf{v}_a v_i \quad (\text{IV.34})$$

où  $\mathbf{v}_a v_i$  représente la vitesse de l'amas auquel appartient la cellule  $v_i$ , après déplacement de l'ensemble des amas. Cette vitesse est prise nulle si la cellule n'est pas concernée par le mouvement des amas.

#### IV.3.4. Modification du terme de friction volumique

La prise en compte du mouvement du solide impose de modifier le terme de friction volumique donné par l'équation IV.15. Nous avons choisi de le remplacer par l'expression proposée par Wang et al. [Wan95] :

$$\mathbf{M} = g^l \beta^2 \frac{\mu}{r_e^2} (g^l \mathbf{v}^l - g^l \mathbf{v}^s) \quad (\text{IV.35})$$

où  $r_e$  correspond au rayon moyen des enveloppes des grains et  $\beta$  est un paramètre adimensionnel, appelé rayon normalisé, égal à :

$$\beta = \frac{r_e}{\sqrt{K}} \quad (\text{IV.36})$$

IV.3.4.a. Calcul de la force de friction volumique  $M$ 

L'introduction de l'expression (IV.36) dans l'équation (IV.35) permet de retrouver la précédente valeur de la force de friction volumique (Eq. IV.15). De plus, l'équation (IV.35) fait intervenir la vitesse relative du liquide par rapport au solide, ce dernier étant considéré comme mobile. Wang et Beckermann [Wan95] proposent de prendre en considération, dans l'expression de  $\beta$ , les deux types de liquide qu'il est possible de définir : le liquide extradendritique (exposant  $f$ ) présent en dehors des enveloppes granulaires et le liquide interdendritique (exposant  $d$ ), en contact avec le solide dans l'enveloppe des grains. En raison des contacts différents qu'ils ont avec la phase solide, il leur correspond des perméabilités également différentes. Pour cela, Wang et Beckermann définissent deux rayons normalisés sous la forme des variables  $\beta^f$  et  $\beta^d$ , fonctions des perméabilités relatives aux deux milieux :

$$\beta^f = \frac{r_e}{\sqrt{K^f}} \quad (IV.37)$$

$$\beta^d = \frac{r_e}{\sqrt{K^d}} \quad (IV.38)$$

Ils expriment la valeur prise par  $\beta$  à partir de ces termes et de la valeur de la fraction de liquide extradendritique,  $g^f$ , en utilisant la corrélation proposée par Churchill et Usagi [Chu72] sur les perméabilités :

$$K = \left\{ [(1-g^f) K^d]^n + [K^f]^n \right\}^{1/n} \quad (IV.39)$$

où  $n$  est un paramètre qu'il convient de calculer.

Cette relation est similaire à celle qui peut être écrite sur les valeurs du paramètre  $\beta$  :

$$\beta = \frac{\beta^d}{\left( (1-g^f)^n + \left( \frac{\beta^d}{\beta^f} \right)^{2n} \right)^{\frac{1}{2n}}} \quad (IV.40)$$

L'utilisation de ce type de formule permet de retrouver les valeurs des perméabilités attendues dans les deux cas limites :  $g^f \rightarrow 0$  où le milieu est entièrement occupé par des grains fixes car il n'existe plus de liquide extradendritique et  $g^d \rightarrow 0$  où les grains dendritiques occupent tout le volume de leurs enveloppes, ne permettant pas à ces dernières d'être poreuses.

La valeur de  $\beta_d$  correspondant à la perméabilité propre aux enveloppes dendritiques s'exprime à partir de la relation de Carman-Kozeny [Car56] :

$$K^d = \frac{(1-g^{sm})^3}{5 \left( A^{s/l} / V_e \right)^2} \quad (IV.41)$$

où  $g^{sm}$  est la fraction de solide interne aux enveloppes dendritiques,  $A^{s/l}$ , l'aire d'interface solide/liquide et  $V_e$  le volume d'enveloppe.

La relation (IV.41) permet d'écrire  $\beta^d$  sous la forme :

$$\beta^d = \frac{3 \sqrt{5} S^{s/l}}{\psi S_e (1-g^{sm})^{3/2}} \quad (IV.42)$$

$\psi$  est le facteur de forme de l'enveloppe choisie pour les grains.  $S^{s/l}$  est égal au rapport de l'aire interfaciale  $A^{s/l}$  au volume du système,  $V_0$ , et correspond à la concentration volumique d'aire d'interface entre liquide et solide. Dans le cadre de leur étude sur la solidification des grains équiaxes [Wan96.1], Wang et Beckermann prendront cette valeur égale à :

$$S^{s/l} = \frac{2}{\lambda_2} \quad (IV.43)$$

Cependant cette valeur n'est pas celle utilisée par Jalanti [Jal00] dans le cadre de son étude sur la résolution macroscopique de l'équation de conservation de la quantité de mouvement du liquide. Pour retrouver la valeur de perméabilité qu'il détermine, nous sommes conduits à prendre :

$$S^{s/l} = \frac{6}{\lambda_2} g^{sm} (1-g^f) \quad (IV.44)$$

Nous avons examiné les différentes expressions de  $S^{s/l}$  selon la géométrie choisie pour les bras des dendrites en Annexe 6.

$S_e$  est la concentration volumique d'aires des enveloppes de grains, égale au rapport de l'aire totale des enveloppes au volume du système  $V_0$ . Elle est donnée par l'expression [Wan96.1] :

$$S_e = \frac{3 (1-g^f)}{\psi R_e} \quad (IV.45)$$

$\beta^f$  est calculé à partir du modèle de Happel [Hap58] par la relation :

$$\beta^f = \left( \frac{9}{2} (1-g^f) \frac{2 + \frac{4}{3} \eta^5}{2 - 3 \eta + 3 \eta^5 - 2 \eta^6} \frac{C_f}{C_g} \right)^{1/2} \quad (IV.46)$$

où  $\eta$  vaut  $(1 - g^f)^{1/3}$ .

Les paramètres  $C_g$  et  $C_f$  sont des termes correctifs dont l'utilisation est identique à celle des termes que nous avons fait intervenir, avec la même notation, dans le calcul des vitesses de sédimentation des amas, au paragraphe III.3.3. Ils permettent, respectivement, de tenir compte de la non-sphéricité des enveloppes ( $C_g$ , facteur correctif de forme) et de leur perméabilité ( $C_f$ , facteur correctif de porosité).

L'expression de  $C_g$  est déduite du travail de Wang et al. [Wan95] comme une fonction de la valeur de la fraction volumique de liquide extradendritique  $g^f$  :

$$\text{si } 0 < g^f < 0.7 : \quad C_g = \Psi^2 \quad (\text{IV.47 a})$$

$$\text{si } 0.7 < g^f < 1 : \quad C_g = 1.26 \log\left(\frac{\Psi}{0.163}\right) \quad (\text{IV.47 b})$$

$C_f$  est défini par la relation analytique de Neale et al. [Nea73] donnée à l'équation (II.93) en remplaçant  $\beta$  par  $\beta^d$  :

$$C_f = \frac{2 \beta^{d^2} \left(1 - \frac{\tanh(\beta^d)}{\beta^d}\right)}{2 \beta^{d^2} + 3 \left(1 - \frac{\tanh(\beta^d)}{\beta^d}\right)} \quad (\text{IV.48})$$

Enfin, le paramètre  $n$  de l'équation (IV.40) doit être déterminé indépendamment. Après comparaison de leurs résultats avec ceux de Neale et al. [Nea73], Wang et al. [Wan95] proposent comme expression :

$$n = 0,176 \log(\beta^d) + 0,275 \quad (\text{IV.49})$$

Les termes intervenant dans l'expression de  $\mathbf{M}$  sont calculés à la fin de l'ensemble des micro pas de temps pour chaque nœud  $n$  et sont retournés dans le calcul macroscopique où l'expression (IV.35) remplace l'expression (IV.15).  $\mathbf{M}$  représente alors un champ de vecteurs où seule la valeur de la vitesse débitante de liquide aux nœuds,  $\mathbf{u}_n = [g^l \mathbf{v}^l]_n$ , est inconnue.

#### IV.3.4.b. Détermination des paramètres

Le détail des termes intervenant dans l'équation (IV.35), donnés dans les équations (IV.36-49), permet de calculer  $g^l \beta^2 \frac{\mu}{r_e}$  et  $\mathbf{v}^s$  après avoir défini certaines valeurs :

$g_n^f$  : La valeur de la fraction de liquide extradendritique  $g_n^f$  aux nœuds est donnée par la sommation des fractions de liquide des cellules:

$$g_n^f = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n g_{v_i}^f \quad (\text{IV.50})$$

où  $g_{v_i}^f$  est égal à 0 si la cellule  $v_i$  est partiellement solidifiée ( $g_{v_i}^s \neq 0$ ) et à 1 si la cellule est entièrement liquide ( $g_{v_i}^s = 0$ ) c'est-à-dire non capturée.

$r_{e_n}$  : Le rayon  $r_{e_n}$  des enveloppes de grain est calculé en moyennant le rayon  $r_{e_{v_i}}$  des amas auxquels appartiennent les cellules  $v_i$  qui voient le nœud  $n$ ,  $r_{e_{v_i}}$  étant pris nul pour les cellules liquides :

$$r_{e_n} = \frac{1}{\Lambda_n (1-g_n^f)} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n r_{e_{v_i}} \quad (\text{IV.51})$$

$g_n^{s,m}$  : La fraction de solide interne  $g_n^{s,m}$  est le rapport de la fraction de solide et de la fraction d'enveloppe, cette dernière étant égale à  $1 - g_n^f$  :

$$g_n^{s,m} = \frac{g_n^s}{1 - g_n^f} \quad (IV.52)$$

Pour les enveloppes octaédriques sur lesquelles nous avons choisi de travailler, nous conserverons la valeur du facteur de forme donnée par l'équation III.56. De même, dans un souci de simplification, l'espacement dendritique secondaire  $\lambda_2$  est constant durant l'ensemble du calcul et identique sur tous les amas.

#### IV.3.5. Calcul de $w_n^l$

Pour un macro pas de temps  $\Delta t$  donné, lors du dernier calcul en micro pas de temps réalisé, la composition en éléments d'alliage dans la phase liquide aux nœuds du maillage,  $w_n^l$ , est calculée. Cette valeur est ensuite utilisée afin de résoudre l'équation de conservation du soluté (Annexe 5), qui nécessite de connaître les valeurs des compositions en soluté aux nœuds. On prédit ainsi l'évolution du champ macroscopique de composition [Jal00]. Nous avons choisi de calculer la composition liquide moyenne au nœud  $n$ ,  $w_n^l$ , à partir des valeurs des compositions liquides des cellules  $v_i$  vues par ce nœud. De manière similaire aux équations de rétrocession, nous avons :

$$w_n^l = \frac{1}{\Lambda_n g_n^l} \sum_{i=1}^{N_v^n} c_{v_i}^n g_{v_i}^l w_{v_i}^l \quad (IV.53)$$

Les valeurs de la composition en éléments d'alliages des cellules  $v_i$  liquides sont égales aux compositions moyennes ( $w_{v_i}^l = w_{v_i}$ ). Celles des cellules entièrement solidifiées ont été représentées dans l'expression (IV.53), mais n'interviennent pas en pratique dans le calcul, la valeur de la fraction volumique de liquide,  $g_{v_i}^l$ , étant alors nulle. Enfin, la valeur des cellules partiellement ou totalement pâteuses est calculée à partir des compositions des domaines liquides en présence tels qu'ils sont schématisés à la figure IV.5 pour une cellule  $v$ . On peut distinguer celui situé à l'intérieur de la forme de croissance (d) et celui présent à l'extérieur (e).

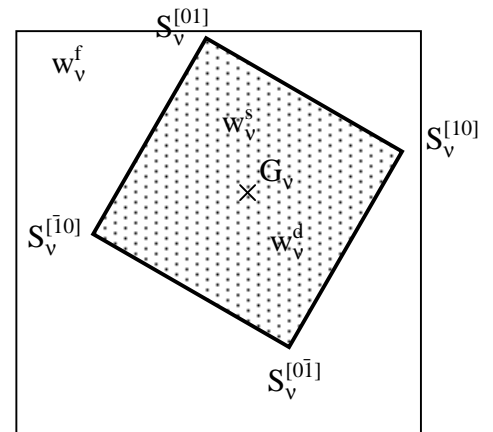


Fig. IV.5 : Schéma de la forme de croissance propre à une cellule et des domaines qu'elle contient : le liquide interne (d) et le solide (s). Hors de cette forme de croissance, se trouve le liquide externe (f). La forme de croissance ne recouvre pas encore la cellule et ses voisines et la fraction de zone pâteuse,  $g_v^m$ , est inférieure à 1.

Comme nous l'avons précisé lors de notre étude sur les cinétiques de croissance dendritique, nous avons supposé que le liquide situé hors de la zone pâteuse de la cellule a pour composition,  $w_v^f$ , la composition moyenne de la cellule,  $w_v$ . De plus, nous avons supposé



également que l'équilibre thermodynamique était respecté à l'intérieur du domaine pâteux de la cellule. La composition du liquide interne,  $w_v^d$ , est alors donnée par le diagramme de phases à la température  $T_v$  :

$$w_v^d = \frac{T_v - T_M}{m} \quad (IV.54)$$

Les proportions volumiques de ces domaines liquides dans la cellule sont égaux à  $g_v^m (1 - g_v^{s,m})$ , pour le liquide interne, et à  $(1 - g_v^m)$ , pour le liquide externe. La fraction volumique totale de liquide dans la cellule est égale à  $(1 - g_v^m g_v^{s,m})$ . De ces valeurs, on déduit que la composition moyenne du liquide dans la cellule est égale à :

$$w_v^l = \frac{g_v^m (1 - g_v^{s,m}) w_v^d + (1 - g_v^m) w_v^f}{1 - g_v^m g_v^{s,m}} \quad (IV.55)$$

Dans le cas particulier où le domaine pâteux recouvre la cellule  $v$  et ses voisines, la fraction volumique  $g_v^m$  est égale à 1 et on trouve l'égalité attendue entre  $w_v^l$  et  $w_v^d$ .

Lorsque le nœud est solide ou proche de le devenir, la fraction de liquide  $g_n^l$  est nulle ou alors extrêmement faible. La relation (IV.53) ne peut plus être utilisée. Ainsi, à partir d'une valeur seuil de  $10^{-3}$  pour le terme  $g_n^l$ , et pour ce calcul particulier, on considère que l'ensemble des cellules  $v$  sont solidifiées. L'équation (IV.53) est alors remplacée par sa valeur limite aux faibles fractions de liquide  $w_v^l$  :

$$w_n^l = \frac{1}{\Lambda_n} \sum_{v=1}^{N_v^n} c_v^n w_v^l \quad (IV.56)$$

#### IV.3.6. Loi de solidification

La prise en considération du mouvement du liquide à l'échelle du maillage FE impose également de s'intéresser à la macroségrégation et de résoudre les équations de conservation du soluté (Annexe 5). La composition évoluant à l'échelle macroscopique, elle est également modifiée à l'échelle des cellules, par un processus similaire à celui décrit par les équations (IV.17) et (IV.18) et le calcul des variations de composition moyenne se rajoute à celui de l'enthalpie. Ainsi, durant le macro pas de temps  $\Delta t$ , les calculs FE donnent une évolution de la composition moyenne aux nœuds de  $w_n(t)$  à  $w_n(t + \Delta t) = w_n(t) + \Delta w_n$ . A l'échelle CA, durant le micro pas de temps de calcul  $\delta t$ , entre les instants  $t_m$  et  $t_m + \delta t$ , on considère que la variation de composition au nœud  $n$  est :

$$\delta w_n = \frac{\delta t}{\Delta t} \Delta w_n \quad (IV.57)$$

Pour une cellule  $v$  d'un élément  $F_v$ , la variation de composition que connaît la cellule  $v$  durant  $\delta t$ ,  $\delta w_v^{int}$ , est donnée par :

$$\delta w_v^{int} = \sum_{i=1}^{N_n^F} c_v^{n_i} \delta w_{n_i} \quad (IV.58)$$

Cette variation de composition moyenne s'ajoute à  $w_v(t_m)$  et donne la nouvelle composition de la cellule à  $t_m + \delta t$ ,  $w_v(t_m + \delta t) = w_v(t_m) + \delta w_v^{int}$ .

Lorsque la cellule  $v$  est entièrement liquide ou solide, sa fraction volumique de solide n'évolue pas et la variation de son état est donnée par les équations IV.23 ou IV.28 où  $\delta H_v^{int}$  est calculée à l'aide de l'équation IV.18. De même, si la température de la cellule rejoint la température eutectique, son état varie selon l'équation IV.27, à moins que la cellule ne soit déjà totalement solide (Eq. IV.28).

Si la cellule est partiellement solidifiée sans que sa température n'ait atteint l'eutectique ( $T_v > T_E$ ), on relie  $T_v$  et  $g_v^{s,m}$  par une loi de solidification. La composition de la cellule évoluant au cours du temps, il n'est pas possible d'utiliser la loi de Gulliver-Scheil telle que nous l'avons présentée, la cellule n'étant plus un système fermé. Nous avons choisi de reprendre la loi des leviers afin de prédire la microségrégation à l'intérieur de la cellule, autant pour  $g_v^m < 1$  que pour  $g_v^m = 1$ . Le liquide interne à la zone pâteuse et le solide sont à composition uniforme, donnée par l'équilibre thermodynamique des phases, et, à l'instant  $t_m + \delta t$ , on a pour fraction interne de solide :

$$g_v^{s,m} = \frac{1}{1-k} \frac{T_L - T_v}{T_M - T_v} \quad (IV.59)$$

où la température de liquidus  $T_L$  est celle relative à la composition  $w_v(t_m + \delta t)$ . Cette relation reste également valable lorsque  $g_v^m$  est égal à l'unité et  $g_v^{s,m}$  et  $g_v^s$  se confondent.

Connaissant la fraction volumique de zone pâteuse  $g_v^m$  à  $t_m + \delta t$  par le calcul de la cinétique des pointes, on peut résoudre le système posé par les équations IV.19 et IV.59. On obtient ainsi les températures,  $T_v$ , et fraction de solide interne,  $g_v^{s,m}$ , à  $t_m + \delta t$ . Selon l'état, on connaît alors les variations de température,  $\delta T_v$ , et de fraction solide,  $\delta g_v^s$ , de chaque cellule  $v$  durant  $\delta t$ . Ces variations sont rétrocédées aux nœuds qui les entourent par les mêmes sommations (IV.29) et permettent de faire varier ces températures et fractions à l'échelle du maillage FE.

#### IV.4. Algorithme général détaillé

La figure suivante (Fig. IV.6) décrit l'algorithme de couplage avec prise en compte de la macroségrégation et du mouvement des phases liquide et solide. En ce sens, il élargit et complète l'algorithme donné à la figure IV.3 qui se limitait à la description d'un couplage thermique avec des grains statiques. Nous avons également souligné visuellement ici les différences existantes avec l'algorithme précédent.

*Fig. IV.6 : Algorithme du couplage entre le modèle en automates cellulaires (CA) et en éléments finis (FE) avec prise en compte des mouvements des phases en présence et de la ségrégation à l'échelle macroscopique. En rouge sont indiquées les différences avec l'algorithme présenté à la figure IV.3. (LR : 'Lever Rule' - loi de solidification des leviers).*

Initialisation du temps macro	$t$
Initialisations des nœuds	$H_n^t, w_n^t, u_n^t, g_n^{s,t}, T_n^t$
Initialisations des cellules	$I_v^{S,t}, I_v^{G,t}, S_v^{[ij]t}, \mathcal{A}_v^{capt,t}, \mathcal{A}_v^{max,t}, g_v^{m,t}, g_v^{sm,t}, T_v^t, H_v^t, w_v^t, u_v^t$

Calcul FE	$\Delta t, \Delta H_n, \Delta w_n, \Delta u_n$
-----------	--

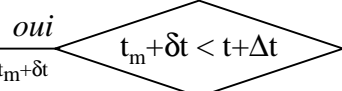
Initialisation du temps micro	$t_m = t$
Initialisations des nœuds	$H_n^{t_m} = H_n^t, w_n^{t_m} = w_n^t, u_n^{t_m} = u_n^t, g_n^{s,t_m} = g_n^{s,t}, T_n^{t_m} = T_n^t$
Initialisations des cellules	$I_v^{S,t_m} = I_v^{S,t}, I_v^{G,t_m} = I_v^{G,t}, S_v^{[ij]t_m} = S_v^{[ij]t}, \mathcal{A}_v^{capt,t_m} = \mathcal{A}_v^{capt,t}, \mathcal{A}_v^{max,t_m} = \mathcal{A}_v^{max,t}$ $g_v^{m,t_m} = g_v^{m,t}, g_v^{sm,t_m} = g_v^{sm,t}, T_v^{t_m} = T_v^t, H_v^{t_m} = H_v^t, w_v^{t_m} = w_v^t$

Calcul du micro pas de temps	$\delta t = \text{Min}(\alpha l_{CA} / (v_p^{max} + v_c^{max}), \Delta t)$
------------------------------	--

Initialisations des nœuds	$\delta g_n^s = 0, \delta T_n = 0, \delta H_n, \delta w_n, \delta u_n$
Initialisations des cellules	$I_v^S = I_v^{S,t_m}, I_v^G = I_v^{G,t_m}, S_v^{[ij]} = S_v^{[ij]t_m}, \mathcal{A}_v^{capt} = \mathcal{A}_v^{capt,t_m}, \mathcal{A}_v^{max} = \mathcal{A}_v^{max,t_m}$ $g_v^m = g_v^{m,t_m}, g_v^{sm} = g_v^{sm,t_m}, T_v = T_v^{t_m}, H_v^m, \delta H_v, w_v^{t_m}, \delta w_v$

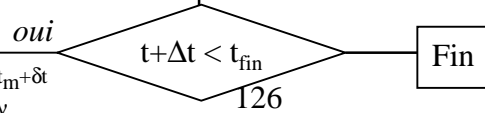
Procédure	Test	Variables modifiées	
		cellules ( $v \in F_v, \mu \in \{N_v\}, \eta \in \{N_\mu\}$ )	nœud ( $n \in N_n^F$ )
<b>Déplacement</b>	Grain mobile de $i \rightarrow j$	$I_{v/\mu}^S, I_{v/\mu}^G, S_{v/\mu}^{[ij]}, \mathcal{A}_{v/\mu}^{max}, g_{v/\mu}^m, g_{v/\mu}^{sm}, T_{v/\mu}, H_{v/\mu}, w_{v/\mu}$	$\delta' g_n^s, \delta' T_n, \delta' H_n, \delta' w_n, \delta' u_n$
<b>Germination</b>	$I_v^S = 0, T_v < T_v^{nucl},$ $H_v^m < C_p T_L(w_v^{t_m}) + \Delta_s^1 H_f$	$I_v^S, I_v^G, S_v^{[ij]}, \mathcal{A}_v^{capt}, g_v^m, g_v^{sm} = \text{LR}(T_v, w_v^{t_m}), \theta_v$ $T_v = (H_v^{t_m} - \Delta_s^1 H_f (1 - g_v^m g_v^{sm})) / C_p$	$\delta g_n^s, \delta T_n$
<b>Croissance</b>	$I_v^G > 0, g_v^m < 1$	$S_v^{[ij]}, \mathcal{A}_v^{max}, g_v^m$	
<b>Capture</b>	$I_\mu^S = 0, g_\mu^m > 0$ $H_\mu^m < C_p T_L(w_\mu^{t_m}) + \Delta_s^1 H_f$	$I_\mu^S, I_\mu^G, I_\eta^S, S_\mu^{[ij]}, \mathcal{A}_\mu^{capt}, g_\mu^m, g_\mu^{sm} = \text{LR}(T_\mu, w_\mu^{t_m}), \theta_\mu$ $T_\mu = (H_\mu^{t_m} - \Delta_s^1 H_f (1 - g_\mu^m g_\mu^{sm})) / C_p$	$\delta g_n^s, \delta T_n$
<b>Conversion de l'enthalpie</b>			
(liquide)	$I_v^S = 0$	$T_v = ((H_v^{t_m} + \delta H_v) - \Delta_s^1 H_f) / C_p$	$\delta T_n$
(liquide + pâteuse)	$I_v^G > 0, g_v^m < 1$	$g_v^{sm} = \text{LR}(T_v, w_v^{t_m} + \delta w_v),$ $T_v = ((H_v^{t_m} + \delta H_v) - \Delta_s^1 H_f (1 - g_v^m g_v^{sm})) / C_p, I_v^G$	$\delta g_n^s, \delta T_n$
(pâteuse)	$I_v^G < 0, g_v^{sm} < 1, T_v > T_S(w_v^{t_m})$	$g_v^{sm} = \text{LR}(T_v, w_v^{t_m} + \delta w_v), T_v = ((H_v^{t_m} + \delta H_v) - \Delta_s^1 H_f (1 - g_v^{sm})) / C_p$	$\delta g_n^s, \delta T_n$
(eutectique)	$I_v^G < 0, g_v^{sm} < 1, T_v = T_E$	$g_v^{sm} = 1 - ((H_v^{t_m} + \delta H_v) - C_p T_E) / \Delta_s^1 H_f$	$\delta g_n^s$
(solide)	$I_v^G < 0, g_v^s = 1$	$T_v = (H_v^{t_m} + \delta H_v) / C_p$	$\delta T_n$

Mise à jour des nœuds	$H_n^{t_m+\delta t} = H_n^{t_m} + \delta H_n + \delta' H_n, w_n^{t_m+\delta t} = w_n^{t_m} + \delta w_n + \delta' w_n,$ $u_n^{t_m+\delta t} = u_n^{t_m} + \delta u_n + \delta' u_n,$ $g_n^{s,t_m+\delta t} = g_n^{s,t_m} + \delta g_n^s + \delta' g_n^s, T_n^{t_m+\delta t} = T_n^{t_m} + \delta T_n + \delta' T_n$
Mise à jour des cellules	$S_v^{[ij]t_m+\delta t} = S_v^{[ij]}, \mathcal{A}_v^{capt,t_m+\delta t} = \mathcal{A}_v^{capt}, \mathcal{A}_v^{max,t_m+\delta t} = \mathcal{A}_v^{max}, I_v^{G,t_m+\delta t} = I_v^G,$ $I_v^{S,t_m+\delta t} = I_v^S, g_v^{m,t_m+\delta t} = g_v^m, g_v^{sm,t_m+\delta t} = g_v^{sm}, T_v^{t_m+\delta t} = T_v$



$$t_m \leftarrow t_m + \delta t, \quad t_n \leftarrow t_n^{t_m+\delta t}, \quad t_v \leftarrow t_v^{t_m+\delta t}$$

Calcul composition liquide	$w_n^{t_m+\Delta t}$
----------------------------	----------------------



$$t \leftarrow t_m + \delta t, \quad t_n \leftarrow t_n^{t_m+\delta t}, \quad t_v \leftarrow t_v^{t_m+\delta t}$$

## IV.5. Validation du couplage CAFE

Avant de nous intéresser à des comparaisons expérimentales, le modèle couplé que nous avons développé doit être validé par comparaison de ses résultats avec ceux que nous pouvons connaître analytiquement ou retrouver par un autre modèle. Au début de ce chapitre, nous avons déjà présenté l'étude du refroidissement d'un lingot solidifié unidirectionnellement. La superposition des évolutions obtenues de la température et de la fraction de solide avec celles déduites du modèle en suivi de front a permis de valider le couplage thermique. Nous allons maintenant chercher à valider le couplage du modèle avec l'écoulement du liquide et la macroségrégation. Dans ce but, nous allons présenter, dans une première partie, les résultats obtenus pour l'étude de la chute d'un bouchon poreux dans un liquide initialement au repos. Nous nous intéresserons ensuite aux résultats présentés par Jalanti [Jal00] sans prise en compte de la surfusion au front de solidification.

### IV.5.1. Colonne liquide

Nous avons cherché à valider ce modèle en nous intéressant à un problème simple de mécanique des fluides. Nous considérons un bouchon poreux sédimentant verticalement, à vitesse  $\mathbf{v}_a^s$  fixée, dans une colonne fermée remplie de liquide. Ce liquide est initialement au repos, c'est à dire immobile ( $v_0^l = 0 \text{ m s}^{-1}$ ), et est mis en mouvement par la chute du bouchon (Fig. IV.7).

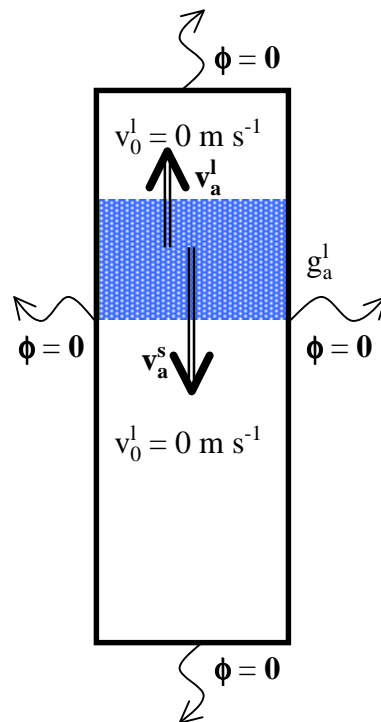


Fig. IV.7 : Schéma du problème traité. Le bouchon rectangulaire (en gris) sédimente verticalement à une vitesse  $\mathbf{v}_a^s$  imposée dans une colonne de liquide initialement immobile. Le système est isotherme et les parois adiabatiques. Aucune transformation de phase ne se produit.

La viscosité du liquide est supposée nulle afin que le mouvement du bouchon n'entraîne pas de transport de la quantité de mouvement liquide. Les largeurs de la colonne et du bouchon sont identiques. Nous considérons qu'aucune transformation de phase n'intervient et que la colonne est thermostatée (flux extérieurs nuls). La fraction volumique de liquide est uniforme dans le bouchon et vaut  $g_a^l$ . Le liquide, incompressible, remonte à travers le bouchon avec une vitesse  $\mathbf{v}_a^l$  et l'écriture du débit de liquide à travers celui-ci impose que l'on ait :

$$-\mathbf{v}_a^s = g_a^l (\mathbf{v}_a^l - \mathbf{v}_a^s) \quad (\text{IV.60})$$

La vitesse débitante de liquide,  $g_a^l \mathbf{v}_a^l$ , à travers le bouchon est donc donnée par :

$$g_a^l \mathbf{v}_a^l = -g_a^s \mathbf{v}_a^s \quad (\text{IV.61})$$

où  $g_a^s$  est la fraction volumique de solide dans l'amas, égale à  $1 - g_a^l$ .

Les valeurs des paramètres utilisés dans le calcul et la comparaison sont données au tableau IV.3.

Paramètres	Symboles	Valeurs	Unités
Fraction de liquide du bouchon	$g_a^l$	0,7	-
Vitesse du bouchon	$v_a^s$	$10^{-2}$	$\text{m.s}^{-1}$
Longueur des cellules	$l_{CA}$	100	$\mu\text{m}$
Nombre de mailles verticales	-	150	-
Nombre de mailles horizontales	-	15	-

Tab. IV.3 : Paramètres utilisés pour la simulation de la sédimentation du bouchon poreux et le calcul de la solution analytique.

Les paramètres indiqués dans le tableau IV.3 et l'équation IV.61 permettent le calcul d'une vitesse débitante de liquide, au passage du bouchon, ascendante et égale à  $0,003 \text{ m s}^{-1}$ . Les résultats de la simulation de la chute du bouchon poreux sont représentés sous la forme des évolutions temporelles de la fraction de solide et de la vitesse débitante en 5 nœuds du maillage régulièrement espacés (Fig. IV.8). En dehors de ce bouchon, le liquide est immobile, la viscosité du liquide étant nulle. Il est initialement au repos et retrouve à nouveau une vitesse nulle après le passage du corps poreux.

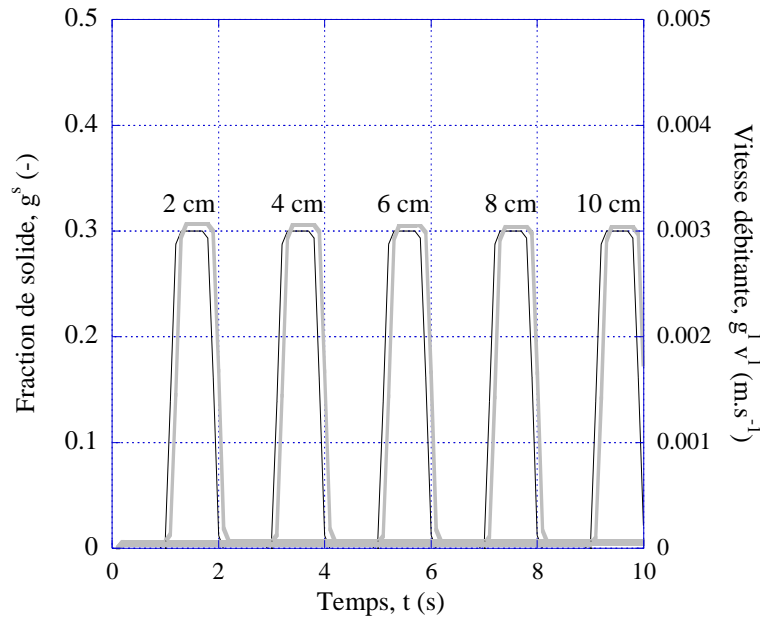


Fig. IV.8 : Evolution de  $g^l v^l$  et de  $g^s$ , aux nœuds du maillage. Les 5 positions choisies sont à mi-largeur de la colonne, aux distances depuis le sommet de la colonne indiquées sur le graphique. Les courbes noires en traits fins correspondent à l'évolution des fractions de solide, celles en traits gris épais montrent le changement de la vitesse débitante de liquide au passage du bouchon poreux.

Ces résultats obtenus en utilisant le couplage décrit au paragraphe IV.3 redonnent les valeurs analytiques attendues. Lorsque le bouchon arrive sur les nœuds choisis, la fraction de solide monte brusquement, passant de 0 à 0,3. La vitesse débitante de liquide, nulle auparavant, atteint la valeur de  $0,003 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Après que le bouchon ait dépassé le nœud, on retrouve une fraction de solide et une vitesse débitante de liquide nulle. Nous validons, dans cette simulation, la démarche adoptée pour modéliser la conservation de la masse totale avec le déplacement du solide.

#### IV.5.2. Macroségrégation

Le modèle couplé CAFE permet la modélisation de la solidification des alliages dendritiques avec la prise en considération de la surfusion au front de solidification. Il reste cependant valide dans le cas où cette même surfusion serait nulle. Ce dernier cas correspond à la modélisation du phénomène de solidification réalisée par Jalanti [Jal00]. La fraction de solide devient positive dès l'instant où la température devient inférieure à la température du liquidus. Le front de solidification passe alors par l'ensemble des points de température interpolée sur le maillage égale à la température de liquidus déduite de la composition moyenne locale.

Jalanti a repris les expériences menées par Hebditch et Hunt [Heb73,74] et décrites dans le chapitre II. Il calcule l'évolution de la solidification pour deux alliages métalliques : Pb-48%pds Sn et Sn-5%pds Pb. Nous avons choisi de comparer nos résultats à ceux qu'il obtient. Pour ce faire, nous imposons une surfusion de croissance nulle. Ceci est réalisé en utilisant pour loi de croissance une relation identique à celle utilisée pour la validation du couplage thermique

(Tab. IV.1) dans laquelle le terme  $A_2$  est multiplié par  $10^6$  ( $A_2 = 2,9$ ). La vitesse d'avancée du front,  $v_p$ , fixée par le flux d'extraction de chaleur, impose alors que la surfusion du front reste très faible durant l'ensemble du processus de solidification.

La chaleur est extraite du lingot par la paroi gauche où une condition de Fourier est appliquée, avec un coefficient de transfert thermique  $h$  et une température extérieure  $T^{\text{ext}}$ . Les trois autres surfaces sont adiabatiques. Nous avons choisi de réaliser la solidification d'un unique grain correspondant à une orientation cristallographique  $\theta = 0^\circ$ . Pour cela, l'ensemble des cellules en contact avec la paroi gauche sont des cellules germantes de surfusion caractéristique de germination  $\Delta T_v^{\text{germ}} = 0$  K. De même, dans le but de nous rapprocher des conditions de calcul de Jalanti de développement du solide à surfusion nulle, nous avons choisi le paramètre  $n_v^{\text{max}}$  égal à  $10^{10} \text{ m}^{-3}$  afin que la majorité des cellules de volume puissent germer, et ce avec  $\Delta T_v^{\text{germ}} = 0$  K également.

Nous avons réalisé le calcul avec un maillage en quadrangles raffiné dans les parties supérieures gauches. Jalanti montre qu'un tel maillage permet de mieux décrire l'évolution de la composition ainsi que le développement de la couche limite de la vitesse liquide dans ces zones. La taille des éléments suit une progression géométrique selon les deux directions  $x$  et  $y$ , de raison  $r_x$  et  $r_y$ . Le maillage obtenu est représenté sur la figure IV.9. Les paramètres du calcul et les propriétés physiques et thermodynamiques utilisés par Jalanti sont donnés dans le tableau IV.4. Nous avons repris ces valeurs dans nos propres calculs. Les résultats obtenus avec les deux approches sont présentés sur la figure IV.10.

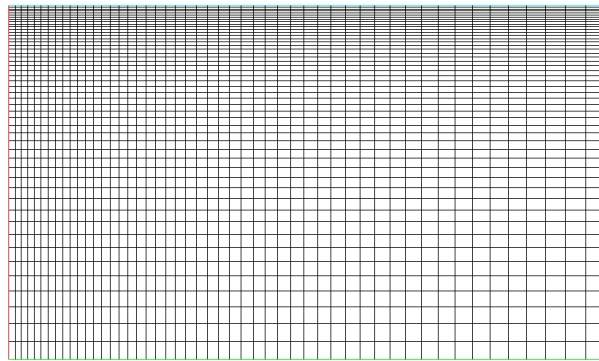


Fig. IV.9 : Maillage raffiné utilisé pour modéliser la solidification de l'alliage Pb-48%Pds Sn

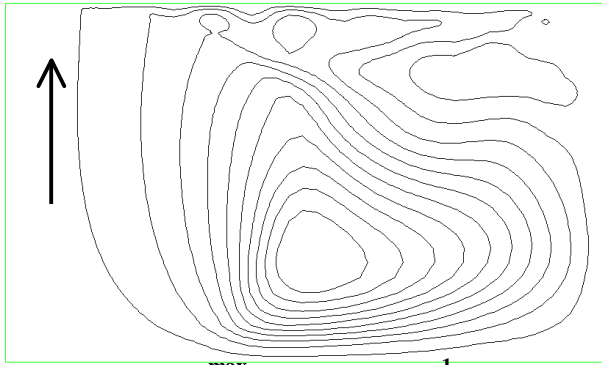
Paramètres	Symboles	Valeurs	Unités
<b>Alliage et diagramme de phase</b>			
Température de fusion	$T_M$	327,5	°C
Température eutectique	$T_E$	183	°C
Pente du liquidus	m	-2,334	°C %pds <sup>-1</sup>
Coefficient de partage	k	0,307	-
Composition eutectique	$w_E$	61,9	%pds
<b>Données thermiques et physico-chimiques</b>			
Chaleur spécifique	$C_p$	$1,8 \cdot 10^6$	$J m^{-3} °C^{-1}$
Conductivité thermique	$\kappa$	50	$W m^{-1} °C^{-1}$
Chaleur latente de fusion	$\Delta_s^l H_f$	$4,8195 \cdot 10^8$	$J m^{-3}$
Masse volumique de référence	$\rho_0$	9000	$kg m^{-3}$
Température de référence	$T_0$	232	°C
Coefficient d'expansion thermique	$\beta_T$	$1 \cdot 10^{-4}$	°C <sup>-1</sup>
Composition de référence	$w_0$	48	%pds
Coefficient d'expansion solutal	$\beta_c$	$4,5 \cdot 10^{-3}$	%pds <sup>-1</sup>
Viscosité dynamique	$\mu$	$1 \cdot 10^{-3}$	Pa s
Espacement dendritique secondaire	$\lambda_2$	40	$\mu m$
Paramètres cinétiques de croissance $v_p = A_2 \Delta T^{N_2}$	$A_2$	2,9	$m s^{-1} K^{-N_2}$
	$N_2$	2,7	-
Surfusion de germination	$\Delta T_v^{germ}$	0	K
Densité de sites de germination	$n_v^{max}$	$10^{10}$	$m^{-3}$
<b>Conditions initiales et aux limites</b>			
Température initiale	$T_0$	216	°C
Coefficient de transfert	h	400	$W m^{-2} °C^{-1}$
Température extérieure	$T^{ext}$	25	°C
Composition nominale	$w_0$	48	%pds
<b>Maillage et pas de temps</b>			
Pas de temps 'macro'	$\Delta T$	0,1	s
Nombres d'éléments selon x	$n_x$	50	-
Nombres d'éléments selon y	$n_y$	50	-
Raison géométrique selon x	$r_x$	1,025	-
Raison géométrique selon y	$r_y$	1,05	-
Taille des cellules	$l_{CA}$	200	$\mu m$

Tab. IV.4 : Paramètres physiques et propriétés thermodynamique de l'alliage Pb-48%pds Sn [Jal00]

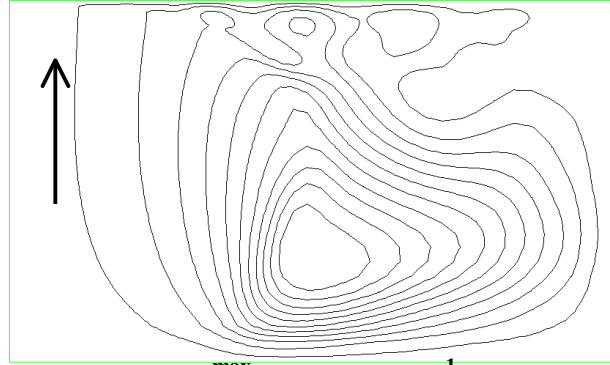


Calcul sans couplage

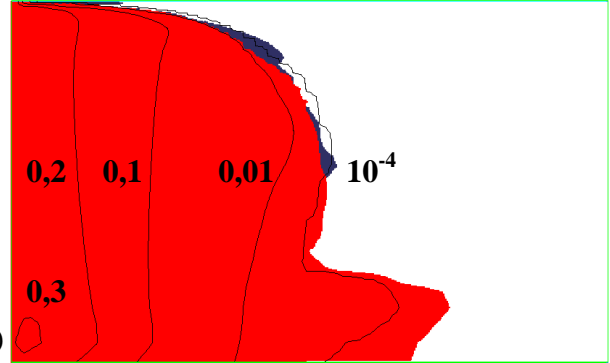
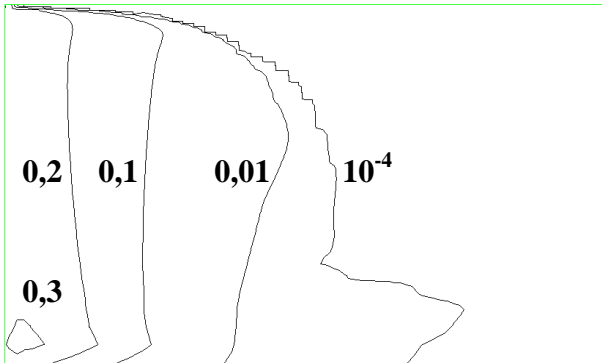
Calcul avec couplage



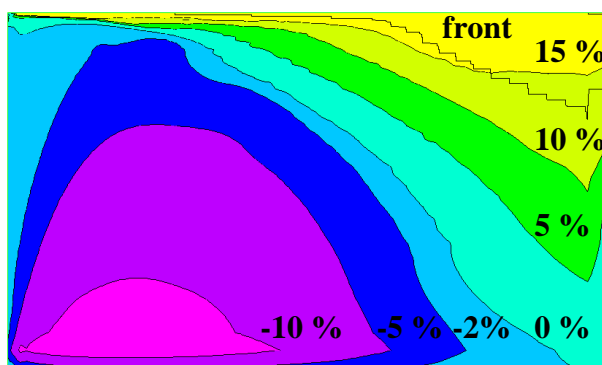
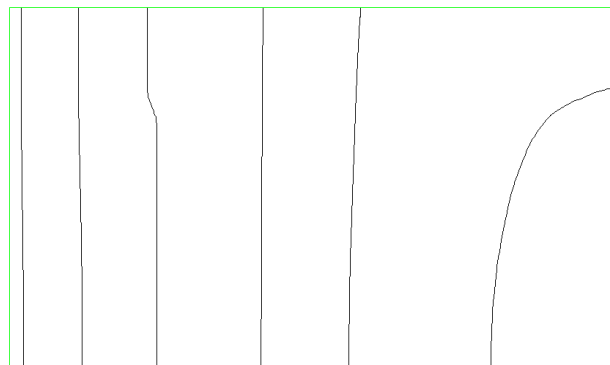
(a)



(b)



(c)



(d)

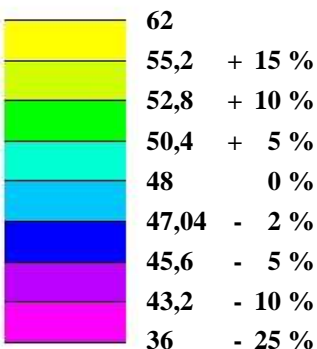
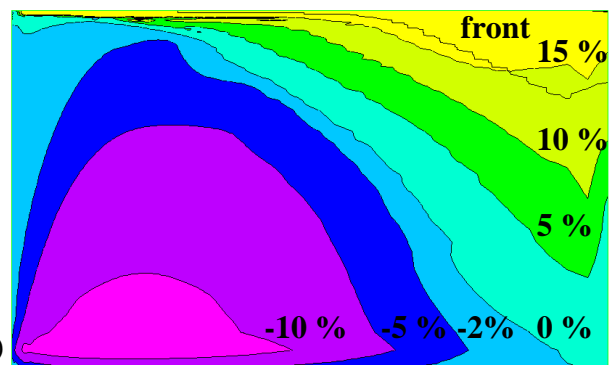


Fig.IV.10 : Comparaison des résultats obtenus avec le modèle macroscopique de Jalanti [Jal00] à gauche et ceux obtenus avec l'approche CAFE à droite. On a représenté, de haut en bas, les lignes de courant, les courbes d'isofraction de solide, les courbes isothermes et les cartes de composition (accompagnées de l'isofraction de solide  $g^s = 10^{-4}$  - 'front'). Les courbes (a) et (b) ont été obtenues après un temps de refroidissement de 50 s et les courbes (c) et (d), après un temps de refroidissement de 400 s. Dans le calcul CAFE de la figure (b) les courbes d'isofraction ont été superposées à la carte de structure qui montre l'ensemble des zones solidifiées.

La comparaison des calculs montre que les lignes de courant sont similaires et que les vitesses débitantes maximales calculées,  $\mathbf{u}^{\max}$ , à 50 s diffèrent de moins de 1%. L'étain étant de masse volumique plus faible que le plomb et la ségrégation guidant le mouvement du fluide, celui-ci tend à remonter au front de solidification pour descendre le long de la paroi droite (flèche sur les figures IV.10 a). Ce sens de circulation du liquide est correctement prédit dans les deux cas. De plus, les vitesses apparaissent plus élevées dans la partie basse. En effet, le liquide accélère lorsqu'il chute le long de la paroi droite puis décélère en traversant le domaine poreux et partiellement perméable que constitue le front de solidification. Ce profil de vitesse explique la forme des lignes de courant.

Au même instant, les courbes d'isofraction de solide calculées avec les deux modèles sont aux mêmes positions. Le raffinement du maillage a permis de les lisser dans leurs parties supérieures, par rapport à celles données par Jalanti avec un maillage régulier [Jal00]. L'utilisation d'éléments de tailles plus faibles dans la zone supérieure gauche du lingot améliore la prédiction et évite l'apparition d'oscillations importantes. Les différences entre les deux séries de courbes de fraction de solide n'apparaissent que pour la plus faible valeur représentée,  $g^s = 10^{-4}$ . Cette valeur permet de situer la position du front de solidification dans le calcul de Jalanti, réalisé sans tenir compte de la structure. Dans le calcul CAFE, le front est légèrement en avance dans sa partie basse car il se développe pour des fractions de solide inférieure à  $10^{-4}$ . En revanche, dans sa partie haute, il est en retard sur l'isofraction de solide  $10^{-4}$ .

Les isothermes, représentées 400 secondes après le début du refroidissement, sont également similaires. Celle donnant l'eutectique, à 183 °C, apparaît plus lissée avec le couplage CAFE. L'algorithme en interpolation / rétrocession permet de ne conserver que quelques cellules à la température  $T_E$ . En effet, la transformation eutectique est propre à quelques-unes d'entre elles et non à l'ensemble des cellules vues par un nœud. Ainsi, les nœuds du maillage FE ne sont plus bloqués à la température eutectique mais sur un nombre réduit de cellules. Les températures nodales évoluent donc de manière plus continue autour du palier eutectique expliquant la différence de forme des isothermes.

Enfin, les isoconcentrations sont également similaires. On note une ségrégation négative dans la partie inférieure gauche du lingot et une ségrégation positive dans la partie supérieure droite. Ce profil est dû à l'enrichissement en alliage rejeté et amené dans le liquide par le mouvement du fluide dans la zone pâteuse. L'étain étant de masse volumique plus faible que le plomb, il a tendance à s'accumuler dans la partie supérieure. Ce profil de composition explique, à 50 s, l'avancée du front dans la partie basse du lingot que l'on note grâce à la carte de structure et à l'isofraction à  $10^{-4}$ . A température donnée, une composition moyenne plus faible permet une solidification plus aisée. Il est à noter que le choix, qui sera poursuivi, de prendre une composition maximale de 62 %pds, et donc supérieure à  $w_E$ , pour le tracé des domaines ségrégés est due à notre modèle couplé. Il est effectivement possible que des domaines de composition liquide égale à  $w_E$  continuent à s'enrichir par l'apport de liquide riche en éléments d'alliage mais cela demeure un phénomène très limité.

Une autre façon de présenter la figure IV.10 est de tracer les profils de composition à plusieurs hauteurs, ce qui est réalisé sur la figure IV.11 avec 4 hauteurs différentes, précédemment utilisées par Jalanti [Jal00]. La superposition des deux séries de résultats vient encore confirmer que le couplage CAFE retrouve les résultats attendus, lorsque le front croît proche du liquidus. De manière similaire aux cartes de ségrégation, elles montrent l'enrichissement progressif en étain du lingot de sa paroi gauche à sa paroi droite et de sa paroi inférieure à sa paroi supérieure.

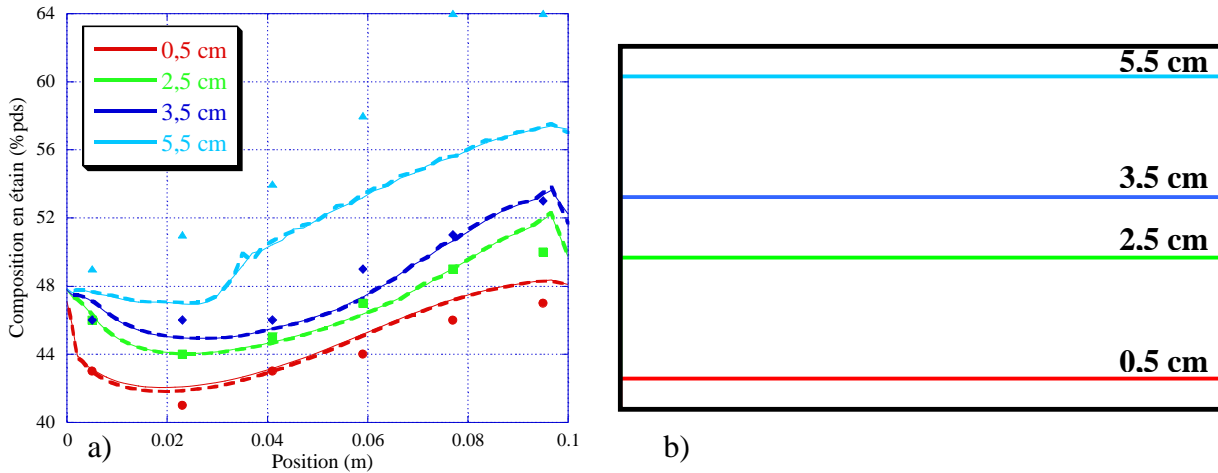


Fig. IV.11 : a) Profils de composition dans le lingot. Les 4 hauteurs choisies pour mesurer la composition sont indiquées sur les courbes correspondantes et ont été représentées en b). Elles correspondent à des positions pour lesquelles des mesures ont été effectuées par Hebditch et Hunt [Heb73, 74], représentées ici par les symboles de mêmes couleurs qui seront comparées ultérieurement à nos résultats. Les courbes en traits fins correspondent aux résultats de Jalanti [Jal00]. Nous y avons superposé nos propres résultats en traits épais discontinus.

Pour les 4 hauteurs considérées à la figure IV.11, le tableau IV.5 présente les mesures de composition réalisées par Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] sur un lingot, entièrement solidifié, d'alliage Pb-48%pds Sn. Pour une hauteur donnée, les 6 points de mesures étaient régulièrement espacés de 1,8 cm. Ces mêmes compositions sont représentées à la figure IV.11 a) sous la forme des symboles.

Abscisse (cm) \ Hauteur (cm)	0,5	2,3	4,1	5,9	7,7	9,5
0,5	43	41	43	44	46	47
2,5	46	44	45	47	49	50
3,5	46	46	46	49	51	53
5,5	49	51	54	58	64	64

Tab. IV.5 : Tableau des mesures de composition, en %pds Sn, réalisées par Hebditch [Heb73] sur un lingot entièrement solidifié d'alliage Pb-48%pds Sn.

## V. Comparaisons expérimentales

Le modèle CAFE que nous avons développé a été validé par des comparaisons faites dans des cas de solidification simples. Notre approche permet de retrouver la forme théorique d'un grain croissant dans un gradient de température. De même, nous avons obtenu les évolutions thermiques prédites par Gandin [Gan00.1] en suivi de front dans le cas de la solidification unidirectionnelle d'un lingot d'alliage Al-7%pds Si. Appliqué au cas d'un bouchon poreux se déplaçant dans une colonne liquide, le couplage développé pour prédire l'écoulement produit par le mouvement du solide et dû à la conservation de la masse permet de retrouver la vitesse débitante de liquide attendue. Enfin, le couplage entre les approches de microségrégation et de macroségrégation redonne, dans le cas d'un front de solidification croissant sans surfusion, les résultats de Jalanti [Jal00]. Ces différentes comparaisons sont autant de validations du modèle de croissance des grains que de celui de couplage entre les approches 'micro' et 'macro'.

Après ces étapes nécessaires, nous allons maintenant présenter les résultats obtenus dans la prédiction des déplacements des grains, des cartes de structure et des champs de composition et comparer ceux-ci aux mesures expérimentales. Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux expériences de chute de cristaux équiaxes menées par Gérardin [Ger02]. Nous reviendrons ensuite aux expériences de Hebditch et Hunt [Heb73, 74]. Nous présenterons la relation qui existe entre la taille de la microstructure et le profil de ségrégation. Nous montrerons l'instabilité qui se produit au front de solidification lorsque celui-ci croît dans un gradient de température faible et son influence sur les profils de concentration. Les phénomènes induits par la sédimentation des grains seront également étudiés, notamment la diminution de la composition au bas des lingots.

### V.1. Sédimentation de cristaux équiaxes

L'étude menée par Gérardin [Ger02] a consisté à suivre la sédimentation de cristaux de chlorure d'ammonium dans une colonne liquide thermostatée. Après avoir rappelé les principales caractéristiques de cette expérience, nous préciserons les propriétés physiques de l'alliage étudié et notamment les propriétés thermodynamiques que nous avons choisies d'utiliser après une recherche bibliographique. Dans une seconde partie, nous rappellerons certains des résultats obtenus par Gérardin et les comparerons à nos propres calculs.

#### V.1.1. Présentation de l'expérience

##### V.1.1.a. *Dispositif*

Gérardin a cherché à améliorer le dispositif expérimental de Albert [Alb98] inspiré de Ahuja [Ahu92.1]. L'appareillage finalement réalisé consiste en un tube rempli d'une solution de chlorure d'ammonium, de formule  $\text{NH}_4\text{Cl}$ , dissous dans de l'eau (Fig. V.1 a). La concentration en eau reste élevée, voisine de 70 % pds. Le liquide est maintenu à une température uniforme de

valeur légèrement inférieure à la température de liquidus correspondant à la composition nominale. Cette régulation thermique est assurée par un thermostat placé en entrée et sortie d'un circuit d'eau parcourant, de bas en haut, le pourtour de la colonne. Le tube cylindrique en verre contenant le mélange a pour diamètre 40 mm et pour hauteur 1500 mm.

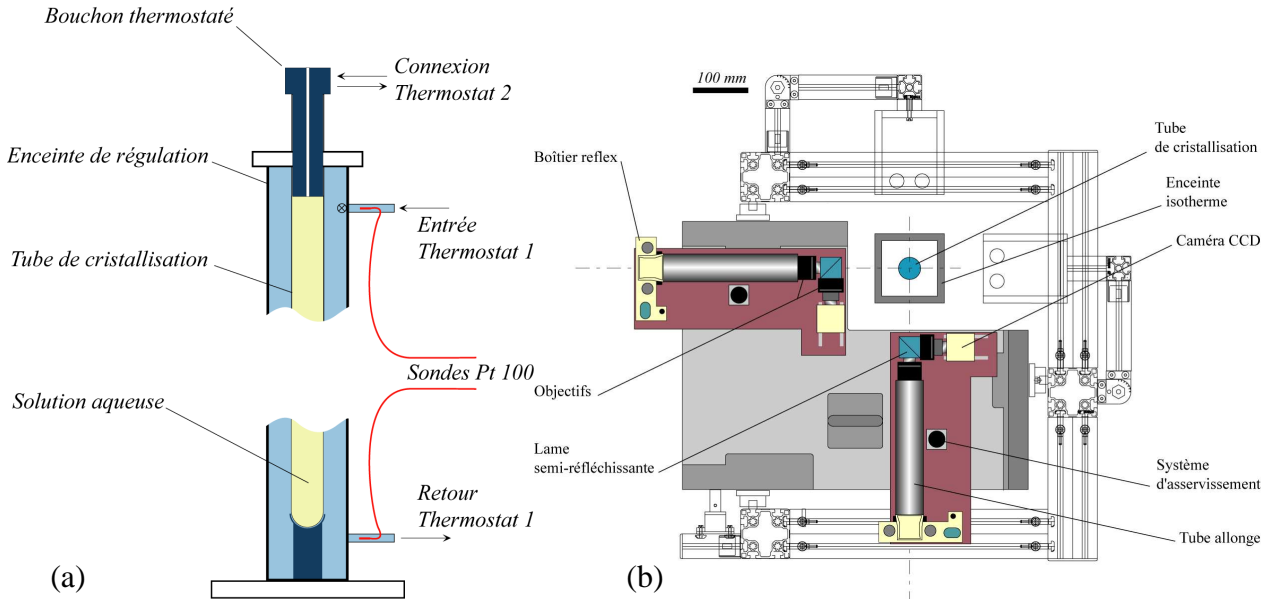


Fig. V.1 [Ger02]: a) Schéma du dispositif de cristallisation de Gérardin. b) Dispositif photographique avec les deux appareils orthogonaux attachés au bâti coulissant verticalement.

La création de cristaux de chlorure d'ammonium est assurée par l'introduction rapide d'un capillaire en verre au sommet de la colonne. La perturbation du liquide permet une germination hétérogène de micro-cristaux. En sédimentant, ceux-ci donnent naissance à des grains équiaxes dont le déplacement va être suivi à l'aide de deux caméras. Celles-ci sont placées orthogonalement entre-elles et à même hauteur sur un bâti (Fig. V.1 b). On déplace ensuite verticalement ce dernier lors d'une expérience. L'analyse des images et des positions de ces caméras permet de connaître le déplacement du grain et son parcours à travers la colonne liquide peut être décrit (Fig. V.2).

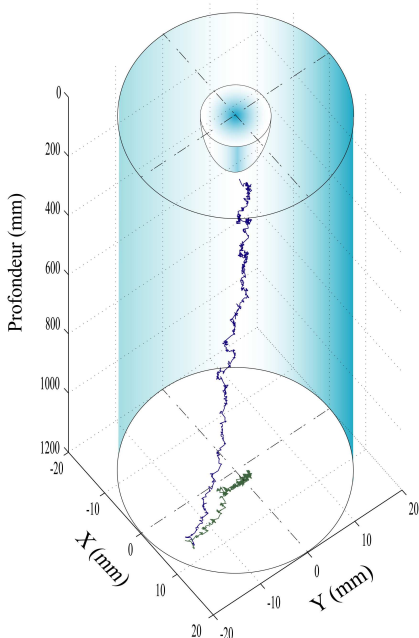


Fig. V.2 [Ger02]: Trajectoire d'un grain dans la colonne. La projection de cette trajectoire est représentée en bas du schéma, afin de montrer le déplacement transversal. La profondeur désigne la distance depuis le sommet du tube.

Des photographies prises durant les expériences permettent de connaître la taille maximale du grain à différents instants (de bord à bord). De même, en corrélant la valeur de la profondeur atteinte en fonction du temps, on connaît sa vitesse de sédimentation (composante verticale du mouvement) instantanée. Ce seront ces valeurs de diamètre maximal, de profondeur et de vitesse que nous chercherons à comparer à nos propres résultats.

### V.1.1.b. Compositions

Les expériences de chute de grains menées par Gérardin ont concerné des compositions et des surfusions variées. Nous redonnons, avec ses notations, les caractéristiques de ces expériences, accompagnées du nombre de cristaux observés pour chacune d'elles (Tab. V.1). Les compositions ont été choisies par Gérardin de manière à permettre la comparaison avec les résultats de Ramani [Ram97] et Albert [Alb98].

Série	Cristaux observés	Titre en $\text{NH}_4\text{Cl}$ (% pds)	Surfusion ( $^{\circ}\text{C}$ ) ( $\pm 0,26$ $^{\circ}\text{C}$ )
<b>A1</b>	5	27,2	1,00
<b>A2</b>	3	27,2	2,00
<b>A3</b>	1	27,2	2,50
<b>B1</b>	7	29,9	1,00
<b>B2</b>	5	29,9	2,00
<b>B3</b>	3	29,9	2,50
<b>C1</b>	2	34,1	1,00
<b>C2</b>	5	34,0	2,00
<b>C3</b>	3	34,3	2,90

Tab. V.1 : Tableau récapitulatif des expériences de chute de grains menées par Gérardin [Ger02].

### V.1.1.c. Propriétés

Il est nécessaire de préciser les propriétés thermodynamiques de la solution formée par le mélange de l'eau et du chlorure d'ammonium. Ce dernier, de structure cristallographique cubique centrée, à température ambiante, se dissout dans l'eau sous la forme d'ions  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{Cl}^-$ . Le coefficient de partage,  $k$ , entre le chlorure d'ammonium et l'eau est extrêmement faible. Le diagramme de phase donnant les états limites de l'équilibre de ce corps avec l'eau (Fig. V.3) montre qu'il se resolidifie sous une forme quasiment pure.

Les valeurs des propriétés physiques que nous avons choisies d'utiliser sont représentées en gras au tableau V.2. Ce dernier résume l'ensemble des paramètres auxquels nous nous sommes intéressés pour réaliser notre comparaison. Les raisons de nos choix méritent d'être détaillées.

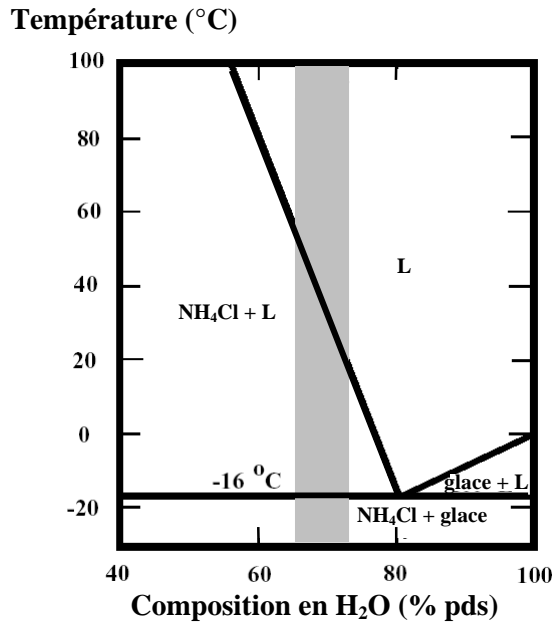


Fig. V.3 : Diagramme de phase du système  $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ , d'après Hansen [Han02]. La zone grisée correspond à celle dans laquelle s'est déroulée l'étude de Gérardin [Ger02], pour des compositions en eau comprises entre 65,7 % pds et 72,8 % pds.

Le chlorure d'ammonium cristallisant à température ambiante sous une forme quasiment pure, la grandeur  $k$  a une faible valeur. Cependant, pour des raisons numériques, il ne nous a pas été possible de prendre une valeur de  $k$  égale à  $3,9 \cdot 10^{-3}$ , comme McCay et al. [McC93.2]. Nous avons choisi de prendre une valeur 10 fois supérieure. Elle reste cependant suffisamment petite pour ne pas affecter les résultats. En effet, cette valeur entre dans le calcul de la fraction de solide interne au cristal,  $g^s$ . En première approximation, notamment au regard des faibles surfusions étudiées, ce terme évolue comme l'inverse de  $(1-k)$ . Ainsi, l'augmentation de la valeur de  $k$  de  $3,9 \cdot 10^{-3}$  à  $3,9 \cdot 10^{-2}$  ne change que très faiblement ce coefficient  $(1-k)$  qui reste voisin de l'unité.

Les valeurs de la pente du liquidus,  $m$ , et de la température de fusion,  $T_M$ , sont celles relevées par Gérardin [Ger02] lors de travaux préliminaires aux expériences. Comme le remarque ce dernier, ces valeurs montrent un certain écart avec celles fournies par la littérature. Dans le but de comparer nos résultats à ses propres expériences, nous choisirons cependant de les conserver. La température de l'eutectique est celle donnée par Hansen et al. [Han02] et la composition eutectique,  $w_E$ , est celle déduite de l'utilisation des valeurs  $T_M$ ,  $m$  et  $T_E$ .

Nous avons repris les valeurs des masses volumiques des phases solide,  $\rho^s$ , et liquide,  $\rho^l$ , utilisées par Gérardin [Ger02]. Ce dernier terme nous permet de calculer la capacité calorifique volumique  $C_p$  de notre mélange. Etant donné qu'il reste essentiellement liquide, on le prend égal au produit de la capacité calorifique massique du liquide,  $c_p^l$ , et de  $\rho^l$ . Nous déduisons de manière similaire la valeur de la chaleur latente volumique,  $\Delta_s^l H_f$ , à partir de celle de la chaleur latente massique  $\Delta_s^l h_f$ . Pour la même raison, la conductivité thermique du milieu,  $\kappa$ , est proche de celle de la phase liquide,  $\kappa^l$ . La valeur adoptée pour l'ensemble du milieu sera donc égale à celle de cette dernière et nous reprendrons l'estimation donnée par Bennon et al. [Ben87].

Propriété	Symbole	Valeur	Unité	Référence
Coefficient de partage de H <sub>2</sub> O	k	3,9.10 <sup>-3</sup> <b>3,9.10<sup>-2</sup></b>	-	[McC93.2] -
Température de fusion	T <sub>M</sub>	<b>391,73</b> 360,44	°C	[Ger02] [Ben87]
Pente de liquidus	m	<b>-5,13</b> - 4,8	K(%pds H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	[Ger02] [Ram97]
Température eutectique	T <sub>E</sub>	-16	°C	[Jan91.1]
Composition eutectique	w <sub>E</sub>	79,48	%pds	(T <sub>E</sub> - T <sub>M</sub> )/m
Masse volumique du liquide	ρ <sup>l</sup>	<b>1083</b> 1078	kg m <sup>-3</sup>	[Wit79] [Ben87]
Masse volumique du solide	ρ <sup>s</sup>	<b>1530</b> 1527	kg m <sup>-3</sup>	[Sar88] [Ahu92.1]
Capacité thermique du liquide	c <sub>p</sub> <sup>l</sup>	<b>3249</b>	J kg <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup>	[Ben87]
Capacité thermique du solide	c <sub>p</sub> <sup>s</sup>	1870	J kg <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup>	[Ben87]
Capacité thermique	C <sub>p</sub>	<b>3,519.10<sup>6</sup></b>	J m <sup>-3</sup> °C <sup>-1</sup>	c <sub>p</sub> <sup>l</sup> × ρ <sup>l</sup>
Chaleur latente massique	Δ <sub>s</sub> <sup>l</sup> h <sub>f</sub>	<b>3,138.10<sup>5</sup></b> 3,06.10 <sup>5</sup>	J kg <sup>-1</sup>	[Ben87] [Wit79]
Chaleur latente volumique	Δ <sub>s</sub> <sup>l</sup> H <sub>f</sub>	<b>3,398.10<sup>8</sup></b> 4,2.10 <sup>8</sup>	J m <sup>-3</sup>	Δ <sub>s</sub> <sup>l</sup> H <sub>f</sub> × ρ <sup>l</sup> [Han02]
Conductivité thermique du liquide	κ <sup>l</sup>	<b>0,468</b>	W m <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup>	[Ben87]
Conductivité thermique du solide	κ <sup>s</sup>	0,393	W m <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup>	[Ben87]
Conductivité thermique	κ	<b>0,468</b>	W m <sup>-1</sup> °C <sup>-1</sup>	κ <sup>l</sup>
Viscosité dynamique	μ	<b>1,03.10<sup>-3</sup></b>	Pa s	[Jan91.1]
Viscosité cinématique	ν	<b>9,5106.10<sup>-7</sup></b>	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	μ / ρ <sup>l</sup>
Coefficient de diffusion de l'eau	D <sup>l</sup>	<b>2,3.10<sup>-9</sup></b> 2,0.10 <sup>-9</sup> 1,3.10 <sup>-9</sup> 4,8.10 <sup>-9</sup>	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	[McC94][Wit79] [Ram97][Han02] [Sar88] [Ben87]
Coefficient d'expansion solutal	β <sub>c</sub>	2,8.10 <sup>-3</sup> <b>2,57.10<sup>-3</sup></b> 2,0.10 <sup>-3</sup>	%pds <sup>-1</sup>	[McC93.1] [Ben87] [Sar88]
Coefficient d'expansion thermique	β <sub>th</sub>	2,95.10 <sup>-4</sup> 3,832.10 <sup>-4</sup> 6,0.10 <sup>-4</sup> <b>3,9.10<sup>-4</sup></b>	°C <sup>-1</sup>	[McC93.1] [Ben87] [Sar88] [Wit79]
Constante de stabilité	σ*	0,081 / 0,05 <b>0,025</b> 0,026	-	[App99.2] / [Ger02] [Lan77,Lan78] [Liu95]
Coefficient de Gibbs-Thomson	Γ	3,54.10 <sup>-7</sup> 0,5 - 4,0.10 <sup>-8</sup> 5,1.10 <sup>-8</sup> <b>1,18.10<sup>-7</sup></b>	m K	[Bla97] [Ram97] [Han02] -
Paramètre de maille	a	0,66 <b>0,386</b>	nm	[Han02] [Crc95]
Espacement interdendritique	λ <sub>2</sub>	10 - 18	μm	[Han02]
Gravité	g	<b>9,81</b>	m s <sup>-2</sup>	-

Tab. V.2 : Revue bibliographique des propriétés physiques de l'alliage NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O. Sauf indications contraires, les valeurs indiquées en gras sont celles retenues pour réaliser les simulations.



Hansen et al. [Han02] mènent une discussion sur les différentes valeurs du coefficient de diffusion de l'eau dans le chlorure d'ammonium en solution. En comparant les valeurs de plusieurs expériences, ils considèrent une valeur de  $2.10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ . Néanmoins, nous avons choisi de reprendre la valeur voisine utilisée par Gérardin [Ger02] de  $2,3.10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ . On note cependant une certaine dispersion de la valeur de ce coefficient dans la littérature. Bennon et al. [Ben87] en donnent une valeur deux fois plus faible que celle de Gérardin [Ger02] et Sarazin et Hellawell [Sar88] une valeur deux fois plus élevée.

Le modèle de Appolaire [App99.2] utilisé par Gérardin [Ger02] ne permettait pas de tenir compte du mouvement du liquide créé par les gradients de concentration du liquide dus au rejet de soluté. Dans notre travail, la résolution de l'équation de Navier-Stokes permet de considérer et de modéliser ce mouvement. Pour cela, nous utiliserons la valeur du coefficient d'expansion solutal du liquide  $\beta_c$  de Bennon et Incropera [Ben87]. De même, pour simuler les mouvements convectifs produits par les gradients thermiques, nous reprendrons la valeur du coefficient d'expansion thermique du liquide  $\beta_{th}$  de Witzke et al. [Wit79].

Une attention particulière doit être apportée au choix de la constante de stabilité  $\sigma^*$ . Afin de comparer leurs résultats aux valeurs théoriques attendues, Ramani et Beckermann [Ram97] choisissent de prendre une valeur de 0,025, valeur médiane de l'encadrement donné par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77,78]. Ils rapportent également la valeur mesurée par Liu et al. [Liu95] de 0,026. A l'inverse, Appolaire [App98], considérant les résultats expérimentaux de Albert [Alb98], et rapportant les observations de Lee [Lee93] selon lesquelles  $\sigma^*$  croît en présence de convection, prend une valeur plus élevée. Ses résultats s'accordent correctement avec les valeurs attendues pour un coefficient de 0,081. Reprenant la même démarche, Gérardin [Ger02] trouve une valeur de 0,05 comme celle donnant la meilleure comparaison. La littérature reste partagée sur la valeur de  $\sigma^*$  en présence de convection [Gli04], voir sa dépendance en fonction de la composition chimique [Ram04]. Aussi, nous avons choisi de reprendre la valeur médiane de 0,025 de l'encadrement donné par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77, Lan78] :

$$\sigma^* = 0,025 \pm 0,007 \quad (\text{V.1})$$

L'estimation du coefficient de Gibbs-Thomson représente une autre difficulté, déjà relevée par Ramani et Beckermann [Ram97]. Un intervalle de valeur compris entre  $0,5.10^{-8} \text{ m K}$  et  $4,0.10^{-8} \text{ m K}$  permet d'avoir, pour ces auteurs, un accord acceptable entre la cinétique de croissance dendritique mesurée et celle attendue d'après le modèle de Ananth et Gill [Ana91]. Une valeur 10 fois plus élevée, de  $3,54.10^{-7} \text{ m K}$  a été employée par Appolaire [App99.1] pour comparer les valeurs de son modèle à celles résultant des expériences de Albert [Alb98]. La même valeur est ensuite reprise par Gérardin [Ger02]. Celle-ci provient d'un calcul réalisé par Blackmore et al. [Bla97] à partir des valeurs de l'énergie de surface  $\gamma^{s/l}$  à l'interface entre le chlorure d'ammonium et la phase liquide. Mais ils font référence à la fusion du chlorure d'ammonium et donc à une interface entre les phases liquide et solide d'un même corps, tant pour la variation d'enthalpie que pour la valeur de la température de transformation. Pour cette raison, nous avons préféré reprendre le raisonnement de Hansen et al. [Han02]. Ce raisonnement est basé

sur les énergies volumiques et interfaciales de la molécule  $\text{NH}_4\text{Cl}$  dans la maille élémentaire. Il conduit aux valeurs d'énergie d'interface solide/liquide  $\gamma^{s/l}$  et de coefficient de Gibbs-Thomson  $\Gamma$  données par les équations :

$$\gamma^{s/l} = \frac{a}{N_{\text{NH}_4\text{Cl}}} \Delta_s^1 H_f \quad (\text{V.2})$$

$$\Gamma = \frac{a}{N_{\text{NH}_4\text{Cl}}} T_L \quad (\text{V.3})$$

où  $a$  représente la longueur de la maille élémentaire,  $T_L$ , la température de liquidus et  $N_{\text{NH}_4\text{Cl}}$  le nombre de molécules  $\text{NH}_4\text{Cl}$  par maille.

Cependant, les valeurs utilisées par Hansen et al. [Han02], menant à une valeur de  $\Gamma$  de  $5,1 \cdot 10^{-8}$  m K, sont incorrectes. Le chlorure d'ammonium cristallise sous une forme cubique centrée ( $N_{\text{NH}_4\text{Cl}} = 1$ ) à basse température puis adopte une structure cubique à faces centrées ( $N_{\text{NH}_4\text{Cl}} = 2$ ) au-dessus de  $184^\circ\text{C}$  [Crc95]. Hansen [Han02] considère que la transformation se déroule dans l'ordre inverse; ce qui l'amène à proposer une valeur finale de  $\Gamma$  sous-estimée. A température ambiante, le paramètre de maille,  $a$ , est égal à  $0,386$  nm [Crc95]. Si on prend une valeur de composition moyenne sur les alliages étudiés de  $70\%$  pds  $\text{H}_2\text{O}$ , la température de liquidus,  $T_L$ , correspondante vaut  $305,8$  K. Les équations V.2 et V.3 donnent respectivement une valeur d'énergie de surface de  $0,131$  J  $\text{m}^{-2}$  et un coefficient de Gibbs-Thomson de  $1,18 \cdot 10^{-7}$  m K. Nous utiliserons cette dernière valeur dans notre travail. Il faut noter que ce raisonnement est validé par une comparaison effectuée sur des corps pour lesquels une valeur de  $\Gamma$  est connue. Nous avons ainsi étudié trois corps purs A et comparé les valeurs de  $\Gamma$  calculées à l'aide des paramètres,  $a$ ,  $T_L$  et  $N_A$  [Crc95] aux valeurs établies à partir des paramètres  $\gamma^{s/l}$  et  $\Delta_s^1 H_f$  [Fle74, Crc95] et de la relation définissant  $\Gamma$  pour un corps pur :

$$\Gamma = \frac{\gamma^{s/l}}{\Delta_s^1 H_f / T_M} \quad (\text{V.4})$$

Dans le cas particulier d'un corps pur, la température de liquidus,  $T_L$ , de l'équation (V.3) s'interprète comme la température de fusion,  $T_M$ . Les écarts entre les valeurs calculées et attendues sont données au tableau V.3.

Corps A	$a$ (Å) [Crc95]	$T_M$ (K) [Crc95]	$N_A$ [Crc95]	$\Gamma_{\text{calc}}$ (m K) (Eq. V.3)	$\gamma^{s/l}$ (J $\text{m}^{-2}$ ) [Fle74]	$\Delta_s^1 H_f$ (J $\text{m}^{-3}$ ) [Crc95]	$\Gamma_{\text{exp}}$ (m K) [Fle74, Crc95]	$ \Delta\Gamma/\Gamma $ (%)
Al	4,041	933,6	4 (CFC)	$0,94 \cdot 10^{-7}$	0,121	$1,06 \cdot 10^9$	$1,07 \cdot 10^{-7}$	12,1
Cu	3,608	1358	4 (CFC)	$1,23 \cdot 10^{-7}$	0,177	$1,84 \cdot 10^9$	$1,31 \cdot 10^{-7}$	6,1
Mn	3,08	1519,1	2 (CC)	$2,34 \cdot 10^{-7}$	0,206	$1,67 \cdot 10^9$	$1,87 \cdot 10^{-7}$	25,1
$\delta\text{Fe}$	2,93	1811,1	2 (CC)	$2,65 \cdot 10^{-7}$	0,204	$1,91 \cdot 10^9$	$1,93 \cdot 10^{-7}$	37,3

Tab. V.3 : Tableau des propriétés physiques de l'aluminium (Al), du cuivre (Cu), du manganèse (Mn) et du fer (Fe) sous la forme  $\delta$  (CFC : Structure cubique à faces centrées, CC : Structure cubique centrée). Les valeurs estimées du coefficient de Gibbs-Thomson,  $\Gamma_{\text{calc}}$ , sont comparées en calculant l'erreur relative absolue,  $|\Delta\Gamma/\Gamma|$ , commise par rapport à la valeur attendue,  $\Gamma_{\text{exp}}$ .

Le tableau V.3 montre que les écarts restent relativement faibles dans le cas des métaux de structure cubique faces centrées (CFC) mais augmentent pour le manganèse et le fer  $\delta$ , de structure cubique centrée (CC). La relation (V.3) nous permet néanmoins d'obtenir une valeur voisine de la valeur attendue et justifie notre approche.

Enfin, le vecteur gravité  $\mathbf{g}$  est orienté verticalement et sa norme prise égale à  $9,81 \text{ m s}^{-2}$ . Nous rediscuterons des valeurs de l'espacement secondaire  $\lambda_2$  dans la suite de notre travail. Cependant, les valeurs mesurées par Hansen [Han02] pour le développement de structures colonnaires dans le chlorure d'ammonium sont comprises entre 10 et  $18 \mu\text{m}$ .

### V.1.2. Simulation de la chute de cristaux équiaxes

La reproduction des expériences de chute de grains de Gérardin a suivi plusieurs étapes. Nous allons les détailler successivement avant d'aboutir à la présentation d'un calcul où seront couplés la microségrégation et les transferts de soluté, d'enthalpie et de la quantité de mouvement du liquide. Nous nous attarderons à montrer les limites de ce calcul.

#### V.1.2.a. *Chute à vitesse imposée sans couplage*

Dans une première étape, nous avons cherché à retrouver une évolution similaire de la vitesse de croissance par rapport aux résultats expérimentaux de Gérardin [Ger02] sans prise en compte des couplages entre CA et FE. Nous avons corrélé, en reprenant la démarche de Gérardin, les mesures des profondeurs atteintes par les cristaux au cours du temps sous la forme de polynômes de second ordre. Leurs dérivations fournissent une estimation très correcte de la vitesse de déplacement verticale. C'est cette vitesse que nous avons imposée à nos cristaux. Nous nous sommes intéressés aux expériences de la série A, correspondant à une concentration en eau de 72,8 %pds et pour lesquelles 3 valeurs de surfusion, de  $1^\circ\text{C}$ ,  $2^\circ\text{C}$  et  $2,5^\circ\text{C}$ , ont été successivement imposées (Tab. V.1).

Pour chacune des 3 surfusions, un unique grain est considéré initialement. Sa position et son diamètre de bord à bord sont donnés par la moyenne des mesures réalisées par Gérardin. L'instant  $t_0$  moyen depuis l'inoculation auquel sont prises les photographies fixe le temps initial dans notre calcul. La simulation de la sédimentation du grain est réalisée sur un domaine rectangulaire vertical de hauteur égale à celle de la colonne. Nous avons modifié les valeurs des propriétés physiques données précédemment dans le but d'obtenir un système isotherme. Ainsi, nous avons considéré une diffusion thermique infinie. De même, une valeur nulle pour les coefficients d'expansion thermique,  $\beta_{\text{th}}$ , et solutale,  $\beta_c$ , a été choisie. Enfin, l'algorithme développé pour la conservation de la masse (paragraphe IV.3.3) n'est pas considéré et le terme de friction volumique  $\mathbf{M}$  est nul. Sous ces conditions de développement, le liquide est également maintenu immobile dans la colonne. Dans notre simulation, la largeur de la colonne (6 mm) est plus faible

que celle de la colonne originale (40 mm) car le choix de ne pas prendre en considération les diffusivités thermique et solutales ainsi que le mouvement du liquide ne nécessite pas d'étudier l'ensemble du domaine. Les paramètres choisis sont indiqués au tableau V.4 et le détail des positions et des mouvements moyens des grains au cours de l'expérience est donné au tableau V.5. La figure V.4 donne les évolutions de la profondeur des cristaux pour les expériences menées dans la série A et les corrélations qui approximent cette évolution.

Paramètres	Symboles	Valeurs	Unités
Hauteur	-	1,2	m
Largeur	-	0,006	m
Nombre d'éléments en x	-	3	-
Nombre d'éléments en y	-	600	-
Macro pas de temps	$\Delta t$	0,1	s
Nombre de macro pas de temps	-	2000	-
Paramètre en micro pas de temps	$\alpha$	0,1	-
Taille des cellules	$l_{CA}$	200	$\mu\text{m}$
Nombres de cellules	-	180000	-
Température des parois	-	$T_L - \Delta T$	$^{\circ}\text{C}$

Tab. V.4 : Paramètres utilisés dans la simulation de la sédimentation de grains

Série	A1	A2	A3
<b>Profondeur corrélée (mm)</b>	$61,172 - 1,1422 t + 0,012688 t^2$	$116,98 - 2,7839 t + 0,025865 t^2$	$22,691 - 0,37097 t + 0,028709 t^2$
<b>Vitesse corrélée (<math>\text{mm s}^{-1}</math>)</b>	$- 1,1422 + 0,025376 t$	$- 2,7839 + 0,05173 t$	$- 0,37097 + 0,057418 t$
<b>Profondeur initiale (mm)</b>	89,1	77,8	58
<b>Temps écoulé depuis l'inoculation, <math>t_0</math> (s)</b>	110	91	40
<b>Diamètre initial (<math>\mu\text{m}</math>)</b>	442	841	774
<b>Fraction de solide (LR) (-)</b>	$2,78 \cdot 10^{-3}$	$5,54 \cdot 10^{-3}$	$6,92 \cdot 10^{-3}$

Tab. V.5 : Positions et vitesses moyennes corrélées des 3 séries de mesures, A1, A2 et A3 ( $t$  : temps (s) écoulé depuis l'inoculation) et représentées sur les courbes à la figure V.4 en traits discontinus. A titre indicatif, nous avons précisé, pour un système parfaitement thermostaté la valeur de la fraction de solide qui devrait être présente dans les cellules totalement pâteuse (LR : loi des leviers).

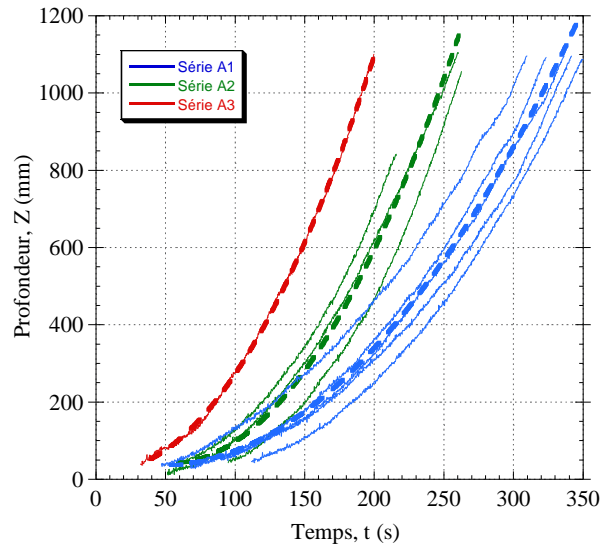


Fig. V.4 : Evolution au cours du temps de la profondeur à laquelle les cristaux se trouvent (traits continus). Les traits discontinus correspondent aux corrélations qui approximent les évolutions moyennes et dont les expressions sont données dans la première ligne du tableau V.5.

Après avoir imposé aux cristaux les vitesses et les positions données au tableau V.5 et simulé leur sédimentation, nous avons obtenu les accroissements des diamètres granulaires représentés à la figure V.5. La vitesse de liquide utilisée dans la corrélation exprimant la sursaturation à la pointe de la dendrite (Eq. III.41) représente alors l'opposée de la vitesse de chute du grain,  $-\mathbf{v}_a$ , la vitesse du liquide dans la colonne étant nulle. On remarque la similarité des évolutions entre calculs et expériences. L'augmentation de la taille des cristaux durant la chute est correctement prédite, même sans la prise en compte du couplage et sans un ajustement important des propriétés telles que  $\Gamma$  et  $\sigma^*$ . L'accélération de la croissance due à l'augmentation progressive de la vitesse de chute apparaît également, particulièrement sur le cristal de la série A3. Les écarts entre modèles et expériences des tailles finales des cristaux s'expliquent par l'absence de remontée de liquide à la pointe des dendrites. La prise en considération de cette remontée à travers et autour du grain, telle qu'elle pourrait se faire avec le modèle couplé, devrait permettre d'obtenir des tailles de grains plus importantes. Dans ce modèle couplé, la vitesse relative de liquide à la pointe des dendrites serait modifiée et passerait de la vitesse  $-\mathbf{v}_a$  à  $-\mathbf{v}_a + \mathbf{v}^{l-a}$ , la vitesse  $\mathbf{v}^{l-a}$ , orientée vers le haut de la colonne, représentant la vitesse de remontée du liquide à la périphérie du grain. On aurait ainsi  $|\mathbf{v}^{l-a} - \mathbf{v}_a| > |\mathbf{v}_a|$ .

Cette accroissement attendu de la taille de grains semble justifié dans la mesure où la lecture de la figure V.5 indique que l'écart relatif, entre nos calculs et les mesures expérimentales, s'accroît lorsque la surfusion diminue. Or, nous avons montré par notre modèle et par les expériences [Hua81, Gli82], que l'influence de la vitesse du liquide et de son angle sur la croissance sont plus importants aux faibles surfusions. Ainsi, il était prévisible que cet écart grandisse avec la diminution de la surfusion.

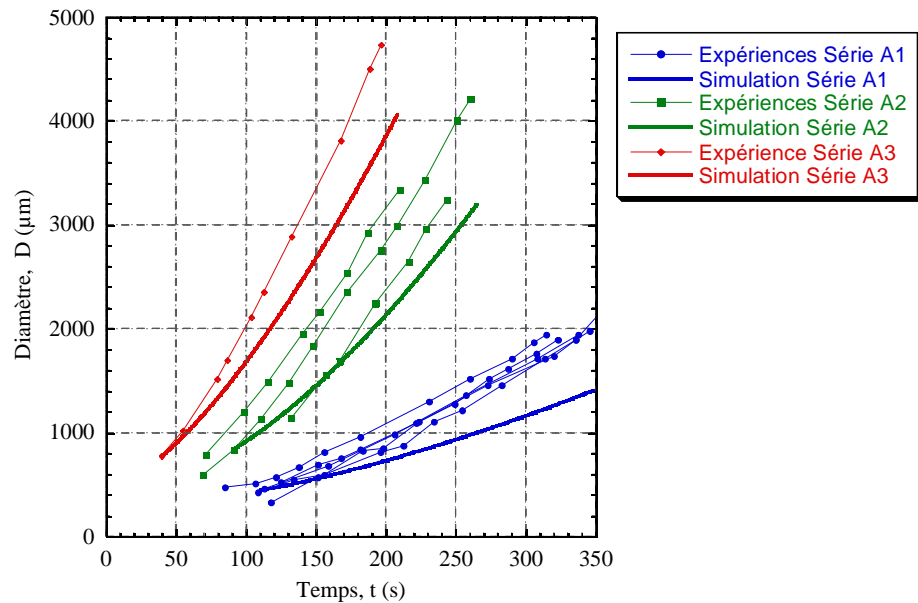


Fig. V.5 : Evolution des diamètres des grains au cours du temps. En trait gras sont représentées les évolutions données par notre modèle et en traits fins les évolutions mesurées par Gérardin [Ger02] à partir de photographies.

### V.1.2.b. Chute libre sans couplage

Après cette étape de comparaison de notre modèle de cinétique de croissance, nous avons cherché à retrouver des évolutions similaires des vitesses de sédimentation entre simulations et expériences. Nous avons donc placé des grains avec des positions et des tailles initiales identiques aux cas précédents (Tab. V.5). La vitesse de croissance des pointes des dendrites est considérée et calculée selon la loi de corrélation développée (Eq. III.41) et utilisée dans la validation expérimentale précédente. La colonne reste isotherme, la diffusion thermique étant infinie, et l'absence de mouvement du liquide empêche l'apparition d'une macroségrégation. Par conséquent, la fraction de solide interne dans les cellules reste constante, égale à la valeur donnée par la loi des leviers. Dans un premier temps, la valeur de l'espacement interdendritique secondaire,  $\lambda_2$ , qui fixe la perméabilité du grain, a été choisie constante et égale à des valeurs permettant de se rapprocher des résultats expérimentaux. En effet, nous n'avons pas trouvé d'estimation de ce paramètre dans les résultats expérimentaux de Gérardin. Il s'agit d'un terme difficile à connaître à partir de la simple lecture des photographies. De plus, cette valeur évolue au cours de la sédimentation selon des lois de maturation [Mor91, Kat67], ou en raison de la sélection par croissance des branches dendritiques, selon le modèle de Huang et Glicksman [Hua81].

Les valeurs de l'espacement interdendritique auxquelles nous sommes parvenus pour les 3 simulations A1, A2 et A3, sont respectivement égales à 28  $\mu\text{m}$ , 38  $\mu\text{m}$  et 45  $\mu\text{m}$ . Elles permettent d'obtenir un écart faible entre simulations et expériences et de retrouver les valeurs expérimentales de la profondeur en fin de chute. Les évolutions temporelles de la profondeur ainsi obtenues sont représentées à la figure V.6.

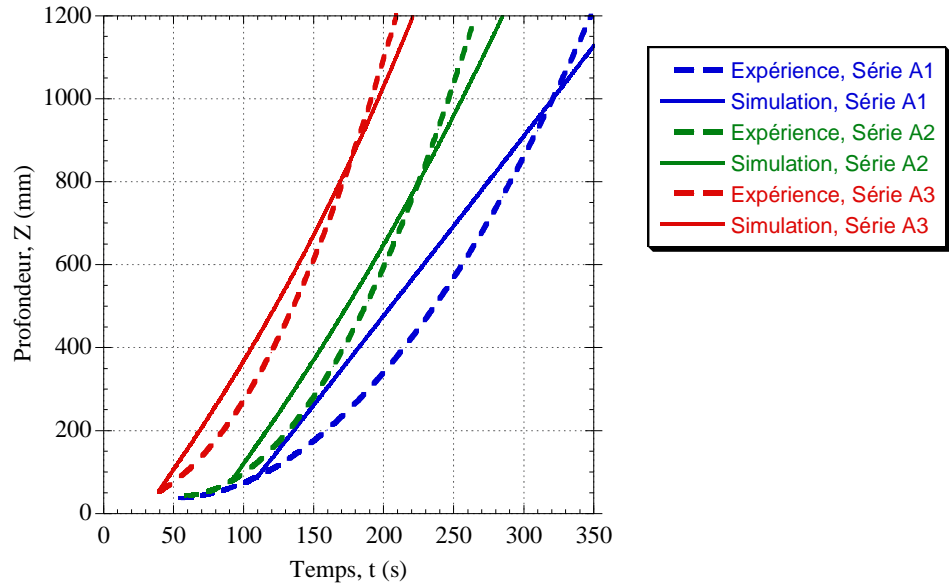


Fig. V.6 : Profondeur atteinte au cours du temps par les cristaux équiaxes, pour les 3 simulations A1, A2 et A3 (traits continus), à espacement dendritique  $\lambda_2$  fixé. Les mesures expérimentales des profondeurs sont représentées en traits discontinus, sous forme corrélée, de manière similaire à la figure V.4.

L'analyse des courbes obtenues doit se faire en revenant aux équations gouvernant le mouvement des grains, présentées dans le chapitre III, et qui montrent que deux régimes de sédimentation sont possibles pour les valeurs extrêmes de la porosité.

Si le grain est faiblement poreux, c'est à dire que les valeurs du rayon normalisé  $\beta$  (Eq. II.94) et du facteur correctif de porosité  $C_f$  (Eq. II.93) sont élevées, le grain chute de manière similaire à un corps plein. En régime de Stokes, sa vitesse  $\mathbf{v}$  est égale à :

$$\mathbf{v} = \frac{\varepsilon C_g \mathbf{g} g^{s,m} d_e^2}{72 \nu} \quad (\text{V.5})$$

où  $g^{s,m}$  est la fraction de solide interne au cristal (Eq. III.48),  $d_e$  son diamètre équivalent (Eq. III.52),  $C_g$  le facteur correctif de forme (Eq. II.92) et  $\varepsilon$  représente la différence relative de la masse volumique entre les deux phases :

$$\varepsilon = \frac{\rho^s - \rho^l}{\rho^l} \quad (\text{V.6})$$

Dans le cas contraire d'une particule fortement poreuse où les valeurs du rayon normalisé  $\beta$  et du facteur correctif de porosité  $C_f$  sont faibles, la vitesse de sédimentation tend vers la valeur :

$$\mathbf{v} = \frac{\varepsilon C_g \mathbf{g} \lambda_2^2}{720 \nu g^{s,m}} \quad (\text{V.7})$$

Ces deux régimes donnent des expressions de  $\mathbf{v}$  très différentes. Dans le premier cas, à fraction de solide interne constante, le grain sédimente à une vitesse d'autant plus grande que sa taille est importante. De plus, la vitesse apparaît indépendante de l'espacement interdendritique  $\lambda_2$ .

On doit alors observer, dans la simulation, une accélération de la chute au cours du temps. Si le diamètre de grain évolue linéairement durant cette chute, comme semble l'indiquer les courbes de la figure V.5, la profondeur doit évoluer comme une puissance cubique du temps. Ceci était déjà un des résultats attendus par Jalanti [Jal96] que nous avons présenté au paragraphe II.3.2.a. A l'inverse, dans le second cas, en l'absence d'évolution de l'espacement interdendritique et de la fraction de solide interne, le grain sédimente à vitesse constante et l'évolution de la profondeur est une fonction linéaire du temps.

La figure V.6 semble indiquer que les paramètres que nous avons choisis pour nos calculs nous placent dans le second cas. En effet, les vitesses de sédimentation calculées apparaissent relativement constantes (évolution linéaire de la profondeur), pour l'ensemble des 3 calculs A1, A2 et A3, alors que le grain se développe. Les vitesses moyennes obtenues sont respectivement égales à  $4,32 \text{ mm s}^{-1}$ ,  $5,78 \text{ mm s}^{-1}$  et  $5,83 \text{ mm s}^{-1}$ . Le mouvement du grain simulé est alors guidé principalement par sa perméabilité et non par son diamètre. A fraction de solide interne fixée, les grains d'espacement interdendritique secondaire plus élevés sédimentent plus rapidement, indépendamment de leur diamètre. De même, les grains de fraction de solide interne plus faibles chutent plus rapidement car ils sont plus perméables au liquide (Eq. V.7). La relation V.7 est l'inverse de celle que l'on observe dans le premier régime où les grains dont la fraction interne est la plus grande sont ceux qui chutent le plus rapidement.

Bien que les courbes obtenues soient proches des résultats expérimentaux de Gérardin [Ger02], on relève deux contradictions.

D'une part, l'espacement interdendritique choisi augmente avec la surfusion. Or, la diminution du rayon de courbure,  $r_p$ , avec l'augmentation de la surfusion initie l'espacement interdendritique à une valeur faible [Hua81, Som84, Esa86], voisine de ce rayon. Huang et Glicksman [Hua81] donnent ainsi une valeur de cet espacement égal à 3 fois la valeur de  $r_p$ . Ce coefficient de proportionnalité a par la suite été trouvé plus proche de 2,2 [Som84, Esa86]. Lors de la croissance du bras dendritique,  $\lambda_2$  évolue, dans un premier temps, proportionnellement à une puissance de la valeur de l'espacement secondaire initial. On est alors conduit à avoir des espacements interdendritiques plus faibles aux surfusions importantes, ce que semble également indiquer la lecture des photographies de Gérardin [Ger02]. Cependant, ceci est contraire aux résultats que nous obtenons.

D'autre part, la fraction interne de nos grains,  $g^{s.m}$ , est, dans chaque calcul, fixe, car la surfusion de la colonne n'évolue pas, et égale à la valeur donnée par la loi des leviers. Ainsi, cette valeur augmente avec la surfusion ce qui est contraire aux résultats présentés par Gérardin [Ger02] pour l'évolution de  $g^{s.m}$ . La fraction de solide interne qu'il obtient en utilisant le modèle de Appolaire [App99.2] est une fonction décroissante du temps et de la surfusion. Les plus faibles valeurs de  $g^{s.m}$  sont obtenues pour une surfusion de 2,5 K et sont voisines de 0,02, c'est à dire plus de 7 fois supérieures aux valeurs que nous utilisons. A la fois par l'amplitude des valeurs obtenues et par les évolutions en fonction du temps et de la surfusion, il y a une contradiction très importante sur ce point entre le modèle de Appolaire et le nôtre.



De l'analyse précédente et de la linéarité des évolutions simulées sur la figure V.6, nous avons déduit que le mouvement du grain est guidé selon l'équation V.7, soit par le rapport entre l'espacement interdendritique  $\lambda_2$  et la fraction de solide interne  $g^{sm}$ . Ainsi, le caractère parabolique des courbes expérimentales s'explique par une augmentation progressive de ce rapport qui permet une accélération du grain au cours de la chute. L'utilisation d'une loi de maturation prédisant l'évolution de  $\lambda_2$ , en conservant fixe la fraction interne de solide, doit permettre d'améliorer les prédictions.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons modifié le modèle en imposant une valeur d'espacement interdendritique  $\lambda_2$  à chaque cellule. Celle-ci est fixée lorsque la cellule quitte l'état liquide, par germination ou capture, à la valeur initiale  $\lambda_{20}$ . Elle évolue ensuite au cours du temps selon la loi de maturation proposée par Kattamis et al. [Kat67] :

$$\lambda_2^3 = \lambda_{20}^3 + M t \quad (V.8)$$

où le terme M est défini à partir de la composition en éléments d'alliage dans la phase liquide intergranulaire de la cellule,  $w^d$ , et de la fraction de solide interne à la forme de croissance,  $g^{sm}$  :

$$M = \frac{\Gamma D^l}{0,068 m (k-1) w^d g^{sm}} \quad (V.9)$$

Lorsqu'une cellule est capturée par l'une de ses voisines, la valeur initiale de l'espacement interdendritique est fixée à une valeur de  $1 \mu\text{m}$ . Cette valeur est de l'ordre de grandeur du rayon de courbure d'une pointe dendritique,  $r_p$ , qui fixe la première valeur de l'espacement dendritique. A l'échelle du grain, la valeur de l'espacement interdendritique choisie dans le calcul de la vitesse de sédimentation,  $\lambda_{2a}$ , est égale à la moyenne de l'espacement défini par les  $N_v^a$  cellules le constituant pondérée par leur fraction volumique de grain :

$$\lambda_{2a} = \frac{\sum_{i=1}^{N_v^a} g_{v_i}^m \lambda_{2v_i}}{\sum_{i=1}^{N_v^a} g_{v_i}^m} \quad (V.10)$$

Les calculs que nous avons menés considèrent initialement un grain déjà formé dont les taille et position ont été données au tableau V.5. Les cellules constituant ce grain ont également une valeur commune d'espacement, égale à  $\lambda_{20a}$ . Cette valeur évolue ensuite selon la loi de maturation (V.8).  $\lambda_{20a}$  a été pris égal à  $25 \mu\text{m}$  pour les trois séries A1, A2 et A3. Les évolutions que nous avons obtenues avec ces choix sont représentées à la figure V.7.

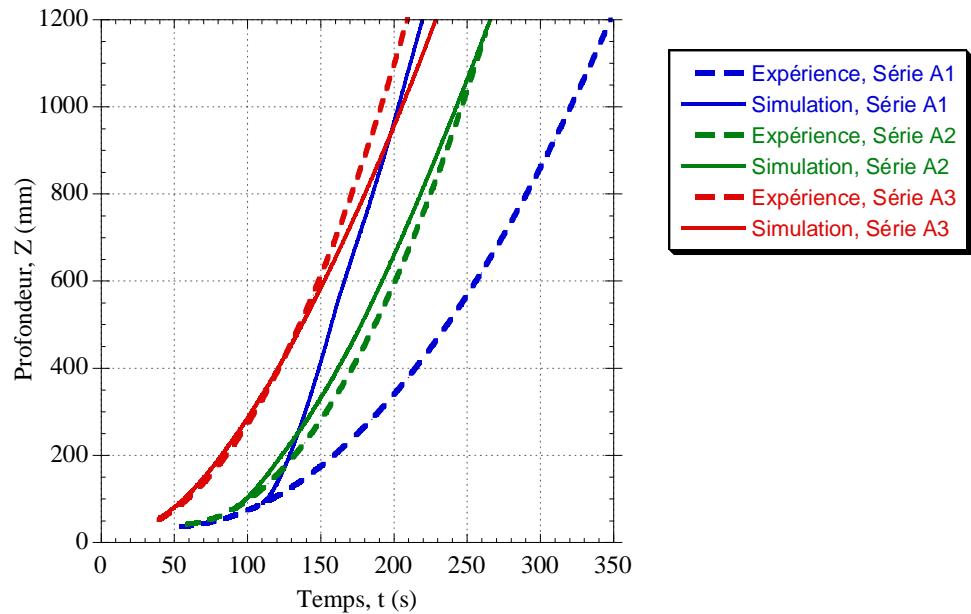


Fig. V.7 : Profondeur atteinte au cours du temps par les cristaux équiaxes, pour les 3 simulations A1, A2 et A3 (traits continus), à espacements dendritique  $\lambda_2$  variables. Les mesures expérimentales des profondeurs sont représentées en traits discontinus, sous forme corrélée, de manière similaire à la figure V.4.

Le choix que nous avons fait de la valeur initiale de l'espacement interdendritique secondaire nous a permis de retrouver les évolutions attendues de la profondeur en fonction du temps pour les séries A2 et A3. Cependant il ne permet pas de retrouver des profils similaires pour la série A1. L'utilisation de différentes valeurs initiales de l'espacement interdendritique dans le grain ou dans les cellules capturées au cours de la sédimentation n'a pas permis d'améliorer ce résultat. Cet important écart est dû à l'augmentation rapide de l'espacement interdendritique au cours de la sédimentation. La loi de maturation utilisée évolue comme l'inverse de la valeur de la fraction de solide interne au grain (Eq. V.9). Ainsi, aux faibles surfusions, sont associées, dans notre modèle, de faibles valeurs de la fraction de solide interne et des évolutions rapides du terme  $\lambda_2$ . En conséquence, on retrouve des vitesses de sédimentation importantes dues à la grande perméabilité du grain. Dans le cas des sédimentations à faibles surfusions, notre modèle ne semble pas permettre une prédiction correcte des évolutions des fractions de solide et, en conséquence, de la profondeur atteinte au cours du temps. Néanmoins, la forme prise par la loi de maturation permet d'avoir une croissance plus rapide de  $\lambda_2$  aux faibles surfusions et de retrouver alors des valeurs d'espacements interdendritiques plus élevées, ce qui était un des résultats attendus.

D'autre part, il est également possible que, pour les faibles surfusions et donc pour les faibles tailles de cristaux qui caractérisent la série A1, les grains soient imperméables. On peut alors passer dans un régime de sédimentation différent, pour lequel la valeur de l'espacement interdendritique modifie peu la vitesse de sédimentation ou même n'intervient plus dans celle-ci (Eq. V.5). Les estimations qui pourraient être faites de ce terme seraient sans influences sur les résultats.

V.1.2.c. Influence de  $g^{sm}$ 

Nous avons choisi d'adopter une nouvelle démarche afin de retrouver les valeurs expérimentales attendues, en suivant la conséquence du modèle développé par Appolaire [App99.2] suivant laquelle la fraction de solide interne évolue lors de la croissance du cristal. Ce modèle est basé sur l'utilisation d'une enveloppe entourant chaque grain. Un flux de soluté à l'extérieur de l'enveloppe modifie sa composition moyenne, permettant au grain de se solidifier en laissant évoluer sa fraction de solide interne au cours du temps et ce à température fixée. Cette idée fut introduite dès 1987 par Rappaz et Thévoz [Rap87.1, Rap87.2] puis reprise par Wang et Beckermann [Wan93]. Au contraire, dans les résultats que nous avons donnés, la valeur de  $g^{sm}$  reste fixée dans chaque cellule et donnée par la loi des leviers (Tab. V.5). Cette hypothèse a permis de retrouver les vitesses de sédimentation attendues dans les séries A2 et A3, pour lesquelles les simulations réalisées par Gérardin [Ger02] avec le modèle de Appolaire [App99.2] prédisent des fractions volumiques de solide interne évoluant lentement. Cependant, les mêmes simulations réalisées pour les grains de la série A1 ( $\Delta T = 1\text{ }^\circ\text{C}$ ) montrent que la fraction volumique de solide diminue fortement tout en restant à des valeurs élevées. Nous avons choisi de réaliser une nouvelle simulation de la sédimentation d'un grain de cette série en modifiant la valeur de la fraction interne de solide. Celle-ci n'est plus égale à  $2,78 \cdot 10^{-3}$  (Tab. V.5) mais à la valeur limite donnée par Gérardin [Ger02] soit 0,05. Nous avons repris la même loi de maturation (Eq. V.8,V.9) et la même valeur de l'espacement interdendritique secondaire initial dans le grain. La nouvelle évolution obtenue pour la profondeur est donnée à la figure V.8. De même, dans le but de compléter cette comparaison, nous avons réalisé, sous les mêmes hypothèses pour l'évolution de l'espacement interdendritique secondaire, une simulation de la chute de cristaux équiaxes pour les séries A2 ( $\Delta T = 2\text{ }^\circ\text{C}$ ) et A3 ( $\Delta T = 2,5\text{ }^\circ\text{C}$ ) en nous référant, respectivement, aux valeurs limites de fraction de solide données par Gérardin [Ger02] de 0,02 et 0,01. Les résultats obtenus ont également été indiqués sur la figure V.8.

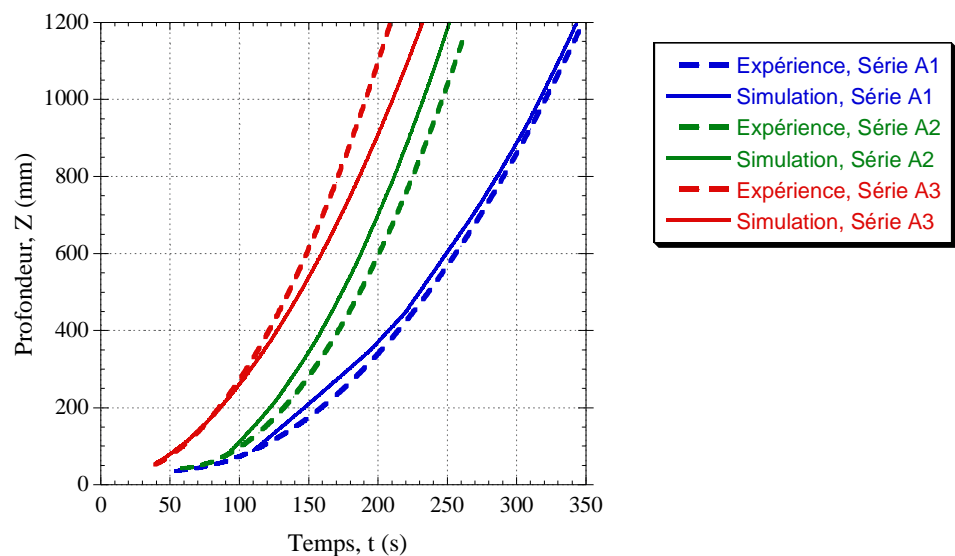


Fig. V.8 : Evolution temporelle de la profondeur d'un grain pour une valeur fixée de la fraction volumique de solide interne (trait épais). On a choisi une valeur de fraction de 0,05 pour la série A1 ( $\Delta T = 1\text{ }^\circ\text{C}$ ), de 0,02 pour la série A2 ( $\Delta T = 2\text{ }^\circ\text{C}$ ) et de 0,01 pour la série A3 ( $\Delta T = 2,5\text{ }^\circ\text{C}$ ). La corrélation des profondeurs mesurées expérimentalement est donnée en traits fins pour ces mêmes expériences.

Cette figure montre qu'il nous est alors possible de retrouver les résultats expérimentaux pour la surfusion la plus faible de 1 °C. En modifiant la valeur de la fraction de solide interne, nous prédisons une évolution de la profondeur similaire à celle des expériences. Il est possible que la difficulté que nous avons à estimer les profondeurs aux faibles surfusions, sur les grains de petites tailles, vienne d'une mésestimation de la fraction de solide interne. Cependant, pour les surfusions plus grandes et donc les grains de tailles plus importantes, le modèle donne alors des valeurs correctes de la fraction interne de solide, qui rejoignent les valeurs expérimentales. Le modèle d'enveloppe redonne des valeurs de fraction de solide faibles, suffisamment proches des valeurs données par la loi des leviers pour que les résultats de la simulation rejoignent les mesures expérimentales.

#### V.1.2.d. Chute libre avec couplage

Les hypothèses simplificatrices que nous avons faites sur la thermique de la colonne nous ont conduit à ignorer la valeur du coefficient de conductibilité thermique dans le liquide. Sous cette hypothèse, notre système demeure isotherme. De même, nous avons pris nulles les valeurs des coefficients d'expansion thermique et solutale. Ces hypothèses simplificatrices ont évité de faire apparaître un mouvement du liquide dans la colonne et ont simplifié nos calculs. Cette démarche s'explique essentiellement par l'approximation 2D de notre modèle rendant impossible la modélisation d'un écoulement réaliste du liquide autour d'un cristal équiaxe. En reprenant les valeurs originales de ces paramètres physiques, telles qu'elles sont données dans le tableau V.2, nous pouvons toutefois réaliser un calcul de la sédimentation des grains, avec couplage entre les phénomènes de ségrégation, de solidification, de thermique et de mécanique des fluides. Les nouvelles évolutions de la profondeur en fonction du temps sont représentées à la figure V.9.

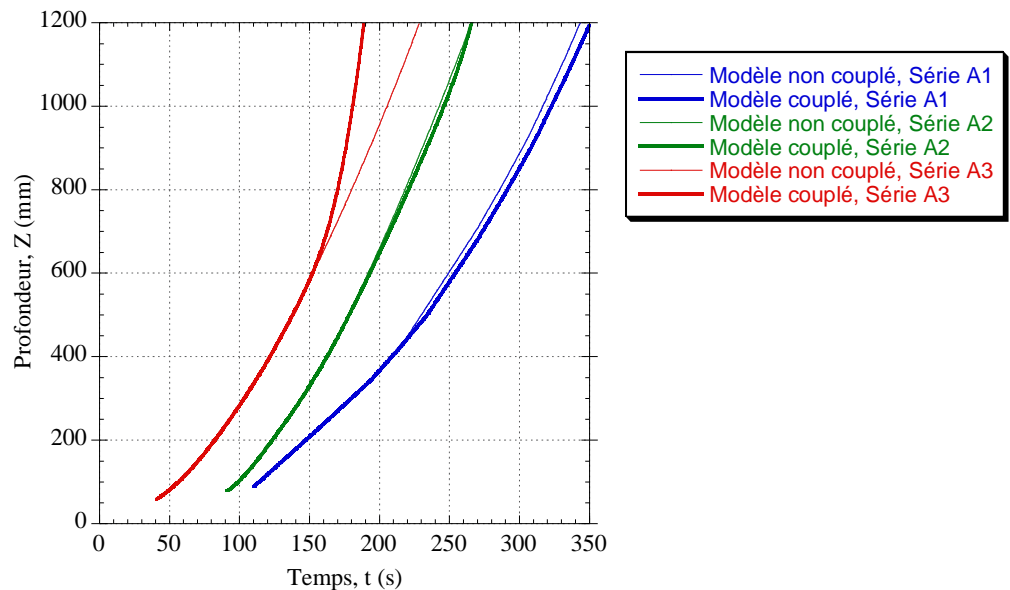


Fig. V.9 : Evolution de la profondeur atteinte par les grains au cours de la solidification, avec l'utilisation d'un couplage entre les approches microscopiques et macroscopiques (traits épais). Les résultats obtenus à l'aide du modèle non couplé sont représentés en traits fins. Pour le calcul de la série A1, il est pris  $g^s = 0,05$ .

Le calcul a été réalisé avec une largeur de colonne de 2 cm et des tailles de cellules identiques aux précédentes (200  $\mu\text{m}$ ). Pour les séries A2 et A3, nous avons repris une évolution libre de la fraction de solide interne aux cellules, donnée par le modèle original utilisant la loi des leviers. Le calcul A1 a été réalisé avec une fraction de solide interne égale à 0,05.

Ces résultats montrent que les fractions de solide internes aux grains restent suffisamment faibles pour ne pas influencer notablement la vitesse. Cependant, lorsque la taille des grains rejoint les dimensions du domaine (2 cm), comme pour le grain de la série A3, un écart apparaît entre les évolutions. Dans ce cas, les mouvements convectifs dans le liquide sont suffisamment importants pour accélérer le grain. A l'inverse, pour les cristaux des séries A1 et A2, dont la taille est faible, aucune modification importante de l'évolution temporelle de la profondeur n'apparaît.

### V.1.3. Bilan et perspectives

La discussion faite sur les propriétés physiques du chlorure d'ammonium et de la solution qu'il forme avec l'eau nous a permis d'aboutir à des valeurs des propriétés physiques qui permettent une confrontation valable du calcul de la vitesse de croissance avec les expériences. Dans une colonne uniforme thermiquement, la taille des cristaux est correctement prédite ainsi que la diminution de cette taille lorsque la surfusion décroît. Cette étape constitue une validation de notre modèle en couche limite de cinétique de croissance dendritique. Pour cela, nous avons fait le choix de revenir à la valeur théorique de la constante de stabilité  $\sigma^*$  donnée par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77, Lan78]. La valeur de 0,025, fortement différente de celle prise par Appolaire [App96], soit 0,081, ou de celle donnée par Gérardin [Ger02], soit 0,05, permet de retrouver l'évolution expérimentale des diamètres [Ger02]. Cela est dû notamment au calcul du coefficient de Gibbs-Thomson,  $\Gamma$ , qui aboutit au choix d'une valeur de  $3,54 \cdot 10^{-7}$  m K. Le rapport  $\Gamma/\sigma^*$  est alors égal à  $4,72 \cdot 10^{-6}$  m K ce qui constitue une valeur voisine de celle utilisée par Appolaire [App99.2] de  $4,37 \cdot 10^{-6}$  m K. Or les équations II.53 et II.54 montrent que le produit  $v_p r_p^2$  est directement proportionnel à ce terme. Ainsi, les cinétiques de croissance auxquelles nous aboutissons sont proches de celles de Appolaire.

D'autre part, l'étude de la profondeur atteinte par les cristaux, que nous faisons initialement à  $\lambda_2$  et  $g^{sm}$  constants, a montré plusieurs limites de notre modèle. Une fraction de solide interne des cellules constante, donnée par la température, et le modèle d'accroissement de l'espacement interdendritique de Katamis [Kat67], permettent de retrouver des évolutions comparables aux mesures pour les surfusions à 2 °C et 2,5 °C de la série A. Cependant, cela n'est pas le cas pour la plus faible surfusion de 1 °C. Nous devons néanmoins préciser que les évolutions des espacements interdendritiques sont conformes à celles attendues. Aux faibles surfusions les rayons de croissance des pointes de dendrites sont importants et engendrent des espacements de plus grandes dimensions. Ayant choisi une loi de maturation dont la constante de proportionnalité par rapport au temps,  $M$ , évolue comme l'inverse de la fraction de solide, nous retrouvons ce comportement dans notre simulation. En fin de solidification, les espacements les

plus importants sont ceux correspondants aux cristaux de la série A1, de faible surfusion (1 °C). Nous avons formulé diverses hypothèses, qui mériteraient d'être approfondies, permettant d'expliquer les écarts observés dans la vitesse de sédimentation. Constatant que les fractions de solide internes aux grains prédites par le modèle d'enveloppe de Appolaire sont de 10 à 100 fois supérieures à nos propres valeurs, nous avons modifié sa valeur dans le calcul réalisé à 1 °C. Cette modification redonne l'évolution de la profondeur attendue. Notre modèle initial prédit donc difficilement les trajectoires des grains de petites tailles, dont la fraction de solide interne s'écarte de celle donnée par la loi des leviers.

Le modèle d'enveloppe développé successivement par Rappaz et Thevoz [Rap87.1, Rap87.2], Wang et Beckermann [Wan93] et Appolaire [App99.2] conduit à des valeurs de fraction de solide interne aux grains,  $g^{sm}$ , différentes de la valeur de  $\Omega_c$  résultant de l'utilisation de la règle des leviers. L'application d'un tel modèle dans le cadre de la simulation de l'expérience de sédimentation de cristaux équiaxes menée par Gérardin [Ger02] conduirait à une augmentation de la fraction de solide interne. Comme le montre le nouveau calcul réalisé sur les cristaux de la série A1 avec une fraction de solide supérieure, les grains sont alors plus imperméables, ce qui ralentit leur chute et permet de retrouver des évolutions de la profondeur proches des mesures expérimentales. De plus, ce modèle d'enveloppe a été validé expérimentalement par Li et Beckermann [Li98] à partir de l'analyse des images réalisées par Glicksman et al. [Gli94] sur des cristaux de succinonitrile croissant en microgravité. Les observations des branches des grains dendritiques permettent le calcul d'une fraction de solide interne évoluant de manière similaire à celle prédite par le modèle d'enveloppe, ce qui confirme la validité de cette approche.

De l'analyse de cette même série d'expériences, Li et Beckermann déduisent des lois d'évolution de l'espacement interdendritique secondaire  $\lambda_2$  basées sur le modèle théorique de Langer [Lan87] et différentes de celles des modèles de maturation de Kattamis [Kat67] ou de Mortensen [Mor91]. Il apparaît ainsi que  $\lambda_2$  est proportionnel à  $t^{0.25}$ , où  $t$  est le temps qui s'est écoulé depuis le début de la solidification et la création de l'espacement interdendritique initial  $\lambda_{20}$ . Les modèles de maturation basés sur la forme générale V.8 prédisent une évolution plus rapide de l'espacement interdendritique, proportionnelle à  $t^{0.33}$ . Ces deux validations expérimentales, sur la valeur de la fraction de solide interne  $g^{sm}$  et de l'espacement interdendritique  $\lambda_2$ , constituent deux améliorations possibles de notre propre modèle de croissance granulaire.

## V.2. Expérience de solidification d'Hebditch et Hunt

Le modèle de sédimentation granulaire qui vient d'être présenté est dans le cadre d'un modèle visant à prédire la carte des structures et la composition finale d'un lingot. Nous allons présenter les résultats que ce modèle nous permet d'obtenir et les conclusions auxquelles nous sommes parvenus. Comme nous l'avons précédemment réalisé dans le chapitre IV, nous allons simuler l'expérience de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] relative à l'alliage Pb-48%pds Sn. Dans une première partie, nous nous intéresserons au cas de structures purement colonnaires. Nous présenterons ensuite les résultats obtenus lorsque des grains équiaxes germent dans le bain liquide et sédimentent.

### V.2.1. Structures colonnaires

Les paramètres des calculs, accompagnés des propriétés physiques et thermodynamiques de l'alliage Pb-48%pds Sn, sont donnés au tableau IV.4 du chapitre précédent. Nous y avons étudié le cas d'un front colonnaire croissant sans surfusion. Dans le tableau V.6, nous avons précisé les valeurs des paramètres complémentaires. Ces termes sont propres à la cinétique de croissance dendritique et à la sédimentation des grains équiaxes. Ils permettent de calculer la vitesse d'avancée des pointes selon le modèle en couche limite développé dans le chapitre consacré au modèle CA.

Le coefficient de Gibbs-Thomson,  $\Gamma$ , a été déduit de la valeur de l'énergie de surface  $\gamma^{s/l}$  donnée par Günduz et Hunt [Gün85] et de la valeur de la chaleur latente volumique de fusion  $\Delta_s^l H_f$  donnée au tableau IV.4. La température de transformation considérée est celle du liquidus pour la composition nominale. La densité de la phase solide est déduite des densités des phases solides étain et plomb référencées [Ceh63] et de la composition en éléments d'alliage dans la phase solide à la température eutectique. En effet, partant de  $T_E$ ,  $T_M$  et  $m$ , on déduit que la composition de l'eutectique est de 61,9 %pds Sn. Afin de montrer les effets de la sédimentation sur la ségrégation, il faut calculer la masse volumique du solide. Comme elle est prise constante dans notre modèle, nous avons choisi de la déterminer à partir de la composition maximale de la phase solide permise par le diagramme de phase. Il s'agit de la composition du solide en équilibre avec le liquide eutectique, soit ( $k w_E$ ), valeur égale à 19,0 %pds Sn. La masse volumique de l'alliage solide,  $\rho^s$ , est alors calculée en considérant une évolution linéaire du volume massique par rapport aux compositions massiques d'étain,  $w_{Sn}$ , et de plomb,  $w_{Pb}$ , et aux masses volumiques des corps purs,  $\rho_{Sn}$  et  $\rho_{Pb}$ . Dans l'alliage plomb-étain formé, le volume occupé par chaque élément est alors proportionnel à sa masse dans l'alliage et au volume du corps pur correspondant. Sous cette hypothèse, on aboutit à avoir pour relation entre les différents termes :

$$\frac{1}{\rho^s} = \frac{w_{Pb}}{\rho_{Pb}} + \frac{w_{Sn}}{\rho_{Sn}} \quad (V.11)$$

A la composition eutectique d'étain dans le solide, ( $k_{wE}$ ), de 19,0 %pds Sn, et pour les masses volumiques d'étain pur,  $\rho_{Sn} = 7279,8 \text{ kg m}^{-3}$ , et de plomb pur,  $\rho_{Pb} = 11348,8 \text{ kg m}^{-3}$  [Ceh63], on aboutit à la masse volumique de solide  $\rho^s = 10260 \text{ kg m}^{-3}$  (Tab. V.6). Enfin, nous avons choisi de reprendre la valeur de  $\sigma^*$  donnée par Langer et Müller-Krumbhaar [Lan77,78].

Propriété	Symbole	Valeur	Unité	Référence
Coefficient de diffusion	$D_c^l$	$7 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$	[Bou97]
Energie de surface	$\gamma^{s/l}$	0,056	$\text{J m}^{-2}$	[Gün85]
Coefficient de Gibbs-Thomson	$\Gamma$	$5,68 \cdot 10^{-8}$	m K	-
Masse volumique liquide	$\rho^l$	9000	$\text{kg m}^{-3}$	[Jal00]
Masse volumique solide	$\rho^s$	10260	$\text{kg m}^{-3}$	[Ceh63]
Constante de stabilité	$\sigma^*$	0,025	-	[Lan77,78]

Tab. V.6 : Propriétés thermodynamiques de l'alliage Pb-48%pds Sn permettant le calcul de la cinétique de croissance et de la sédimentation. Ces valeurs viennent en complément de celles données précédemment (Tab. IV.4)

### V.2.1.a. Monograin

La figure V.10 présente les résultats obtenus en faisant croître un unique grain, d'orientation cristallographique  $\theta = 0$ , à partir de la paroi gauche, refroidie, de la lingotière. Toutes les cellules de cette paroi sont alors considérées comme germantes. La surfusion de germination de l'ensemble de ces cellules a été fixée à une valeur faible de 0,01 K, ce paramètre n'influençant alors pas les résultats obtenus. Sur la figure V.10 a) ont été représentées les lignes de courant dans le liquide, 50 secondes après le début du refroidissement. De même, les courbes d'isofraction de solide et la structure granulaire sont données à la figure V.10 b). Ces cartes sont à comparer avec celles obtenues au même instant pour une croissance sans surfusion au front de solidification (paragraphe IV.5.2). Plusieurs remarques intéressantes sont possibles. Tout d'abord, dans le calcul réalisé précédemment (Fig. IV.10 b), la zone pâteuse est très étendue et la fraction de solide évolue lentement entre  $10^{-4}$  et  $10^{-1}$ . Tant que la perméabilité locale est suffisamment importante, l'ensemble de ce domaine est parcouru par le liquide qui se charge du soluté qu'elle contient. Le liquide enrichi en étain a tendance à remonter dans la zone pâteuse et ce mouvement, guidé par la convection solutale, impose le sens de circulation de l'ensemble du fluide. Dans le cas présent, le phénomène demeure mais est confiné à une zone proche du front de croissance. En effet, la zone pâteuse est moins étendue, en raison de la surfusion au front de solidification, et la fraction de solide évolue alors plus rapidement. Le liquide pénètre moins profondément ce domaine et, ainsi, s'enrichit plus faiblement en élément d'alliage. En conséquence, l'écoulement est dominé dans la plus grande partie du lingot par la convection thermique. Le profil de température dans le lingot impose alors le sens de rotation du liquide. Celui-ci étant plus froid à proximité du refroidisseur, il



a tendance à descendre le long du front. Le mouvement du fluide se réalise dans le liquide dans le sens de rotation direct, à l'inverse du cas précédent présenté à la figure IV.10 a. La remontée du liquide, due au rejet de soluté, n'est observable qu'à la proximité immédiate du front.

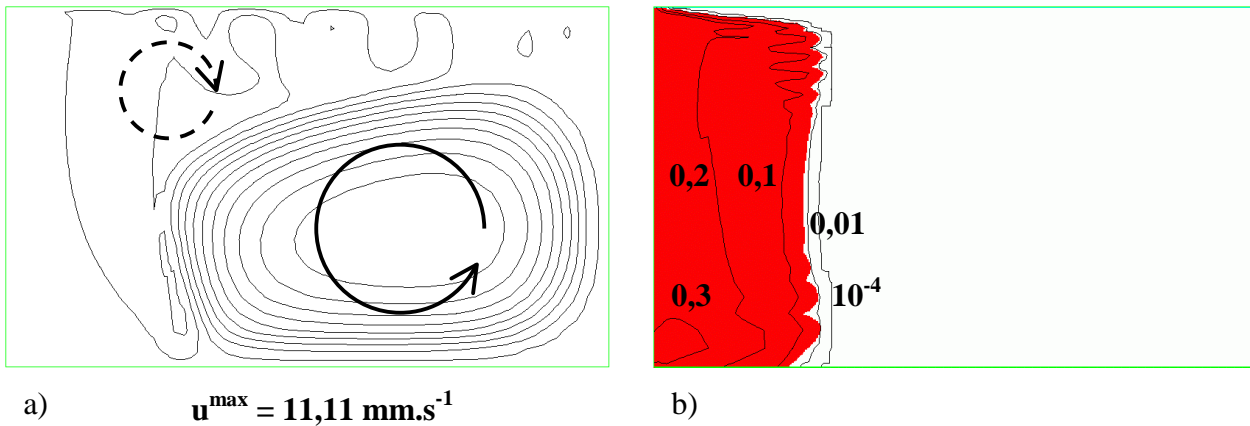


Fig. V.10 : a) Représentation des lignes de courant dans la zone liquide du lingot à  $t = 50 \text{ s}$ .  $u^{\max}$  est la vitesse débitante maximale du liquide. La flèche en trait plein précise le sens de circulation du liquide dans la zone droite du lingot. La flèche en traits pointillés indique qu'il existe une zone pâteuse, de faible épaisseur, dans laquelle le liquide remonte. b) Positions des isofractions de solide au même instant, accompagnées de la structure de grain. Les valeurs indiquées sont celles de la fraction de solide  $g^s$ .

La figure V.11 présente, au temps  $t = 100 \text{ s}$ , les mêmes profils que la figure V.10. Elle montre l'évolution du sens de rotation de l'écoulement du liquide au cours du temps. Simultanément, le relâchement de chaleur au front et les mouvements convectifs ont diminué le gradient thermique dans le liquide. Ces phénomènes ont contribué à diminuer alors l'importance de la convection thermique. Parallèlement, le domaine pâteux au front de solidification s'est élargi, ce qui a augmenté la taille du domaine où la convection solutale est prépondérante. En conséquence, le sens de rotation du liquide s'est inversé et devient identique à celui que nous avons observé dans le calcul réalisé sans surfusion.

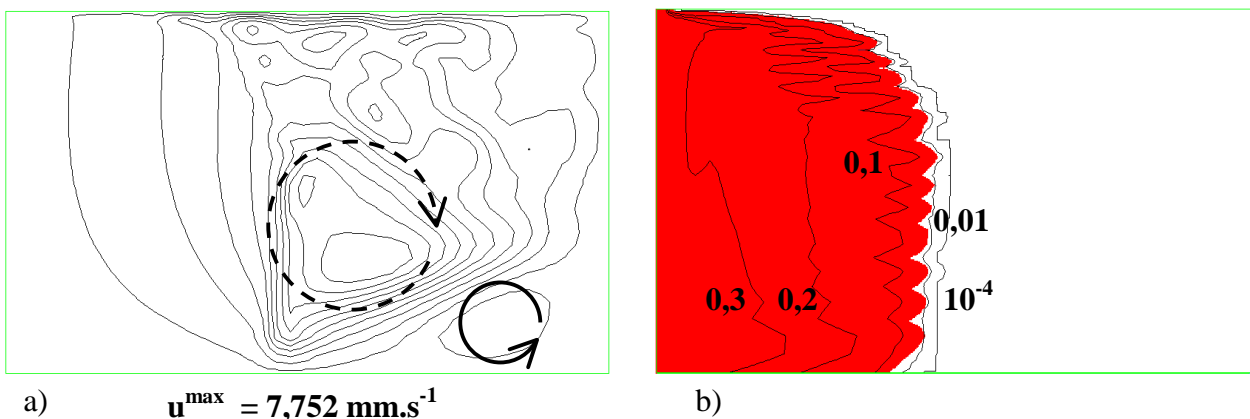


Fig. V.11 : a) Représentation des lignes de courant dans la zone liquide du lingot à  $t = 100 \text{ s}$ .  $u^{\max}$  est la vitesse débitante maximale du liquide. La flèche en trait plein précise le sens de circulation du liquide dans la zone inférieure droite du lingot. La flèche en traits pointillés indique que le liquide remonte dans la zone pâteuse et impose le sens de rotation observé sur la majorité du domaine liquide. b) Positions des isofractions de solide au même instant, accompagnées de la structure de grain. Les valeurs indiquées sont celles de la fraction de solide  $g^s$ .

➤ **Instabilités**

Un autre phénomène remarquable est l'instabilité du front de solidification que l'on observe sur les figures V.10 b) et V.11 b). Les courbes d'isofraction de solide, ainsi que l'interface entre les zones liquide et pâteuse, présentent un profil perturbé autant dans le domaine supérieur qu'inférieur de la lingotière. En représentant la position du front à différents instants ainsi que la progression de l'isofraction de solide  $g^s = 0,1$ , la figure V.12 permet de mieux montrer l'évolution de cette instabilité.

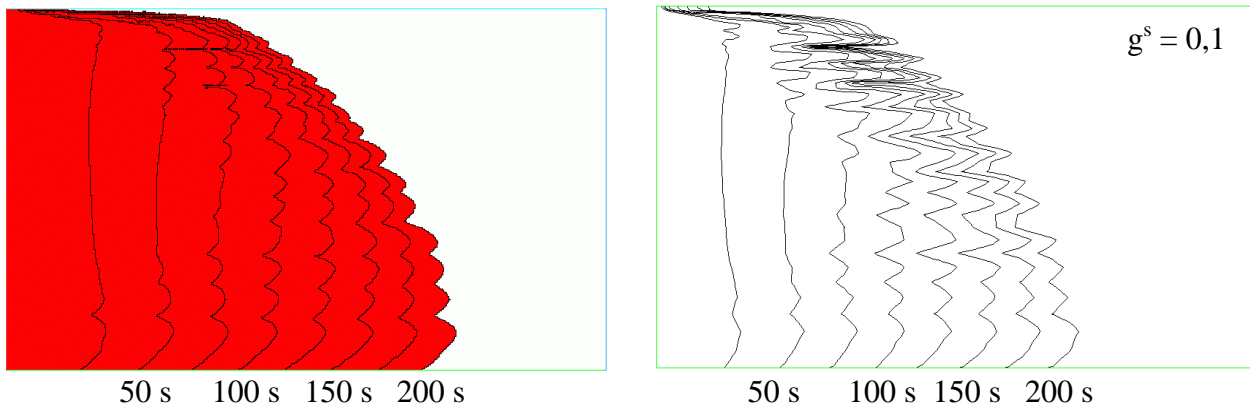


Fig.V.12 : a) Position du front de solidification après des durées,  $t$ , de refroidissement régulièrement espacées de 25 s. La première courbe correspond au temps  $t = 25$  s et la structure totalement représentée est celle obtenue après 200 s. b) Position, au cours des mêmes instants, de  $t = 25$  s à  $t = 200$  s, de l'isofraction de solide  $g^s = 0,1$ .

L'espacement plus important des courbes dans la partie basse du lingot montre que le front y avance plus rapidement. Ce phénomène s'explique par l'appauvrissement du milieu en soluté, déplaçant le liquidus à des températures plus élevées. Le front suit alors une isotherme plus élevée d'autant plus facilement que la surfusion décroît lorsque la composition croît. Comme à la figure IV.10 c), les isothermes sont approximativement verticales.

La déstabilisation apparaît dès les premiers instants de la solidification, de préférence dans les extrémités supérieure et inférieure du front. Elle se propage ensuite sur l'ensemble du front. Ce dernier apparaît totalement déstabilisé après 100 s. L'origine de cette déstabilisation se trouve dans la diminution du gradient thermique dans le liquide au front de solidification. Le front reste stable lorsque toute perturbation à sa surface tend à disparaître. Lorsque le gradient thermique est positif et suffisamment important, les déstabilisations se résorbent. En l'absence de gradient thermique stabilisant, les perturbations se développent et persistent durablement. Leurs tailles sont alors de l'ordre de plusieurs espacements interdendritiques primaires et elles peuvent s'observer à une échelle macroscopique, sous la forme de 'superdendrites' [Fai72.2, Fai75.1]. Ces instabilités sont également évoquées par Gandin [Gan00.1] dans ses expériences de solidification dirigée [Gan00.2] pour expliquer l'origine de l'apparition des grains équiaxes par refusion et fragmentation de branches de dendrites.

Les mouvements convectifs importants dans le liquide et la faible dimension du lingot expliquent la rapide homogénéisation thermique du bain liquide et la déstabilisation générée, en plus de l'inversion du sens de rotation du liquide. La figure V.13 présente, 100 secondes après le

début du refroidissement, les profils de température horizontaux en différentes hauteurs du lingot. La carte de structure correspondante, superposée au maillage, est représentée conjointement. Le gradient thermique est effectivement faible, voire même négatif, dans le liquide.

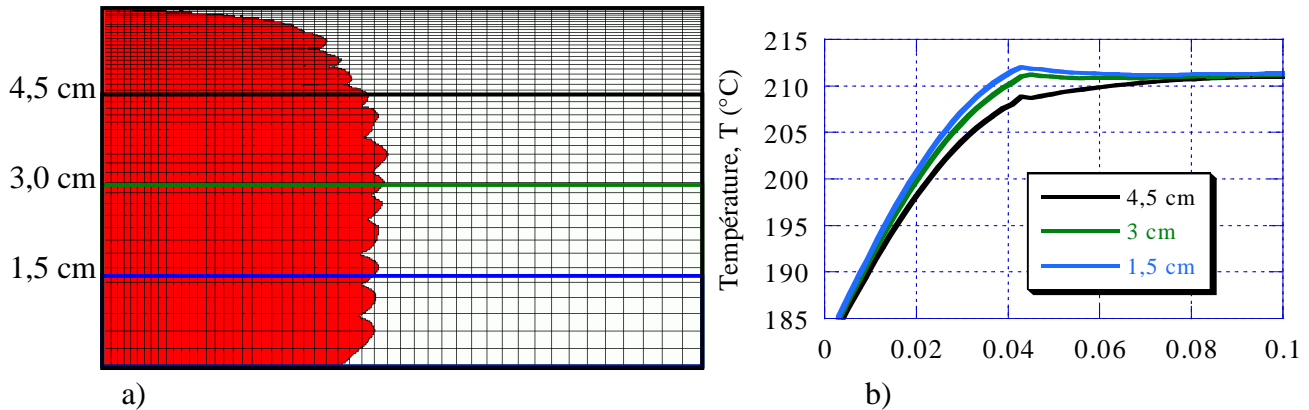


Fig. V.13 : a) Superposition du grain obtenu après 100 s de solidification et du maillage utilisé. Les 3 lignes tracées horizontalement correspondent aux 3 hauteurs de 1,5 cm, 3 cm et 4,5 cm pour lesquelles les profils de température ont été représentés sur la figure b).

La superposition du maillage à la structure montre une forte corrélation entre les avancées du front et les éléments. De manière similaire, les zones en retrait sont alignées sur ces mêmes frontières. L'amplitude et la forme des déstabilisations sont donc guidées par le maillage. A noter toutefois qu'entre les parties basses et hautes de la frontière, l'espacement entre les pointes change peu si bien que le nombre de mailles entre deux instabilités s'adapte localement à la finesse du maillage.

### ➤ Ségrégation

La figure V.14 représente les isothermes dans le lingot à 400 secondes. La comparaison de ces courbes avec celles de la figure IV.10 c) montre que la prise en considération de la surfusion modifie peu ce type de représentation et ce malgré la présence d'un gradient de température négatif comme en témoigne la figure V.13. A l'échelle de l'ensemble du système, l'évolution thermique change faiblement avec l'existence d'une surfusion. Elle apparaît essentiellement guidée par les propriétés du matériau et les conditions aux frontières.

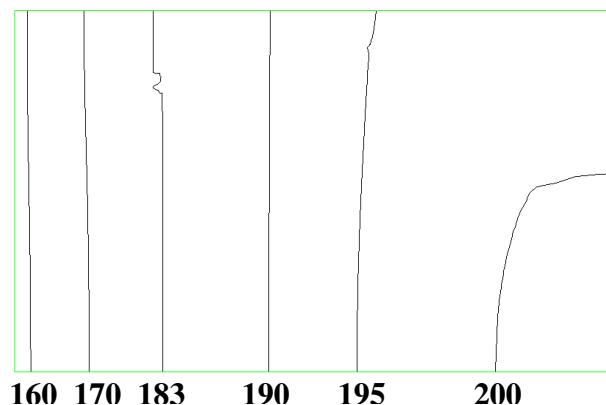


Fig. V.14 : Position des isothermes après 400 s de refroidissement. Les valeurs choisies pour les températures sont similaires à celles utilisées au chapitre précédent.

Nous venons de montrer que l'un des résultats obtenus par notre modèle est la prédiction d'une déstabilisation. Celle-ci modifie la structure du front et influence également le profil de ségrégation final. Ceci est visible sur les figures V.15 qui présentent les cartes de composition au cours du processus de solidification ( $t = 400$  s) et à la fin de celui-ci ( $t = 1500$  s).

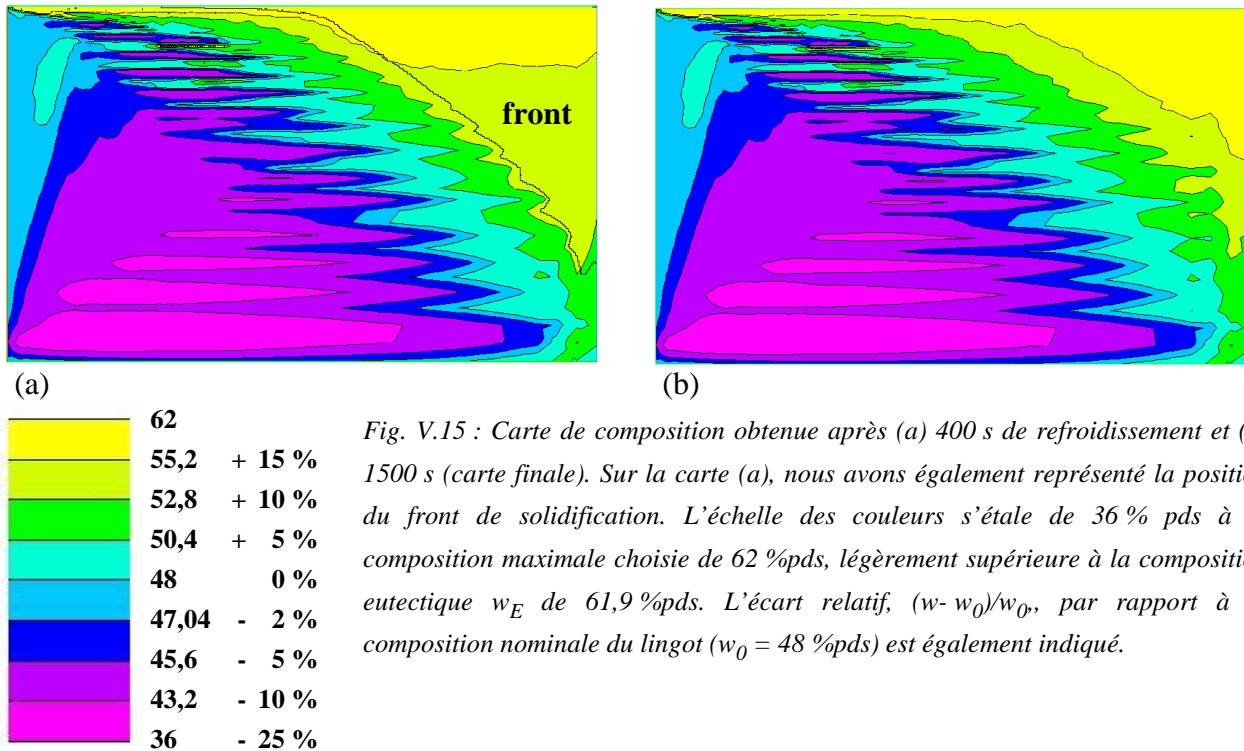


Fig. V.15 : Carte de composition obtenue après (a) 400 s de refroidissement et (b) 1500 s (carte finale). Sur la carte (a), nous avons également représenté la position du front de solidification. L'échelle des couleurs s'étale de 36 % pds à la composition maximale choisie de 62 %pds, légèrement supérieure à la composition eutectique  $w_E$  de 61,9 %pds. L'écart relatif,  $(w-w_0)/w_0$ , par rapport à la composition nominale du lingot ( $w_0 = 48$  %pds) est également indiqué.

La figure V.15 a) montre une stratification du champ de composition dans la zone liquide, dans la partie supérieure droite du lingot. Celle-ci s'explique par la remontée du liquide riche en élément d'alliage. On observe ainsi, sur la carte finale V.15 b), une ségrégation positive dans la partie supérieure droite du lingot et une ségrégation négative dans la partie inférieure gauche. Ce résultat est similaire à celui obtenu sans surfusion (Fig. IV.10).

Les cartographies de la figure V.15 montrent également des profils de ségrégation étirés selon la longueur du lingot. Les zones ségrégées négativement tendent à s'aligner horizontalement et les courbes d'isoconcentrations sont perturbées. Ce profil découle directement de la déstabilisation du front de croissance de la structure de grain. La figure V.16 présente une superposition du champ de composition et du front de solidification, 200 s après le début du refroidissement. La forme des courbes d'isoconcentration épouse l'instabilité du front. La similarité de cette frontière et des courbes montre sans ambiguïté le lien entre ces phénomènes. La perturbation engendrée au front tend à se développer car la vitesse du liquide,  $u^l$ , et le gradient de température,  $\nabla T$ , sont parallèles. La même analyse peut être faite pour la diffusion de la chaleur à l'origine de la déstabilisation. Au final, les zones d'isoconcentration présentent le profil allongé, orienté dans la direction d'avancée du front, observé sur la figure V.15 b).

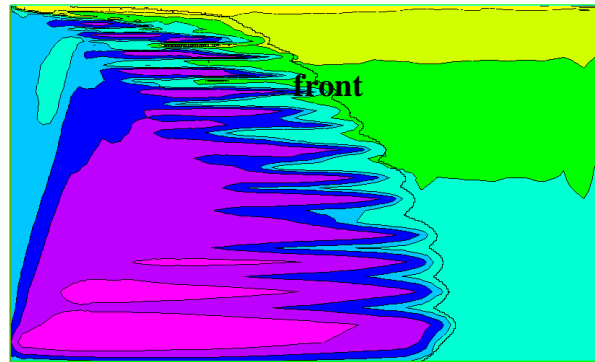


Fig. V.16 : Carte de composition dans le lingot et position du front de solidification à 200 s. L'échelle utilisée est identique à celle de la figure V.15.

### ➤ Comparaison expérimentale

Ces calculs permettent de réaliser une première comparaison de nos profils de composition avec les valeurs expérimentales mesurées par Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] (Tab. IV.5). La figure IV.11 a) montre les écarts qui existent entre simulations et expériences lorsque la surfusion n'est pas considérée au front de solidification et par conséquent en l'absence de grains équiaxes. L'un des buts de notre étude est de montrer l'influence de la prise en considération de cette surfusion au front de solidification. Nous avons ainsi présenté sur la figure V.17 les nouveaux profils de composition obtenus, correspondant à la carte de composition V.15 b), accompagnés des mesures expérimentales.

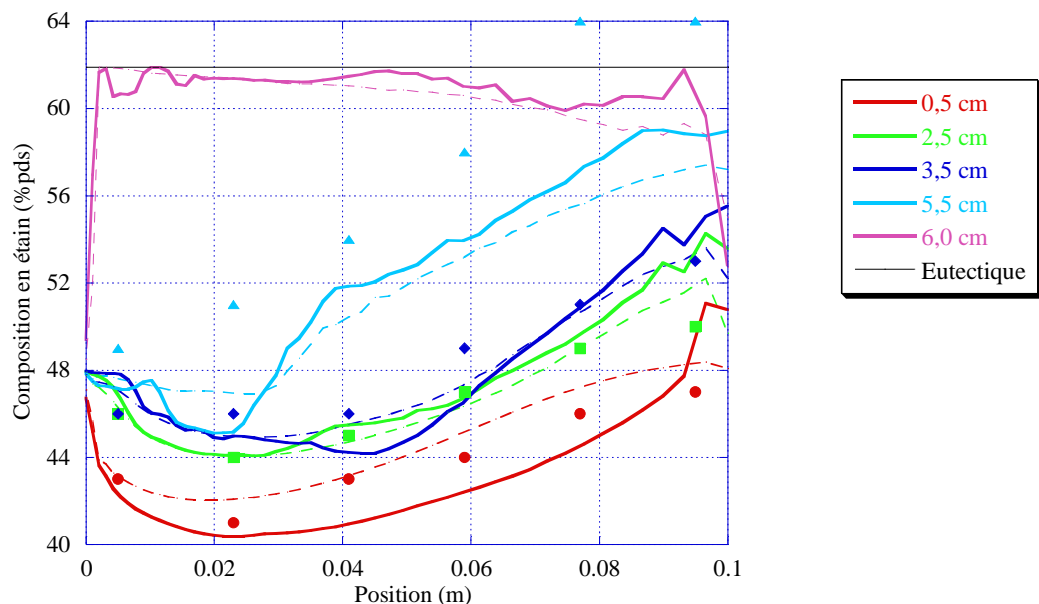


Fig. V.17 : Profils de composition dans le lingot après le développement d'un monograin. En traits épais continus ont été représentées les évolutions aux différentes hauteurs pour lesquelles des mesures ont été réalisées par Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74]. Nous avons également tracé l'évolution de la composition sur la frontière supérieure du lingot soit 6 cm. Les valeurs mesurées expérimentalement sont reprises sous la forme des symboles de même couleur que la ligne correspondante. En traits fins discontinus, sont rappelés les résultats donnés par un calcul purement macroscopique, résultats que nous avons précédemment présentés à la figure IV.11 a). A titre d'information, nous avons également tracé une horizontale indiquant l'eutectique,  $w_E$  à 61,9 % pds.

Le profil tracé à 5,5 cm révèle une ségrégation négative marquée en début de lingot, due à la traversée d'une instabilité de composition telles qu'elles sont observables dans la partie supérieure gauche du lingot sur la figure V.15 b). A partir d'une distance de 3 cm, ce même profil montre que les compositions sont également plus élevées, ce qui permet de se rapprocher des valeurs expérimentales. La fin du profil tracé à 5,5 cm indique ainsi que l'on se rapproche fortement de la composition eutectique, de 61,9 %, ce que ne révélait pas le calcul macroscopique. Le tracé du profil de composition à 6 cm de hauteur montre d'ailleurs que les derniers volumes solidifiés, dans le coin supérieur droit, ont une composition voisine de l'eutectique, exception faite des derniers millimètres. A cette hauteur, les compositions calculées sont également supérieures à celle du simple calcul non couplé et montrent une décroissance moins marquée.

Aux hauteurs intermédiaires de 2,5 cm et 3,5 cm, les profils sont peu modifiés en valeur mais présentent une oscillation due aux gradients de composition verticaux importants. Une variation faible de la hauteur donne des résultats sensiblement différents, comme le suggère la carte V.15 b). De manière similaire à ce que l'on observe à une hauteur de 5,5 cm, la fin de la solidification est marquée par une remontée de la composition.

Enfin, le dernier profil tracé, à 0,5 cm du bas du lingot, prédit des ségrégations nettement plus négatives que celles prédites par le calcul purement macroscopique. On retrouve des valeurs plus proches de celles mesurées expérimentalement, notamment en ce qui concerne les deux premières mesures.

L'écart entre les valeurs issues de la simulation et les celles obtenues expérimentalement s'explique aussi par la méthodologie développée par Hebditch [Heb73] pour procéder aux mesures. Celles-ci sont basées sur le calcul de la quantité de soluté contenu dans un petit cylindre, de rayon 2 mm, centré sur les points dont les coordonnées (Tab. IV.5) ont été utilisées sur nos figures pour donner les valeurs expérimentales. Cependant, le diamètre important du cylindre ainsi prélevé conduit à mesurer la valeur moyenne de la composition sur un volume dont la taille n'est pas nécessairement proportionnelle aux variations de composition structurale. Ainsi, la figure V.18 représente les profils de composition obtenus numériquement aux hauteurs précédentes de 0,5 cm, 2,5 cm, 3,5 cm et 5,5 cm ainsi qu'aux hauteurs situées à plus ou moins 2 mm de celles-ci. On obtient un encadrement dans lequel devrait se situer la mesure. Les nouvelles courbes tracées permettent effectivement de se rapprocher de l'expérience. Elles montrent des compositions plus importantes sur les premiers centimètres solidifiés aux environs de 5,5 cm que ne le donnait le premier profil (Fig. V.17). Elles permettent également d'approcher le dernier point de mesure. De même, les deux nouveaux profils tracés à 3,3 cm et 3,7 cm sont plus proches des valeurs expérimentales à cette hauteur. L'étude de l'intervalle d'incertitude sur les courbes nous donne la possibilité d'encadrer nos premiers résultats d'une marge d'incertitude, celle-ci ayant été bien moindre dans le cas d'un profil de composition non perturbé tel que nous l'avons observé dans les résultats obtenus sans couplage.

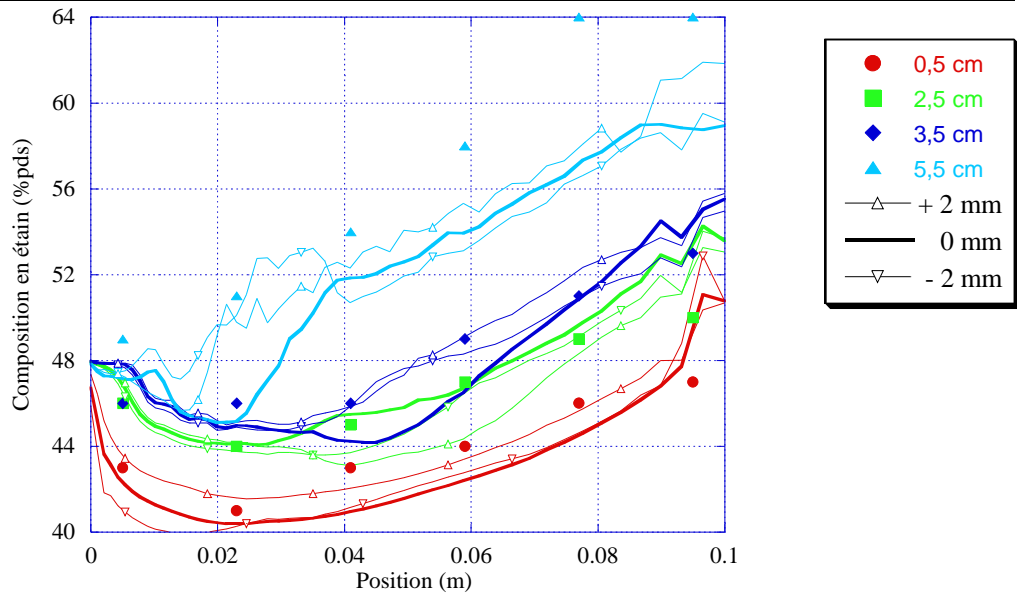


Fig. V.18 : Profil de composition dans le lingot aux hauteurs de 0,5 cm, 2,5 cm, 3,5 cm et 5,5 cm ainsi qu'aux hauteurs situées 2 mm en-dessous ('-2 mm', symbole  $\nabla$ ) et au-dessus ('+ 2 mm', symbole  $\Delta$ ) de celles-ci. Les mesures expérimentales de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] sont également rappelées.

### ➤ Rôle de l'orientation

Le monograin dont la solidification vient d'être étudiée avait été choisi avec une orientation cristallographique nulle. Il est néanmoins intéressant d'étudier le rôle de cette orientation sur le champ de composition final. Dans des conditions de croissance similaires aux précédentes, nous avons ainsi simulé la solidification de monograins d'orientations cristallographiques différentes. Les cartes de composition finales sont représentées sur la figure V.19 pour des lingots entièrement solidifiés, après 1500 s de refroidissement, accompagnées de l'évolution des positions occupées par le front de solidification.

Cette figure V.19 (à comparer avec la figure V.12) montre que le profil de l'instabilité au front de solidification est fonction de l'angle d'orientation. Les oscillations observées initialement sont dirigées selon la direction cristallographique [10] du grain qui, elle-même, fixe sa direction de croissance privilégiée. La diminution progressive du gradient thermique au front permet de faire réapparaître cette direction à l'échelle macroscopique, sous la forme d'une orientation privilégiée de croissance des déstabilisations. Le champ de ségrégation est également modifié car les domaines dont la solidification est ralentie ont tendance à être plus riches en éléments d'alliages, de manière identique à ce que permettaient d'observer les figures V.15 dans le cas d'une orientation cristallographique de la direction [10] nulle. Les cartes finales de composition V.19 montrent, initialement, des profils de composition parallèles, alignés selon les directions cristallographiques [10]. Au cours du processus de solidification, vers 200 s, les perturbations apparues en bas des lingots s'atténuent (Fig. V.19). Elles sont remplacées par de nouvelles perturbations apparaissant en haut du front et qui fixent de nouvelles orientations de la ségrégation du grain. La diminution progressive de l'angle  $\theta$ , de  $0^\circ$  à  $-44^\circ$ , atténue les ségrégations en bas de lingot. Parallèlement, cette diminution rend plus importantes les ségrégations observées en fin de solidification dans la zone supérieure du lingot. La direction de ces nouvelles instabilités, bien que moins bien définie,



dépend également de l'orientation cristallographique [01] du grain. Elle ne semble cependant pas uniquement fixée par cette direction cristallographique qui constitue pourtant une direction de croissance privilégiée.

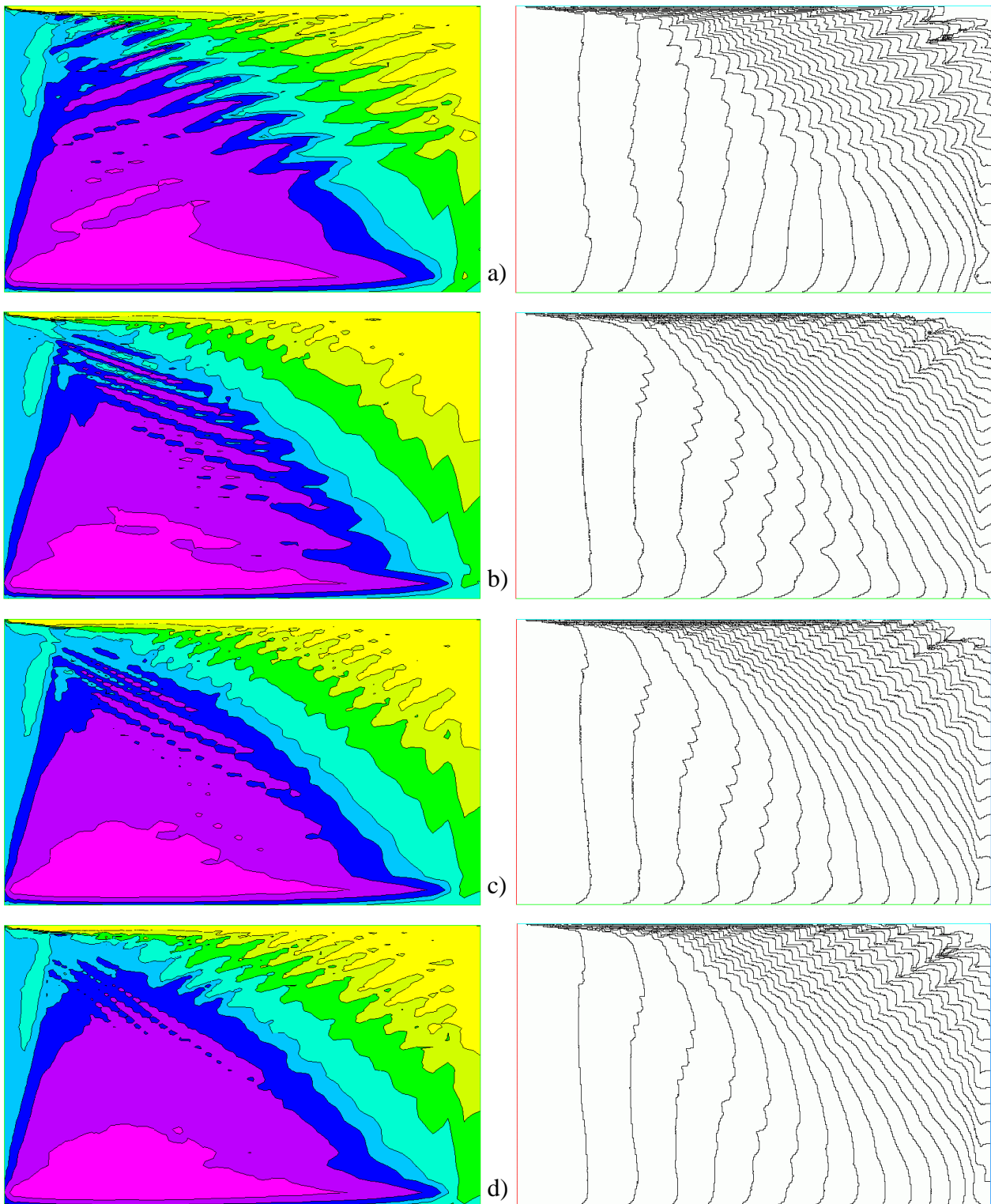


Fig. V.19 : Gauche) cartes de composition finale de 4 lingots d'alliage Pb-48% pds Sn obtenus après croissance d'un monograin. L'orientation cristallographique  $\theta$  choisie pour le germe varie entre les figures : a)  $\theta = +24^\circ$ , b)  $\theta = -24^\circ$ , c)  $\theta = -34^\circ$ , d)  $\theta = -44^\circ$ . Droite) En vis-à-vis, est représenté, toutes les 25 secondes, les positions successives du front de solidification, durant les 750 premières secondes du refroidissement. L'échelle utilisée pour les cartes de composition est identique à celle de la figure V.15.



### V.2.1.b. Croissance de plusieurs grains

#### ➤ Structure

Une seconde simulation de la croissance d'une structure colonnaire a été réalisée en considérant le développement concurrent de plusieurs grains colonnaires d'orientations aléatoires. Ceux-ci apparaissent sur la paroi gauche lorsque leur surfusion de germination est atteinte puis se développent dans le bain liquide. Au-delà d'une zone de peau de quelques millimètres, seuls subsistent les grains les mieux orientés. La figure V.20 représente leur développement et montre la compétition qui aboutit à la disparition progressive des grains les moins bien orientés.

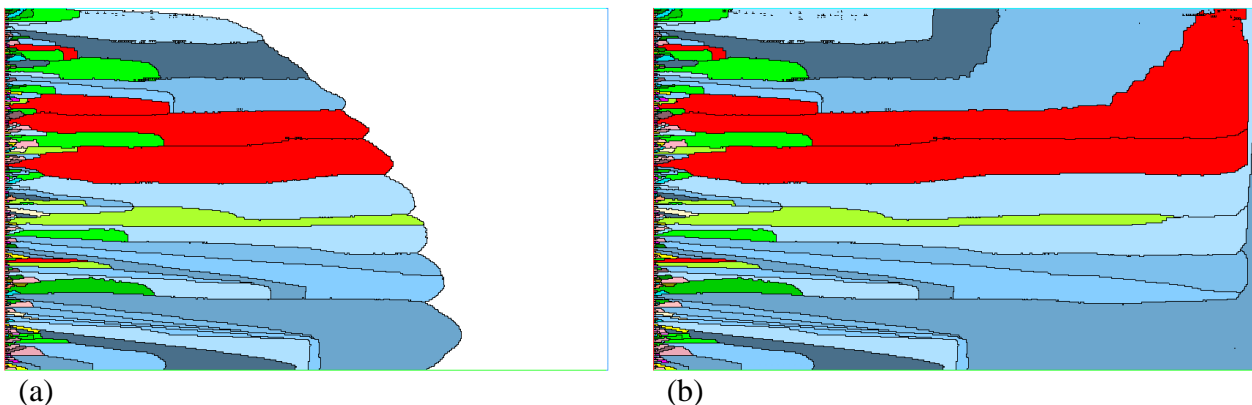


Fig. V.20 : a) Structure de grains colonnaire obtenue après 200 s de refroidissement. La taille des cellules est de 200  $\mu\text{m}$  et les cellules germantes, présentes sur la paroi gauche de la lingotière, possèdent une orientation aléatoire et une surfusion de germination donnée par une loi normale de moyenne 1  $^{\circ}\text{C}$  et d'écart-type 0,5  $^{\circ}\text{C}$ . b) Structure finale de grains dans le lingot solidifié, après 1500 s de refroidissement.

La direction de croissance privilégiée est donnée par le flux de chaleur qui est, en première approximation, horizontal. Ainsi, les grains colonnaires observés possèdent des orientations cristallographiques d'angles faibles. Après 50 secondes, on remarque que ces angles se répartissent équitablement entre des valeurs positives (couleur verte) et négatives (couleur bleue). Lorsque la croissance se poursuit, les cristaux d'orientations positives disparaissent progressivement et seuls les cristaux d'orientations négatives subsistent. Ce phénomène s'explique par le mouvement ascendant du liquide au front de solidification. Cette remontée du liquide, due au rejet de soluté, permet aux grains d'orientation  $\theta < 0$  d'être privilégiés dans leur développement et d'être présents majoritairement à partir de la moitié du lingot. Cependant, sur l'ensemble du lingot, la variation de l'orientation cristallographique des grains reste faible. D'autre part, une instabilité au front est visible sur la carte de structure obtenue après 200 s de refroidissement. La croissance compétitive de plusieurs grains ne modifie pas cette instabilité qui a les mêmes origines que celle observée pour la croissance de monocristaux. Elle se développe préférentiellement entre les grains, leurs donnant un profil 'bombé' à leur frontière avec le bain liquide. Les zones de séparation entre grains apparaissent en retrait par rapport à la position moyenne du front.

➤ **Ségrégation**

Cette similitude du profil de l'instabilité au front de croissance avec celle dont nous avons observé le développement sur la figure V.12 explique que le champ de composition (Fig. V.21) reste relativement similaire à celui que nous avons décrit dans le cas de la croissance d'un monograin d'orientation cristallographique nulle (Fig. V.15 et V.16).

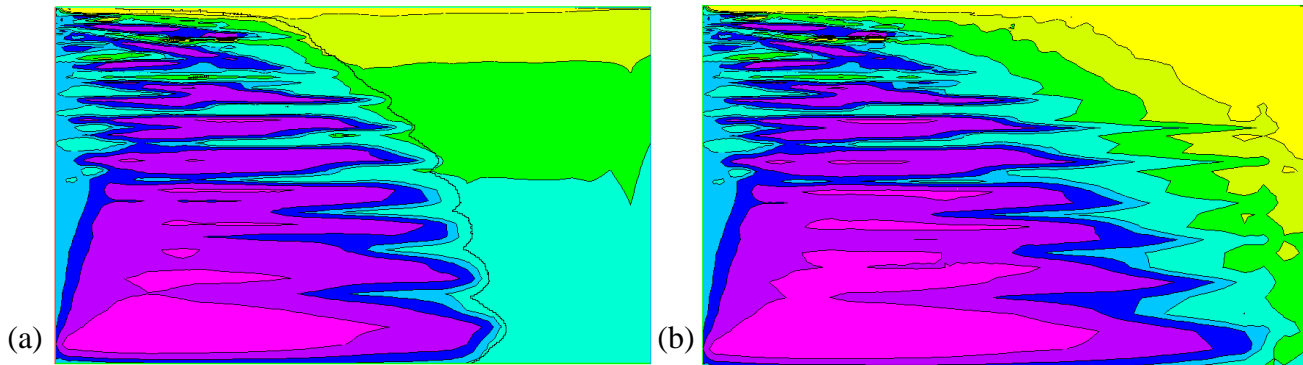


Fig. V.21 : a) Superposition de la carte de composition obtenue après 200 s de refroidissement et de la position du front de croissance. b) Carte de composition finale sur le lingot solidifié. Ces cartes correspondent aux structures présentées à la figure V.20. L'échelle utilisée est identique à celle de la figure V.15.

On retrouve les mêmes courbes d'isoconcentration allongées, indiquant une croissance de grains d'orientation cristallographique faible, comme le montre la structure. Comme attendue, la carte de composition est guidée par la position des grains (Fig. V.21). Les creux qui se développent entre les grains s'enrichissent en soluté, donnant naissance à de longues bandes horizontales ségréguées positivement et les pointes des grains placées en avant du front se développent avec des compositions faibles. On remarque également que le soluté se répartit sous la forme de strates dans le bain liquide, selon des niveaux de concentration croissants au fur et à mesure que l'on s'élève dans le lingot. Ces strates avaient déjà été observées sur la figure V.15. Elles s'expliquent par la position verticale du vecteur gravité. A l'état de repos, ou pour de faibles vitesses du liquide, telles celles de l'ordre de  $1 \text{ mm.s}^{-1}$  que nous observons, seules des lignes d'isoconcentrations horizontales, normales au vecteur gravité, peuvent être observées. Si celles-ci se positionnent différemment, un courant liquide apparaît.

Les profils finaux de composition (Fig. V.22) sont similaires à ceux précédemment étudiés (Fig. V.17). Seules des variations plus importantes de la composition en fonction de la position sont visibles à 5,5 cm. En raison de la remontée rapide du soluté aux premiers instants de la solidification et de la structure granulaire locale, la concentration varie entre 42 % pds et 52 % pds sur les premiers centimètres solidifiés. Par la suite, elle augmente régulièrement pour atteindre la valeur eutectique en bout de lingot. Les compositions atteintes sur les derniers centimètres sont plus importantes que celles que nous avons obtenues pour la croissance d'un monograin. Néanmoins, comme cela a été précisé précédemment, les gradients verticaux de concentration sont importants sur l'ensemble du lingot. Il en résulte que les profils horizontaux sont fortement dépendants de la hauteur et varient rapidement en fonction de celle-ci, ce que nous avons mis en évidence sur la figure V.18.

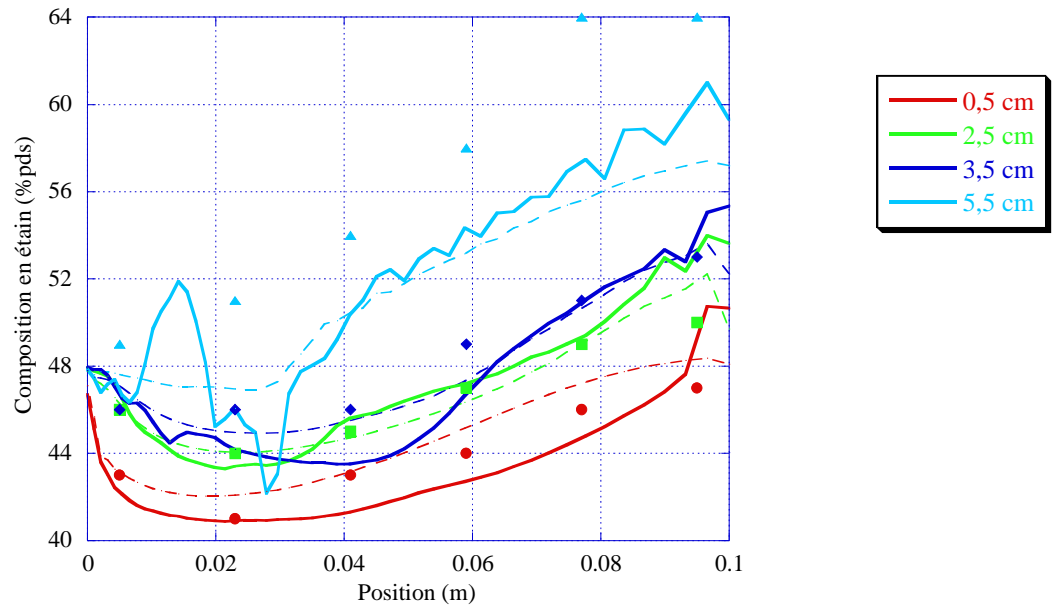


Fig. V.22 : Profils fins de composition dans le lingot (traits continus), après croissance compétitives de grains colonnaires. En traits discontinus sont représentées les évolutions prédites par le calcul purement macroscopique, sans le modèle CA. Les résultats expérimentaux sont indiqués sous la forme des symboles.

## V.2.2. Structures colonnaires et équiaxes

Nous venons de présenter les résultats obtenus pour la croissance de grains colonnaires dans un lingot d'alliage Pb-48 %pds Sn. En même temps que ces résultats permettent d'approcher les valeurs expérimentales de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74], ils montrent de nettes différences avec ceux donnés par Jalanti [Jal00]. En raison de la déstabilisation du front, on observe une forte relation des champs de composition avec la structure de grains colonnaires. De même, les profils de composition se révèlent fortement dépendants de la hauteur choisie pour les tracer.

Dans cette partie, nous allons présenter les différences observées avec les résultats précédents lorsque la germination hétérogène de grains équiaxes dans le bain liquide est prise en considération. Nous montrerons comment la structure granulaire est modifiée et perturbe le champ de composition. Dans un premier temps, nous restreindrons notre étude au cas de grains fixes pour ensuite l'étendre à celle des grains mobiles et étudier ainsi l'influence de la sédimentation.

### V.2.2.a. Grains fixes

Afin d'étudier l'influence de la germination hétérogène de grains équiaxes, nous avons choisi de simuler la solidification du lingot en considérant des paramètres de germination en volume. Aussi avons nous décidé arbitrairement de valeurs pour la loi normale de germination volumique (Eq. III.20), en choisissant une valeur de  $n_{\text{vol}}^{\text{max}}$  de  $10^{10} \text{ m}^{-3}$ , une surfusion moyenne,  $\Delta T_{\text{vol}}^{\text{u}}$ , de  $3 \text{ }^{\circ}\text{C}$  et un écart-type,  $\Delta T_{\text{vol}}^{\text{c}}$ , de  $0,5 \text{ }^{\circ}\text{C}$ . L'orientation cristallographique des germes est aléatoire. La taille des cellules est identique à celle précédemment choisie, soit  $200 \text{ }\mu\text{m}$ . Les grains formés restent immobiles car l'algorithme de mouvement (paragraphe III.2.3.) n'est pas utilisé. Il est à noter que les cartes de structure obtenues ne seront pas comparées à celles présentées par

Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74]. Bien que les résultats de Hebditch et Hunt soient documentés concernant la structure de solidification, les macrographies sont peu ou pas lisibles. Aucune information n'est disponible quant à la nature colonnaire ou équiaxe de la structure.

### ➤ *Comparaison de la structure et de la ségrégation*

La figure V.23 a) superpose la carte de structure obtenue après 100 secondes de refroidissement aux lignes de courant. La vitesse débitante maximale du liquide, égale à  $7,235 \text{ mm s}^{-1}$ , est voisine de celle de  $7,752 \text{ mm s}^{-1}$ , obtenue au même instant, en croissance colonnaire (Fig. V.11 a). Les faibles fractions de solide dans les grains formés expliquent que cette différence reste légère. Le mouvement du liquide n'est perturbé qu'au voisinage des grains les plus importants, dont la fraction de solide interne est suffisamment élevée pour les rendre partiellement imperméables.

Les grains commencent à germer lors des premières secondes du refroidissement, menant à une densité de grains élevée. Cette densité diminue lorsque le front avance et on note la présence de grains de tailles plus importantes dont on voit la croissance sur la figure V.23 a), en bas du lingot, dans le domaine en surfusion. La germination de grains équiaxes préférentiellement dans la partie inférieure du lingot a une origine similaire à celle que nous avons donnée pour expliquer l'avancée du front en bas du lingot sur la figure V.12. L'appauvrissement en soluté de cette zone dû à la faible masse volumique de l'étain augmente la température de liquidus locale. Le liquide entre en surfusion dans cette zone avant la partie supérieure droite du lingot. On favorise alors l'apparition de grains sur les germes disponibles. La taille plus importante de ces grains s'explique par le réchauffement produit par la solidification qui, en augmentant localement la température, empêche la formation d'autres grains en maintenant une surfusion faible. Dans les premiers temps de la solidification, ce phénomène n'apparaît pas car le gradient thermique est important et permet d'évacuer rapidement la chaleur libérée. On retrouve alors de nombreux grains de faibles tailles.

La structure finale, obtenue à 1500 secondes (Fig. V.23 b), confirme les observations faites à 100 secondes. On observe la présence de grains équiaxes de tailles importantes en bout de lingot, notamment dans la partie inférieure. La partie supérieure droite, où se termine le processus de solidification, a une structure relativement différente. La croissance est de nouveau dirigée car les grains équiaxes présentent une morphologie allongée, proche de celle des grains colonnaires. Une analyse des profils de température dans ce domaine le montre clairement. Le refroidissement du domaine supérieur pâteux est suffisamment important pour permettre à un gradient thermique d'apparaître dans le liquide et de contraindre la croissance du front. La réapparition d'une structure équiaxe sur les tous derniers centimètres, au coin supérieur droit, montre que l'on repasse néanmoins dans un régime de solidification non contraint en toute fin de solidification. Cette évolution d'une croissance contrainte à une croissance non contrainte s'apparente fortement à ce que nous avons observé dans le cas du développement des grains colonnaires.

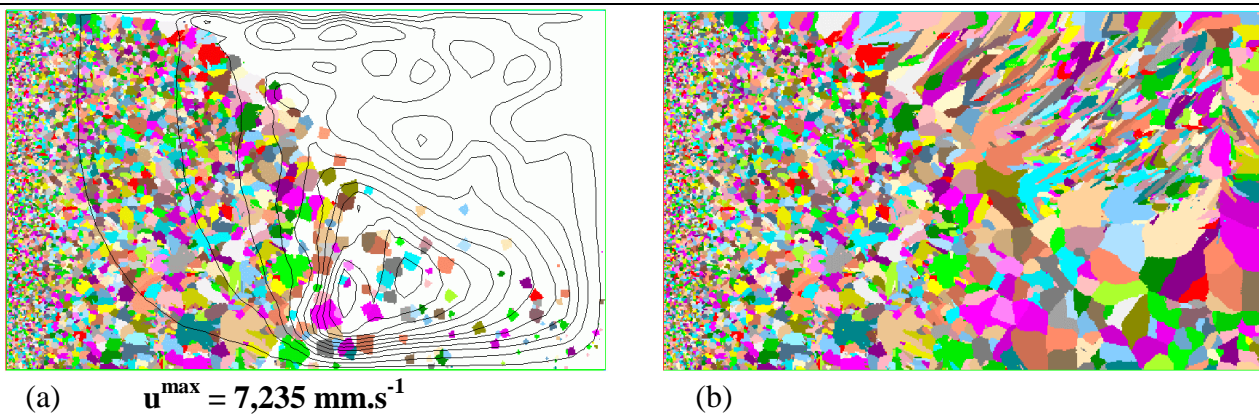


Fig. V.23 : a) Carte de structure en cours de développement, 100 s après le début du refroidissement, à grains équiaxes fixes. Les lignes de courant ont été superposées, montrant un mouvement du liquide perturbé par la présence des grains. b) Carte de structure finale, 1500 s après le début du refroidissement.

La figure V.24 a) présente la carte de composition obtenue aux mêmes instants que ceux définis à la figure V.23. Elle montre l'influence produite par la présence des grains équiaxes sur le profil de composition. Les grains germés dans le bain liquide rejettent du soluté qui est ensuite entraîné par le liquide. Macroscopiquement, les zones équiaxes solidifiées apparaissent appauvries en élément d'alliage, de même que l'ensemble de la zone pâteuse. Loin de ces deux domaines, dans la partie supérieure du lingot, on retrouve des courbes d'isoconcentration horizontales, similaires à la figure V.21 a), et qui montrent la stratification du liquide en domaines de compositions différentes.

La carte finale de composition montre l'influence des grains équiaxes sur la ségrégation. La figure V.24 b) présente des résultats très différents de ceux des figures V.15 b) et V.21 b) ou de la carte de composition obtenue sans prise en compte de la surfusion. La déstabilisation du front due à la présence de nombreux grains équiaxes donne un profil accidenté aux isoconcentrations, notamment dans la zone supérieure gauche où les grains et les éléments sont de petite taille. Pour les domaines de composition supérieure à la composition nominale, dans la partie droite du lingot, on retrouve les profils de ségrégation longilignes déjà décrits précédemment (Fig. V.19) dont l'origine est similaire.

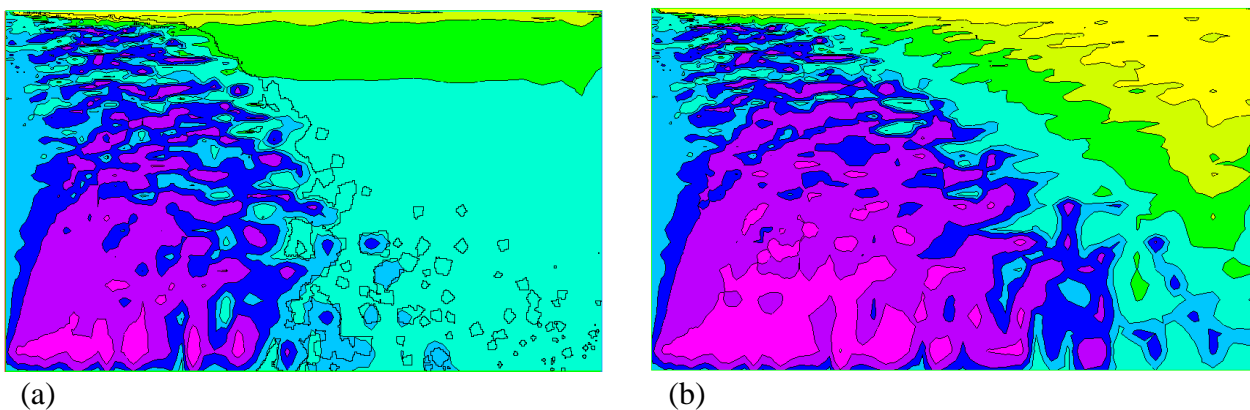


Fig. V.24 : a) Carte de composition après 100 s de refroidissement. On a superposé à cette carte le contour du front de solidification et des grains équiaxes germés devant ce front. L'échelle des compositions est identique à celle utilisée pour la figure V.15. b) Carte de composition finale, après 1500 s de refroidissement.

➤ **Profil de composition**

Le profil de composition montre une évolution oscillante (Fig. V.25). La composition en bas du lingot peut diminuer fortement par rapport aux résultats obtenus sans germination de grains équiaxes (Fig. V.22), notamment dans la première moitié du lingot. On descend localement à des compositions voisines de 38 % pds. Sur l'ensemble de la longueur, on retrouve cependant des résultats voisins des valeurs expérimentales. De même, aux hauteurs intermédiaires de 2,5 et 3,5 cm, les courbes se répartissent généralement de part et d'autre des mesures. Les irrégularités observées aux différentes hauteurs étudiées sont liées à la taille des grains traversés. Aux grains de taille faible sont associées des évolutions rapides de la composition et aux grains de taille plus importante des évolutions plus lentes.

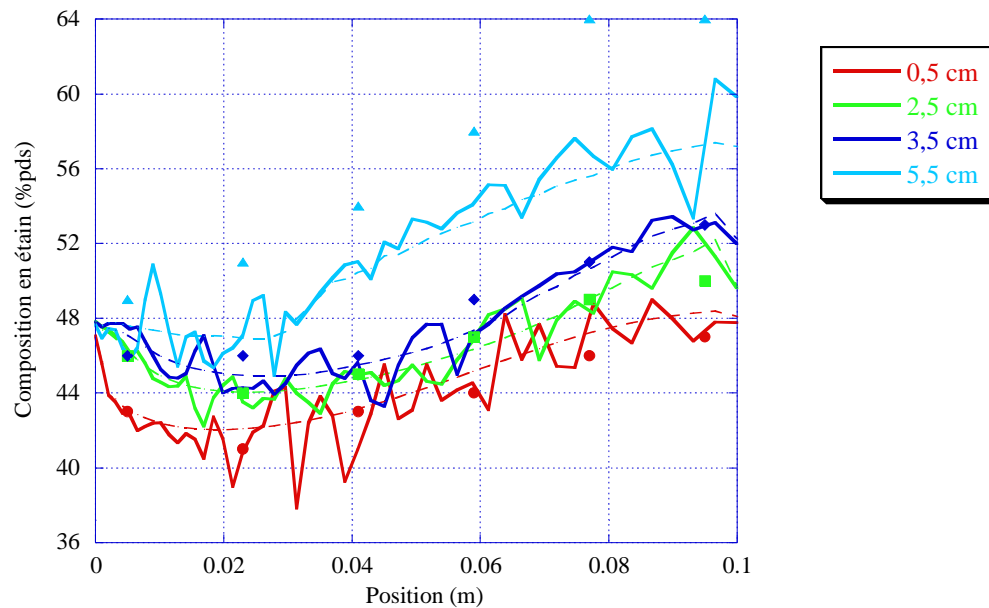


Fig. V.25 : Profil finaux de composition dans le lingot (traits continus), après croissance de grains équiaxes fixes. En traits discontinus sont représentées les évolutions prédites par le calcul purement macroscopique, sans le modèle CA. Les résultats expérimentaux sont indiqués sous la forme des symboles.

### V.2.2.b. Grains libres

Afin de confirmer les observations précédentes et de montrer l'effet induit par la sédimentation sur la composition finale et la structure du lingot, nous avons reproduit la simulation précédente en autorisant le mouvement des grains. Après germination, ces derniers se déplacent dans le bain liquide, selon le modèle présenté aux paragraphes III.2.3 et III.3.3. Nous avons conservé les mêmes paramètres de germination et la taille des cellules du paragraphe V.2.2.a. Le calcul ainsi réalisé consiste en un couplage complet entre les phénomènes de transfert de chaleur, de transport du soluté et de déplacement du liquide. Le modèle CA est celui détaillé au chapitre III, sans les corrections proposées au paragraphe V.1.2. Ainsi, la fraction de solide interne aux cellules,  $g_v^{s,m}$ , est égale à  $\Omega_c$ , la valeur donnée par la règle des bras de leviers, et l'espacement interdendritique,  $\lambda_2$ , est de 40  $\mu\text{m}$  (Tab. IV.4), sa valeur n'évoluant pas au cours du processus.



➤ **Comparaison de la structure et de la ségrégation**

Les figures V.26 a) et V.26 b) présentent la nouvelle carte de structure, en cours de formation, obtenue après respectivement 25 s et 100 s de refroidissement. Elles montrent que le parcours des grains se révèle relativement vertical, en raison de leur inertie élevée. Elles prouvent également que la formation de la structure est nettement différente de celle de la figure V.23 réalisée à grains fixes. Au temps  $t = 100$  s, les grains germés dans le bain liquide dans la partie inférieure droite se retrouvent maintenant sous la forme d'empilements au-dessus de la paroi inférieure de la lingotière. On observe la formation d'une zone composée de petits grains équiaxes sédimentés, sur un principe similaire à celui qui conduit à la formation d'un cône de sédimentation dans les lingots industriels (paragraphe II.4.1.a).

D'autre part, à  $t = 25$  s, dans la partie gauche de la structure, on remarque la formation de longs alignements de grains équiaxes, orientés vers le haut avec un angle voisin de  $45^\circ$  par rapport à l'horizontale (Fig. V.26 a). Ils correspondent à des empilements de grains équiaxes sur le front de solidification. En effet, le modèle que nous avons développé facilite l'attachement des grains. Lorsque deux d'entre eux sont mis en contact, ils sont considérés comme attachés et forment un unique amas. Ainsi, les grains qui sédimentent et rencontrent le front deviennent immobiles puis participent à la formation du front de solidification. La simulation montre alors le développement, sur ce front, de colonnes de grains. Elles offrent une surface de contact importante avec le liquide, favorisant d'autant l'attachement de nouveaux grains. L'ensemble de ces grains solidifie ensuite le liquide contenu entre eux en croissant latéralement. Au final, ces empilements sont discernables sur la structure finale (Fig. V.26 c) et apparaissent séparés par des grains allongés, dont les tailles sont plus importantes.

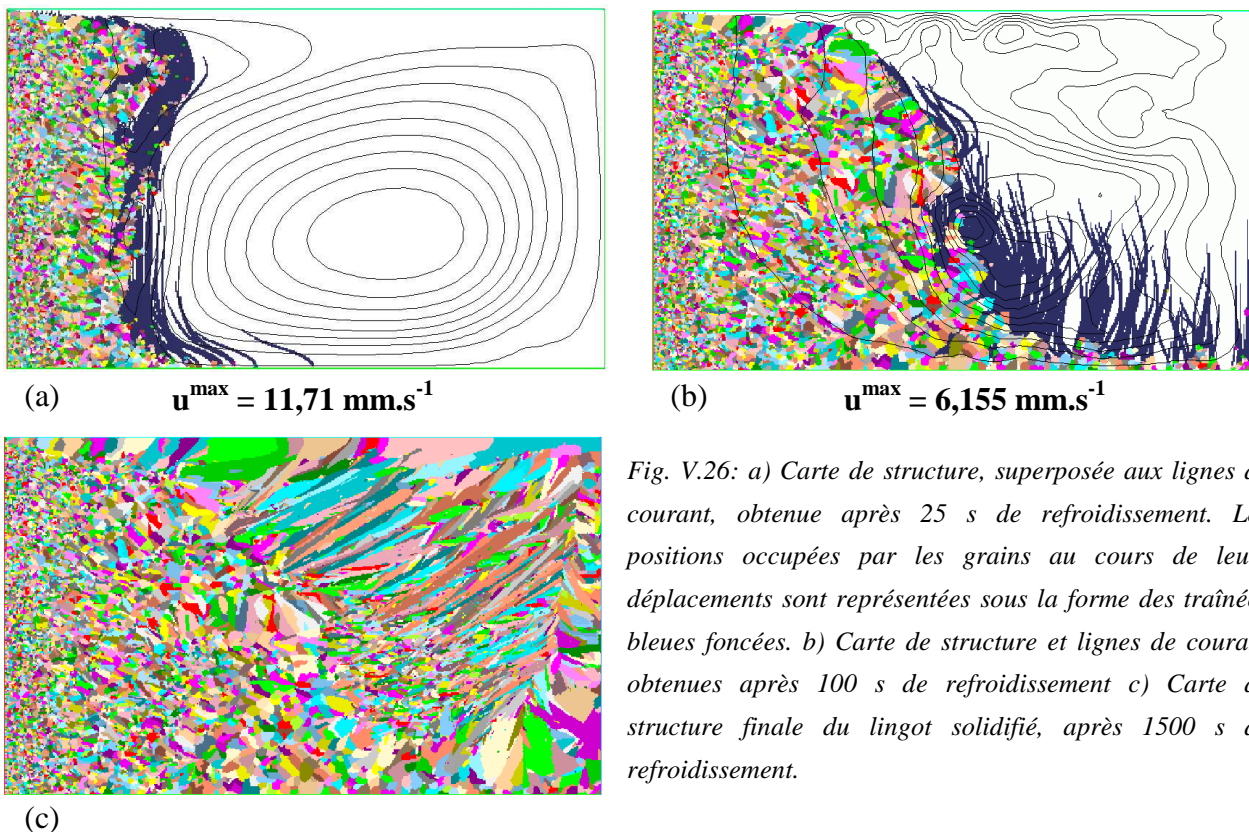


Fig. V.26: a) Carte de structure, superposée aux lignes de courant, obtenue après 25 s de refroidissement. Les positions occupées par les grains au cours de leurs déplacements sont représentées sous la forme des traînées bleues foncées. b) Carte de structure et lignes de courant obtenues après 100 s de refroidissement c) Carte de structure finale du lingot solidifié, après 1500 s de refroidissement.

Sur cette même figure V.26 c), dans le domaine supérieur droit, la structure croît de manière contrainte sur une plus grande surface. En effet, les grains, en se déplaçant, libèrent des zones liquides ce qui permet d'éviter leur réchauffement par le processus de solidification. Un gradient thermique s'établit précocement et de manière durable. La seconde moitié du lingot est ainsi occupée par des grains initialement équiaxes transformés en grains colonnaires.

Il est à noter que le mouvement du liquide apparaît relativement peu modifié par la présence de grains équiaxes sédimentant. Ainsi, les lignes de courant représentées à la figure V.26 b) correspondent à une circulation du liquide dans le sens indirect, identiquement à ce que montrait la figure V.11 a). La sédimentation des cristaux au cours du processus de solidification ne permet pas de modifier l'écoulement liquide, quand bien même elle devrait avoir tendance à provoquer une remontée du liquide en front de solidification. De même, la vitesse débitante maximale du liquide,  $u^{\max}$ , évolue peu, passant de  $7,752 \text{ mm s}^{-1}$  à  $6,155 \text{ mm s}^{-1}$ . La cause de ce phénomène est sans doute à rechercher dans la faible fraction de solide interne aux grains équiaxes car donnée par la règle des leviers et non par un modèle d'enveloppe.

La carte de composition obtenue après 100 secondes de refroidissement (Fig. V.27 b) montre la relation qui existe entre la structure de grain et le phénomène de ségrégation. Aux positions où apparaissent les empilements de grains on remarque la formation de canaux ségrévés. Ceux-ci alternent avec des zones de plus faibles concentrations.

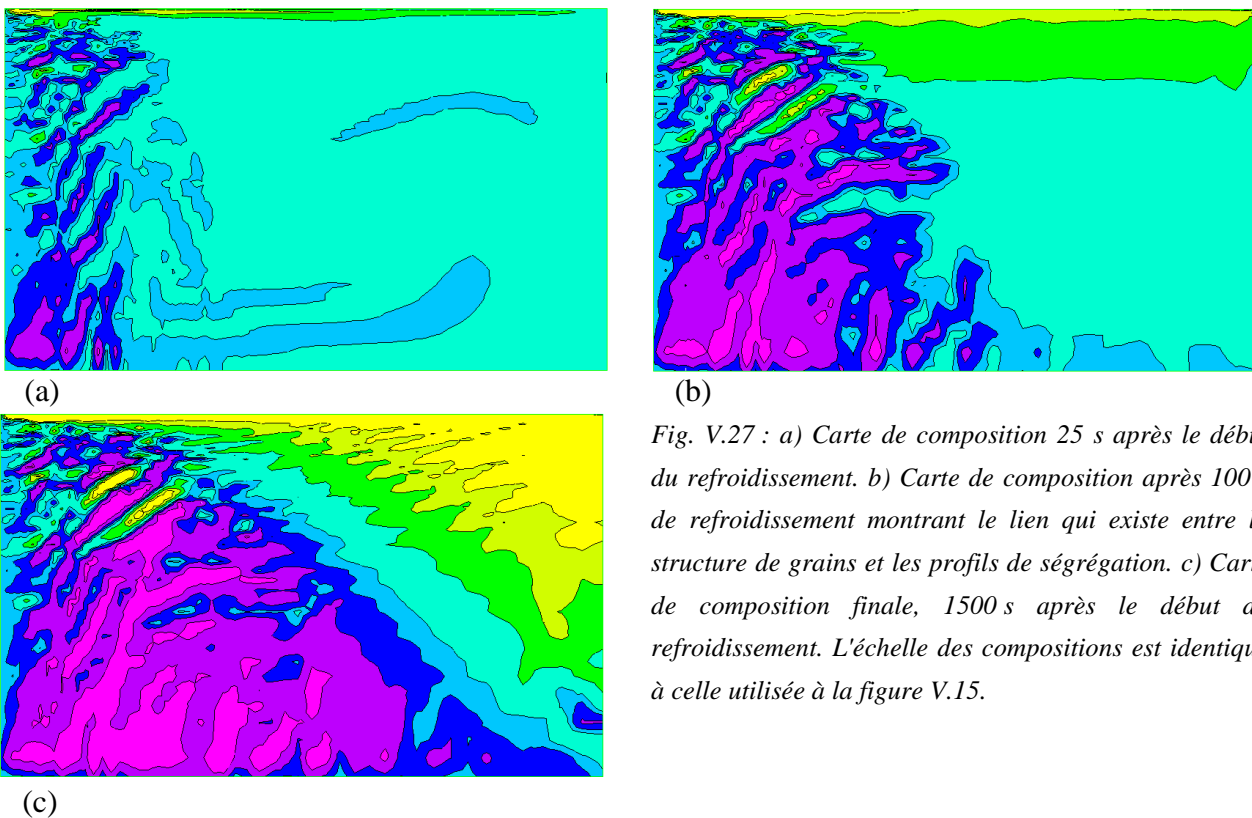


Fig. V.27 : a) Carte de composition 25 s après le début du refroidissement. b) Carte de composition après 100 s de refroidissement montrant le lien qui existe entre la structure de grains et les profils de ségrégation. c) Carte de composition finale, 1500 s après le début du refroidissement. L'échelle des compositions est identique à celle utilisée à la figure V.15.

L'origine des canaux est liée à la formation des empilements. Lorsque deux empilements voisins se forment, les grains qui les composent relâchent du soluté dans la zone liquide qui les sépare. Celui-ci est ensuite transporté vers le domaine liquide, hors de la zone pâteuse, par les mouvements convectifs qui se font parallèlement aux empilements, guidés par la structure de



grains. Etant enrichi en soluté, ils mènent à une refusion partielle du front, ce qui facilite d'autant le transport du soluté. La carte de composition finale montre l'existence de canaux riches en éléments d'alliage, appelés 'freckles', dans la partie supérieure gauche du lingot. Nous en avons décrit les caractéristiques au paragraphe II.4.1.a. Il est remarquable également que les irrégularités des courbes d'isoconcentration données par un calcul en volume finis menés sans prise en considération de la surfusion au front (Fig. II.35 1-a) [Ahm98, Jal00] apparaissent à la même position que les canaux ségrévés présentés à la figure V.27 c).

On doit enfin noter que, à l'échelle de l'ensemble du lingot, la carte de composition présente des caractéristiques identiques à celles présentées initialement aux figures IV.10 d). Les domaines ségrévés positivement et négativement sont situés dans les mêmes zones du lingot et leur intensité est relativement similaire. Ceci indique que le mouvement du liquide présente des caractéristiques similaires entre ces différents calculs.

Les figures V.28 correspondent à un agrandissement réalisé sur la carte de composition donnée à la figure V.27 b), dans la zone supérieure gauche, et à la carte de fraction de solide correspondant au même domaine. Les deux zones blanches centrales, observables sur la figure V.28 b), correspondent à des surfaces de fraction de solide inférieure à 10 % et donc fortement perméables. Le liquide les traverse aisément comme le montre la longueur des flèches indiquant l'amplitude et le sens de l'écoulement ; ce qui permet au milieu de s'enrichir en soluté. De même que pour la déstabilisation d'un front colonnaire, ces figures montrent ici un lien existant entre structure et ségrégation encore peu étudié.

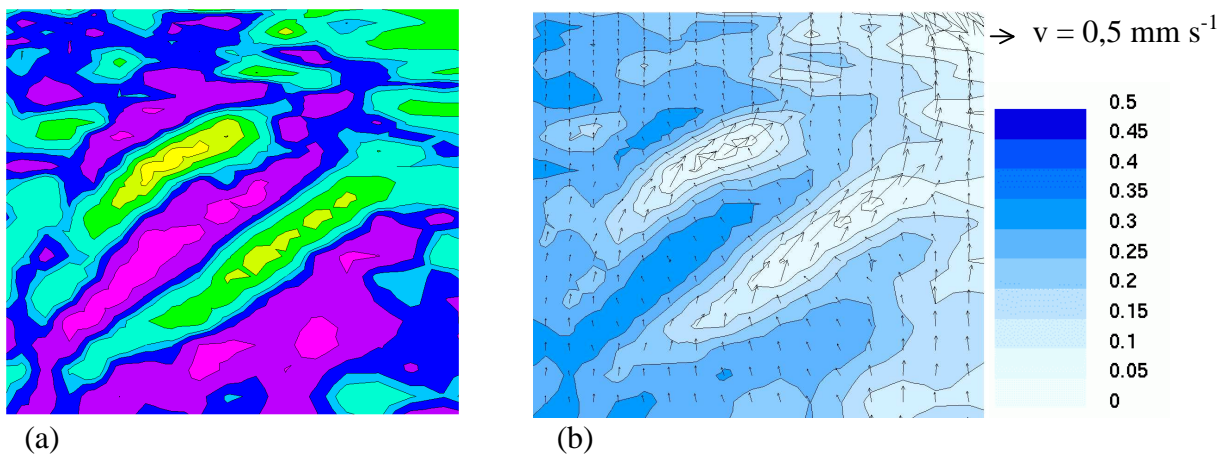


Fig. V.28 : a) Carte de composition dans la zone supérieure du lingot après 100 s de refroidissement. L'échelle des compositions est identique à celle utilisée à la figure V.15. b) Champ de fraction solide correspondant. Le champ de vitesse débitante du liquide,  $u$ , au même instant y est superposé.

Dans le domaine supérieur droit du lingot, où l'on note la formation de grains allongés, similaires à des grains colonnaires sur la structure finale (Fig. V.26 c), s'est formée une instabilité sur le front de solidification, de manière identique à ce que nous avons observé sur la figure V.24 b). Elle conduit également à la création de canaux ségrévés selon un processus similaire à celui que nous avons donné pour la croissance des grains colonnaires (Fig. V.15 et V.21). Ces canaux sont visibles sur la carte de composition finale (Fig. V.27 c). Celle-ci montre clairement

l'ensemble des canaux ségrévés formés, à la fois par l'attachement de grains équiaxes et par les instabilités sur le front de croissance colonnaire. Dans ce dernier cas, les canaux sont cependant de plus faibles amplitudes mais recouvrent une part importante du domaine solidifié.

### ➤ *Profils de composition*

Les profils de composition, tracés aux hauteurs fixées précédemment, sont donnés à la figure V.29. La présence d'un plus grand nombre de grains colonnaires dans la partie droite du lingot par rapport à la structure obtenue à grains fixes se retrouve dans ces profils dans la zone colonnaire. On note que les courbes tracées à mi-hauteur (2,5 cm et 3,5 cm) apparaissent plus régulières que dans les cas précédents. De même, le profil donné à 0,5 cm présente des amplitudes de composition légèrement moindres, notamment dans la seconde partie du lingot où se rencontrent les petits grains équiaxes sédimentés. On retrouve dans ce résultat l'influence de la structure de grain sur le champ de composition. La traversée des canaux ségrévés est également observable sous la forme de diminutions rapides de la concentration.

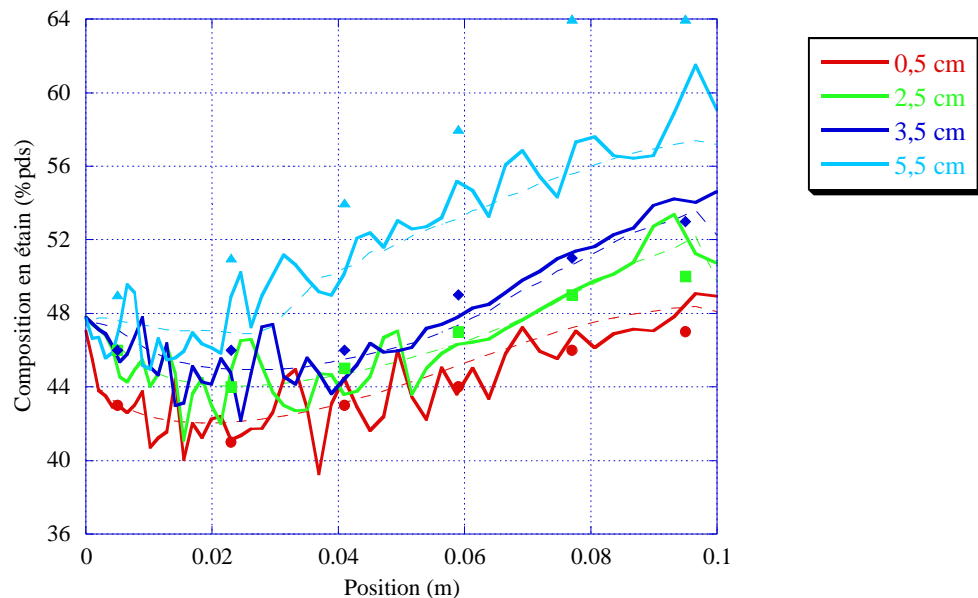


Fig. V.29 : Profils fins de composition dans le lingot (traits continus) après croissance de grains équiaxes mobiles. En traits discontinus sont représentées les évolutions prédites par le calcul purement macroscopique, sans le modèle CA. Les résultats expérimentaux sont indiqués sous la forme des symboles.

Des gradients importants de composition persistent toujours dans ces conditions de solidification. Ils sont notamment visibles sur la carte de composition V.27 c) qui montre des évolutions rapides de la composition à l'intérieur du lingot, notamment dans le domaine supérieur gauche où se situent les canaux ségrévés. Dans ce domaine, la carte de composition locale montre une alternance rapide de zones ségrévées positivement ( $w > w_0$ ) ou négativement ( $w < w_0$ ). A l'inverse, la partie basse du lingot apparaît de composition plus uniforme. Ces phénomènes sont mis en évidence par le tracé des profils horizontaux de composition aux deux hauteurs de 0,5 cm et 5,5 cm (Fig. V.30). L'importance des gradients verticaux est visible à l'aide des profils tracés à plus ou moins 2 mm de ces hauteurs, cette distance correspondant au rayon des cylindres utilisés par Hebditch et Hunt pour mesurer les compositions moyennes en éléments d'alliage.

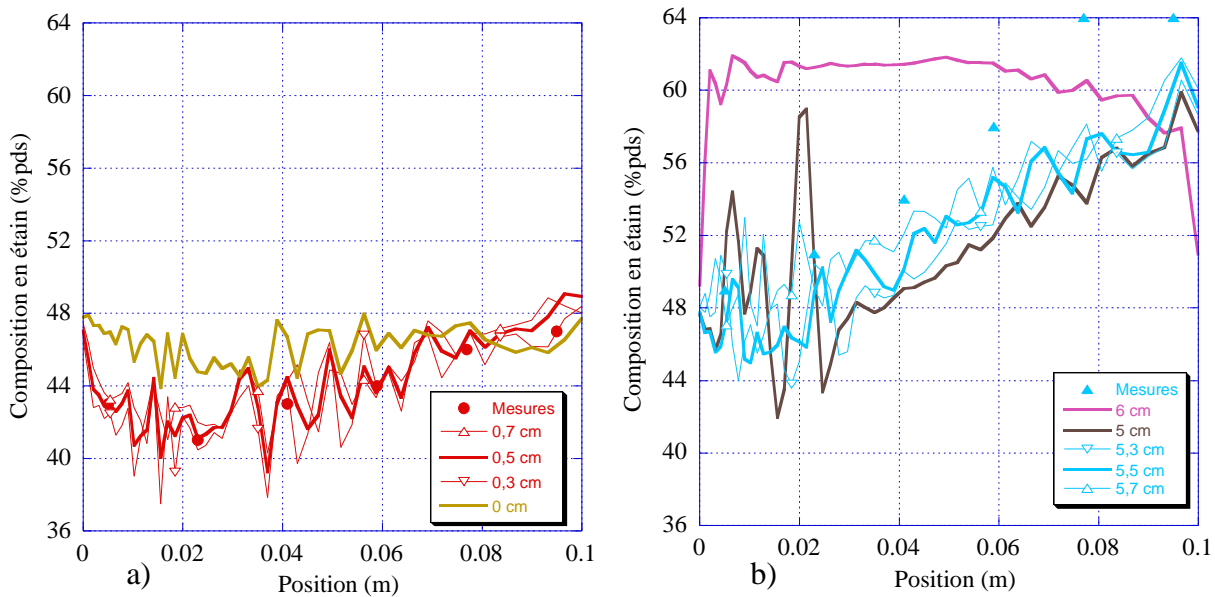


Fig. V.30 : Evolution de la composition en fonction de la position : a) Au voisinage du profil tracé à 0,5 cm. b) Au voisinage du profil tracé à 5,5 cm. Les résultats des mesures sont indiqués par les symboles. Le profil de composition sur la frontière inférieure du lingot (0 cm) a été indiqué sur la figure a) et celui correspondant à la frontière supérieure (6 cm) sur la figure b). Le tracé d'un profil de composition à 5 cm sur la figure b) révèle la présence de canaux ségrégués dans la partie supérieure gauche du lingot.

Les profils tracés sur la figure V.30 montrent une nette différence dans les variations de composition à ces deux hauteurs. Comme attendue de la lecture de la carte V.27 c), ces variations, notamment verticales, apparaissent moins marquées, à une hauteur de 0,5 cm. La traversée des canaux ségrégués est discernable sur les profils V.30 b) par les évolutions rapides de la composition en début de solidification mais aussi par les variations importantes autour de cette position soit entre 5,3 cm et 5,7 cm. Le profil tracé à une hauteur de 5 cm sur la figure V.30 b) révèle définitivement la présence de ces canaux. Cette hauteur ayant été choisie de manière à traverser l'un des canaux visible sur la figure V.27 c), on y observe une remontée rapide de la composition jusqu'à atteindre une valeur de 59 %pds d'étain. Le profil tracé à 6 cm montre également l'existence d'un canal ségrégué sur la frontière supérieure du lingot. Son évolution le long du lingot est similaire à celui précédemment décrit à la figure V.17.

### V.2.3. Bilan et perspectives

Les simulations que nous avons effectuées sur la croissance d'un front de solidification dans un lingot d'alliage Pb-48%pds Sn nous ont permis de mettre en évidence plusieurs phénomènes.

Tout d'abord, des différences importantes apparaissent avec la prise en considération de la surfusion. Nous avons ainsi montré l'apparition d'une instabilité sur le front de solidification et son développement au cours du refroidissement (Fig. V.10 b), 11 b), 12). Cette instabilité apparaît dès lors que le gradient thermique dans le liquide devient suffisamment faible pour permettre une croissance non contrainte. Les faibles dimensions du lingot et les mouvements convectifs du

liquide provoquent une homogénéisation thermique rapide du bain liquide. Cette homogénéisation entraîne une diminution du gradient thermique dans le liquide et l'apparition d'un régime de croissance non-contraint, typique d'une structure équiaxe. Il conduit à la formation de 'superdendrites' [Fai75.1,Fai75.2]. L'instabilité apparue se développe ensuite le long de la première moitié du lingot et se remarque encore lorsque le front atteint le côté de la lingotière opposé au refroidisseur. Sa position précise reste cependant liée au maillage utilisé. La conséquence de ce phénomène est un retard local de la solidification (Fig. V.12) et l'apparition de domaine ségrégué entre ces instabilités (Fig. V.15,16). De plus, ces ségrégations s'orientent selon des directions dépendantes de l'orientation cristallographique du grain et donc de la direction de croissance privilégiée. Ce phénomène est particulièrement notable en début de solidification (Fig. V.19). Cette déstabilisation apparaît également lors de la croissance de grains équiaxes mais se manifeste alors notamment par l'attachement mutuel de grains le long du front (Fig. V.26). Ce résultat démontre l'influence des structures colonnaires et équiaxes sur la déstabilisation du front et la création d'irrégularités de composition chimique.

D'autre part, nous observons, en régime de croissance équiaxe, une évolution irrégulière de la composition le long du lingot, aux différentes hauteurs choisies (Fig. V.25,V.29). Celle-ci s'explique, d'une part, par le fait qu'il s'agisse de valeurs locales. Elles n'ont pas été moyennées sur des volumes similaires tels ceux ayant servis à l'analyse menée par Hebditch et Hunt. Nous nous sommes contentés de représenter l'évolution locale de cette composition le long de lignes horizontales tracées aux hauteurs considérées. Comme nous l'avons montré (Fig. V.18), l'absence d'utilisation de moyenne, rend ces évolutions extrêmement sensibles aux positions des points considérés. Néanmoins, le tracé des profils à des hauteurs situées à la distance de 2 mm des hauteurs initialement choisies donne un domaine d'imprécision qui permet de recouvrir les valeurs expérimentales en bas de lingots (Fig. V.30 a).

Les écarts entre mesures et simulations sont plus importants dans la partie supérieure du lingot (Fig. V.29,30). De même, les profils voisins ne permettent plus d'encadrer les résultats expérimentaux. Cependant, le profil tracé à 5,5 cm montre un net accroissement de la composition par rapport à celui obtenu par un calcul purement macroscopique. D'autre part, le profil de composition tracé sur la frontière du lingot démontre que la solidification se déroule avec des compositions moyennes extrêmement proches de l'eutectique et très supérieures aux valeurs rencontrées quelques millimètres en dessous. Ce résultat est similaire à celui que nous avons dans le cas d'un monograin colonnaire (Fig. V.17). L'importance du gradient de composition dans ce domaine prouve la grande incertitude qui existe dans l'estimation des valeurs moyennes des compositions dans cette zone. Les valeurs que nous avons calculées et l'encadrement que nous en faisons permettent seulement de se rapprocher des valeurs expérimentales.

La croissance et la sédimentation de grains équiaxes révèle également l'apparition de canaux ségrégués orientés dans la direction d'écoulement du liquide. Ils sont causés par plusieurs phénomènes couplés, intervenant simultanément. D'une part, des irrégularités du front de solidification dues à l'empilement des cristaux équiaxes sur celui-ci, notre modèle ne permettant pas le glissement mutuel des grains. D'autre part des phénomènes de ségrégation et de mécanique

des fluides qui provoquent un enrichissement du liquide et le contraignent à se déplacer parallèlement aux irrégularités de la structure. Les cartes de composition V.27 montrent le développement de ces canaux, après que la structure granulaire ait été perturbée. Le liquide riche en éléments d'alliage s'écoule à travers ceux-ci. L'un de ces canaux, situé dans la partie supérieure gauche du lingot, apparaît clairement dans le profil tracé à 5 cm (Fig. V.30 b) sous la forme d'une augmentation rapide, sur une courte longueur, de la composition.

Les irrégularités dans les profils montrées sur les séries de courbes V.22, V.25, V.29 et V.30 s'expliquent également par la structure de grains. Le profil tracé à 0,5 cm sur la figure V.25, sans prise en compte de la sédimentation des grains équiaxes, montre clairement ce lien. Sur les 2 premiers centimètres solidifiés, l'évolution de la composition apparaît relativement monotone, marquée par de faibles longueurs d'irrégularités. Parallèlement, la lecture de la carte de structure V.23 b) démontre que ce domaine est composé de grains de petites tailles. Sur les 8 derniers centimètres solidifiés, on observe des irrégularités dont la longueur est de l'ordre de plusieurs millimètres. Dans ce domaine, on retrouve des grains de tailles importantes, similaires à celles de ces perturbations. Cette comparaison montre le lien qui existe entre les deux phénomènes. A des grains de petite taille sont associées des variations rapides et de faible amplitude de la composition. A contrario, pour des grains de grande taille, on observe des évolutions lentes mais importantes. S'il apparaît particulièrement net sur cette structure où la variation de la taille des grains est importante, ce phénomène ressort également de la comparaison des cartes de structure V.20 b) et V.26 c) et des profils correspondants (Fig. V.22 et V.29).

Enfin, un problème notable apparaît à la lecture des résultats expérimentaux de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74]. Les deux dernières mesures expérimentales de la composition donnent des valeurs supérieures à la composition eutectique que nos calculs ne permettent pas de prédire. Nous nous intéressons à l'évolution de la ségrégation en considérant le diagramme de phase du composé binaire Pb-Sn, dans lequel l'élément d'alliage est l'étain. Il ne nous est ainsi pas possible d'étudier l'évolution de la ségrégation dans le composé Sn-Pb, et donc de prédire des compositions hypereutectiques.

Afin de mettre en évidence de manière définitive et de quantifier la relation entre structures de grains et cartes de composition que révèle notre étude, d'autres expériences de solidification devraient être réalisées. En les accompagnant d'une carte de structure précise et de la mesure du champ de ségrégation à l'échelle mésoscopique, c'est à dire à l'échelle des grains, il serait possible de réaliser une meilleure confrontation de nos résultats avec l'expérience. Les valeurs dont nous avons disposées nous ont semblées trop peu nombreuses et réalisées à des échelles trop importantes pour permettre une validation définitive de notre travail. De plus, aucune comparaison structurale n'a pu être menée avec les résultats expérimentaux dont nous disposions.

## **VI. Conclusion et Perspectives**

L'objectif principal de notre travail de recherche a concerné l'étude de l'interaction entre la structure de grains de solidification et la ségrégation dans les lingots. Dans ce but, nous avons développé un couplage entre une approche microscopique, servant de support à la modélisation du développement de la structure granulaire, et une approche macroscopique, permettant la résolution, à l'échelle du lingot, des équations de conservation moyennées. Ce modèle améliore celui de Gandin [Gan94] en permettant l'étude du développement de la ségrégation dans les alliages métalliques étudiés. Plus particulièrement, les développements originaux de ce travail de thèse ont porté sur les points suivants :

➤ Un nouvel algorithme de couplage en thermique entre les méthodes CA et FE basé sur l'utilisation d'une fraction volumique de zone pâteuse à l'échelle du grain. L'introduction de ce paramètre nous donne la possibilité de suivre de manière plus précise l'accroissement de la fraction de solide à l'intérieur d'une cellule. A l'échelle du lingot, nous retrouvons alors l'évolution thermique prédite par une approche macroscopique en suivi de front avec surfusion de croissance [Gan00.1].

➤ Le déplacement de la phase solide. Il est pris en compte dans le calcul de la vitesse du liquide, simultanément à l'échelle macroscopique, dans l'expression du terme de friction volumique  $\mathbf{M}$ , et à l'échelle microscopique, dans la résolution par rétrocession que nous avons faite de l'équation de conservation de la masse. Pour des conditions de sédimentation simples, nous avons validé ce dernier travail en comparant les résultats obtenus à ceux attendus d'une résolution analytique du problème.

➤ Le calcul de la cinétique de croissance d'une pointe de dendrite en présence de convection. Une méthode en couche limite précédemment développée [Can77, Sek95] a été employée pour obtenir une expression simple de la sursaturation en présence de convection, valable dans un large domaine de variation des nombres adimensionnels, et permettant de tenir compte de l'angle d'arrivée du liquide sur la pointe. Ce modèle améliore également la précédente corrélation proposée par Wang et Beckermann [Wan96.1].

➤ Un nouvel algorithme de couplage en macroségrégation entre les méthodes CA et FE basé sur une extension du couplage en thermique précédent. Sans surfusion de croissance, il est validé en retrouvant les résultats obtenus par une approche purement macroscopique [Jal00].

Par ailleurs, les confrontations expérimentales réalisées au chapitre V ont permis de tester la validité et les limites de notre démarche tant à l'échelle des grains équiaxes qu'à celle du lingot.

### *A l'échelle des grains*

En fixant les vitesses de sédimentation des cristaux équiaxes à celles obtenues expérimentalement par Gérardin [Ger02], on retrouve les valeurs attendues de taille de grains, sans modifier la valeur théorique du paramètre  $\sigma^*$ . S'ajoutant aux comparaisons réalisées précédemment avec les expériences de Glicksman [Gli82], ce travail constitue une validation expérimentale de notre modèle de cinétique de croissance. La comparaison réalisée avec les valeurs de profondeurs atteintes au cours du temps s'est révélée plus hasardeuse et ne nous a permis de retrouver des comportements similaires que pour les plus fortes surfusions. Elle nous suggère des améliorations futures à notre modèle de sédimentation, notamment l'utilisation d'une fraction volumique de solide à l'intérieur du grain évoluant au cours du temps et n'étant plus donnée à l'échelle des cellules par une simple loi de solidification. L'autre limite de notre modèle est l'utilisation d'un espacement interdendritique fixe. A ce sujet, il faut noter que c'est seulement très récemment que des mesures ont permis de valider ce type d'approche initialement développé par Rappaz et Thévoz [Rap87.1, Rap87.2] puis étendue par Wang et Beckermann [Wan93] et Appolaire [App99.2]. Enfin, une des limites de notre modèle pour aboutir à une description entièrement couplée avec la prédiction de l'écoulement du liquide autour du grain réside dans son caractère bidimensionnel. L'absence du terme de diffusion solutale dans l'équation de conservation du soluté constitue également une limite aux comparaisons menées avec les expériences.

### *A l'échelle du lingot*

La confrontation expérimentale avec les résultats de Hebditch et Hunt [Heb73, Heb74] a montré le lien entre les cartes de structure finale du lingot et celles de ségrégation. Nous avons également vérifié l'effet de l'orientation du grain sur celle des domaines ségrévés, grâce à l'existence d'une instabilité au front de solidification. Celle-ci conduit à la formation de 'superdendrites' précédemment observées expérimentalement [Fai75.1, Fai75.2]. Enfin, le développement de canaux ségrévés peut également provenir de la sédimentation de cristaux équiaxes et de leur attachement au front de solidification. Les confrontations nous ont également permis de vérifier que les mesures se situent dans un voisinage suffisamment proche des valeurs données par notre modèle pour le valider. L'utilisation d'un modèle d'enveloppe de grain permettrait, dans ce type de simulation, d'augmenter les conséquences de la sédimentation sur la ségrégation. Cependant l'absence de comparaison avec les cartes de structures de Hebditch a limité notre travail et ne nous a certainement pas permis d'utiliser des valeurs correctes de densité de germes ou de surfusion de germination. Il serait intéressant de réaliser des expériences futures permettant d'ajouter à la comparaison de la carte de composition celle de la carte de structure

[Qui03.1, Qui03.2]. L'utilisation de lingots de taille plus importante permettrait également l'installation d'un gradient thermique dans le domaine liquide et la stabilisation du front de solidification, en même temps qu'elle accentuerait les conséquences de la sédimentation granulaire. Enfin, la dépendance de la ségrégation avec la structure serait montrée à l'aide de mesures de compositions plus nombreuses que celle d'Hebditch et Hunt et réalisées à des échelles spatiales plus fines, de l'ordre de la taille des grains, permettant de quantifier les mésoségrégations et de les comparer à celles prédites. La réalisation de mesures de fractions de solide interne,  $g^{sm}$ , et d'espacement interdendritique secondaire,  $\lambda_2$ , permettrait également l'étude de l'évolution temporelle de ces variables. Ces mesures nécessiteraient la réalisation de cartes 3D du cristal équiaxe et d'analyses d'images également réalisées en 3D.

L'une des conclusions majeures de cette étude est donc la nécessité de procéder à de futures expériences, dans des conditions de solidification plus favorables à de nouvelles confrontations. Parallèlement, notre modèle ayant été vérifié à une échelle microscopique (cinétique de croissance dendritique), des améliorations devraient y être apportées aux échelles mésoscopique et macroscopique, pour valider nos résultats à des échelles spatiales croissantes.



**Références Bibliographiques :**

- [Abr72] M. Abramowitz et I.A. Stegun (éditeurs), *Handbook of Mathematical Functions*, Dover, New York, 10<sup>ème</sup> édition, pp. 231, 1972
- [Ahm98] N. Ahmad, H. Combeau, J.-L. Desbiolles, T. Jalanti, G. Lesoult, J. Rappaz, M. Rappaz et C. Stomp, *Numerical Simulation of Macrosegregation : A Comparison between Finite Volume Method and Finite Element Method Predictions and a Confrontation with Experiments*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 29, 1998, pp. 617-630
- [Ahu92.1] S. Ahuja, *Solid/Liquid Interfacial Drag in Equiaxed Solidification*, Ph.D. Thesis for Master of Science degree in Mechanical Engineering, University of Iowa, 1992
- [Ahu92.2] S. Ahuja, C. Beckermann, R. Zakhem, P.D. Weidman et H.C. deGroh III, *Drag Coefficient of an Equiaxed Dendrite Settling in an Infinite Medium, Micro/Macro Scale Phenomena in Solidification*, eds. C. Beckermann et al., ASME, New York, HTD-Vol. 218, 1992, pp. 85-91
- [Alb98] V. Albert, *Macroségrégations et mouvement des cristaux équiaxes lors de la solidification d'alliages*, Thèse de doctorat de l'INPL, 1998
- [Ana91] R. Ananth et W.N. Gill, *Self-consistent theory of dendritic growth with convection*, J. Cryst. Growth, Vol. 108, 1991, pp. 173-189
- [App98] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau et G. Lesoult, *Free Growth of Equiaxed Crystals Settling in Undercooled NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O Melts*, Acta Mater., Vol. 46, N° 16, 1998, pp. 5851-5862
- [App99.1] B. Appolaire, V. Albert, H. Combeau et G. Lesoult, *Experimental Study of Free Growth of Equiaxed NH<sub>4</sub>Cl Crystals Settling in Undercooled NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O Melts*, ISIJ Int., Vol. 39, N°3, 1999, pp. 263-270
- [App99.2] B. Appolaire, *Prise en compte du mouvement des cristaux équiaxes dans la modélisation de la solidification des lingots d'acier coulés en fonderie*, thèse de doctorat de l'INPL, 1999
- [Bec35] R. Becker et W. Döring, *Annalen der Physik*, Vol. 24, 1935, pp. 719 cité par [Kur92]
- [Bec96] C. Beckermann et C.Y. Wang, *Equiaxed Dendritic Solidification with Convection: Part III. Comparisons with NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O Experiments*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 27, 1996, pp. 2784-2795
- [Bec00] C. Beckermann, *Modeling of Macrosegregation : Past, Present and Future, Proceedings of the Merton C. Flemings Symposium on Solidification and Materials Processing*, eds. R. Abbashian, H. Brody, and A. Mortensen, TMS, Warrendale, PA, 2001, pp. 297-310
- [Ben87] W.D. Bennon et F.P. Incropera, *The Evolution of Macrosegregation in Statically Cast Binary Ingots*, Metall. Trans. B, Vol. 18, 1987, pp. 611-616

- [Bla97] K.A. Blackmore, K.M. Beatty, M.J. Hui et K.A. Jackson, *Growth behavior of  $NH_4Cl-H_2O$  mixtures*, J. Cryst. Growth, Vol. 174, 1997, pp. 76-81
- [Bol61] G.F. Bolling et W.A. Tiller, J. Appl. Phys., Vol. 32, 1961, pp. 2587
- [Bou89.1] P. Bouissou, B. Perrin et P. Tabeling, *Influence of an external flow on dendritic crystal growth*, Phys. Rev. A, Vol. 40, N° 1, 1989, pp. 509-512
- [Bou89.2] P. Bouissou et P. Pelce, *Effect of a forced flow on dendritic growth*, Phys. Rev. A, Vol. 40, N° 1, 1989, pp. 6673-6680
- [Bou97] D. Bouchard et J.S. Kirkaldy, *Prediction of Dendrite Arm Spacings in Unsteady- and Steady-State Heat Flow of Unidirectionally Solidified Binary Alloys*, Metall. Mater. Trans., Vol. 28B, 1997, pp. 651-663
- [Bro66] H.D. Brody et M.C. Flemings, *Solute Redistribution in Dendritic Solidification*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 236, 1966, pp. 615
- [Bur74] M.H. Burden et J.D. Hunt, *Cellular and dendritic growth II*, J. Cryst. Growth, Vol. 22, 1974, pp. 109-116
- [Cal02] Calcosoft-2D User Manual, Standard - Version 01.12 et Advanced - Version 01.12, Calcom ESI SA, Parc Scientifique EPFL, CH-1015 Lausanne, Suisse
- [Cam91] J. Campbell, Castings, Butterworth-Heinemann, Oxford, Royaume-Uni, 1991
- [Can77] B. Cantor et A. Vogel, *Dendritic solidification and fluid flow*, J. Cryst. Growth, Vol. 41, 1977, pp. 109-123
- [Can79] B. Cantor et R.D. Doherty, *Heterogeneous Nucleation in Solidifying Alloys*, Acta Metall., Vol. 27, 1979, pp. 33-46
- [Car56] P.C. Carman, *Flow of Gases through Porous Media*, Butterworth Scientific, London, 1956 cité par [Wan96.1]
- [Ceh63] Chemical's Engineers' Handbook, McGraw-Hill Inc., 1963, Ed. J.H. Perry
- [Cha63] B. Chalmers, *The Structure of Ingots*, J. Australian Inst. Metals, 1963, Vol. 8, pp. 255
- [Cho84] M. Chopra, Thèse de doctorat, Rensselaer Polytechnic Institute, Troy, New York, 1984 cité par [Lip87]
- [Chu72] S.W. Churchill et R. Usagi, *A General Expression for the Correlation of Rates of Transfer and Other Phenomena*, AIChE J., 1972, Vol. 18, pp. 1121-1128
- [Cly81.1] T.W. Clyne et W. Kurz, *Solute Redistribution During Solidification with Rapid Solid State Diffusion*, Metall. Trans. A, Vol. 12A, 1981, pp. 965 -971
- [Cly81.2] T.W. Clyne, Proc. 2<sup>nd</sup> Intern. Conf. on Numerical Methods in Thermal Problems, Venise, 1981, pp. 240-256 cité par [Flo87.1]

- [Com96] H. Combeau, J.-M. Drezet, A. Mo et M. Rappaz, *Modeling of Microsegregation in Macroseggregation Computations*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 27A, 1996, pp. 2314-2327
- [Crc95] CRC Handbook of Chemistry and Physics, D.R. Lide et H.P.R. Frederikse, CRC Press, Inc., 1994-1995, 75<sup>th</sup> Edition
- [Der64] G. Derge, *Basic Open Hearth Steel Making*, 3<sup>ème</sup> ed., American Institute of Mining, Metallurgical and Petroleum Engineers, New-York, 1964
- [Esa86] H. Esaka, *Dendrite growth and spacing in succinonitrile-acetone alloys*, Thèse n° 615, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 1986 cité par [Gan94]
- [Fai75.1] D. Fainstein-Pedraza et G.F. Bolling, *Superdendritic growth : I. A qualitative analysis*, J. Cryst. Growth, 1975, Vol. 28, pp. 311-318
- [Fai75.2] D. Fainstein-Pedraza et G.F. Bolling, *Superdendritic growth : II. A mathematical analysis*, J. Cryst. Growth, 1975, Vol. 28, pp. 319-333
- [Far02] S. Fargeas, S. Fréchet, *Prédiction des structures de grains durant la solidification dirigée de superalliages en fonderie*, Conférence Matériaux 2002
- [Fle67] M.C. Flemings et G.E. Nereo, *Macroseggregation, Part I*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 239, 1967, pp. 1449-1461
- [Fle68.1] M.C. Flemings, R. Mehrabian et G.E. Nereo, *Macroseggregation, Part II*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 242, 1968, pp. 41-49
- [Fle68.2] M.C. Flemings et G.E. Nereo, *Macroseggregation, Part III*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 242, 1968, pp. 50-55
- [Fle74] M.C. Flemings, *Solidification Processing, Mater. Sci. Eng. Series*, ed. McGraw-Hill, USA, 1974
- [Flo87.1] S.C. Flood et J.D. Hunt, *Columnar and Equiaxed Growth, I. A Model of a Columnar Front with a Temperature Dependent Velocity*, J. Cryst. Growth, Vol. 82, 1987, pp. 543-551
- [Flo87.2] S.C. Flood et J.D. Hunt, *Columnar and Equiaxed Growth, II. Equiaxed Growth Ahead of a Columnar Front*, J. Cryst. Growth, Vol. 82, 1987, pp. 552-560
- [Flo98] S.C. Flood et J.D. Hunt, *Metals Handbook*, 9<sup>th</sup> Edition, Vol. 15, ASM International, 1998, pp. 130-136
- [Fuj80] T. Fujioka et C. Lindenmeyer cité par [Lip87]
- [Gan94] Ch.-A. Gandin et M. Rappaz, *A Coupled Finite Element-Cellular Automaton Model for the Prediction of Dendritic Grain Structures in Solidification Processes*, Acta Metall. Mater., Vol. 42, N° 7, 1994, pp. 2233-2246
- [Gan95] Ch.-A. Gandin, *Modélisation stochastique de la solidification : formation de structures de grains dendritiques*, Thèse N° 1322, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 1995

- [Gan96.1] Ch.-A. Gandin, R.J. Schaefer et M. Rappaz, *Analytical and Numerical Predictions of Dendritic Grain Envelopes*, Acta Mater., Vol. 44, N° 8, 1996, pp. 3339-3347
- [Gan96.2] Ch.-A. Gandin, M. Eshelman et R. Trivedi, *Orientation Dependence of Primary Dendrite Spacing*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 27A, 1996, pp. 2727-2739
- [Gan97] Ch.-A. Gandin et M. Rappaz, *A 3D Cellular Automaton Algorithm for the Prediction of Dendritic Grain Growth*, Acta Mater., Vol. 45, N° 5, 1997, pp. 2187-2195
- [Gan98] Ch.-A. Gandin, T. Jalanti et M. Rappaz, *Modeling of Dendritic Grain Structures, Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes VIII*, TMS 1998, pp. 363-374
- [Gan99] Ch.-A. Gandin, J.-L. Desbiolles, M. Rappaz et Ph. Thévoz, *A Three-Dimensional Cellular Automaton-Finite Element Model for the Prediction of Solidification Grain Structures*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 30A, 1999, pp. 3153-3165
- [Gan00.1] Ch.-A. Gandin, *From Constrained to Unconstrained Growth During Directional Solidification*, Acta Mater., Vol. 48, N°10, 2000, pp. 2483-2501
- [Gan00.2] Ch.-A. Gandin, *Experimental Study of the Transition from Constrained to Unconstrained Growth during Directional Solidification*, ISIJ Int., Vol. 40, N°10, 2000, pp. 971-979
- [Gan03] Ch.-A. Gandin, G. Guillemot, B. Appolaire et N.T. Niane, *Boundary layer correlation for dendrite tip growth with fluid flow*, Mater. Sci. Eng. A, Vol. 342, 2003, pp. 44-50
- [Gäu01] M. Gäumann, C. Bezençon, P. Canalis et W. Kurz, *Single Crystal Laser Deposition of Superalloys : Processing-Microstructure Maps*, Acta Mater., Vol. 49, 2001, pp. 1051-1062
- [Ger02] S. Gérardin, *Etude expérimentale de la croissance libre de cristaux équiaxes en mouvement*, Thèse de doctorat de l'INPL, 2002
- [Gli76] M.E. Glicksman, R.J. Schaefer et J.D. Ayers, *Dendritic Growth – A test of Theory*, Metall. Trans. A, Vol. 7, 1976, pp. 1747-1759
- [Gli82] M.E. Glicksman, S.C. Huang, *Convective heat transfer during dendritic growth, Convective transport and instability phenomena*, Ch. 3.2.2, pp. 557-574, ed. J. Zierep & H. Oertel, G. Braun publishing Co, Karlsruhe 1982
- [Gli94] M.E. Glicksman, M.B. Koss et E.A. Winsa, *Dendritic Growth Velocities in Microgravity*, Phys. Rev. Letters, Vol. 73, 1994, pp. 573-576
- [Gli04] M.E. Glicksman, A. Lupulescu et M.B. Koss, *Dendritic Scaling Laws: Application to Microstructure Prediction, Solidification Processes and Microstructures*, Proceedings of the 2004 TMS Annual Meeting, Charlotte, North Carolina, 2004, pp. 183-190
- [Gro93] H.C. de Groh III, P.D. Weidman, R. Zakhem, S. Ahuja et C. Beckermann, *Calculation of Dendrite Settling Velocities Using a Porous Envelope*, Metall. Trans. B, Vol. 24B, 1993, pp.749-753

- [Gui03] G. Guillemot, Ch.-A. Gandin, H. Combeau et R. Heringer, *New Coupling Scheme for a Heat Flow Cellular Automaton - Finite Element Model Applied to Alloy Solidification*, Proceedings of the 2003 International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting, Nancy, France, 2003
- [Gul13] G.H. Gulliver, *J. Inst. Metals*, 1913, Vol. 9, pp. 120-157
- [Gün85] M. Günduz et J.D. Hunt, *The measurement of solid-liquid surface energies in the Al-Cu, Al-Si and Pb-Sn Systems*, *Acta Metall.*, Vol. 33, N° 9, 1985, pp. 1651-1672
- [Hai89] A. Haider et O. Levenspiel, *Drag Coefficient and Terminal Velocity of Spherical and Nonspherical Particles*, *Powder Technology*, Vol. 58, 1989, pp. 63-70
- [Han02] G. Hansen, S. Liu, S.-Z. Lu, A. Hellawell, *Dendritic array growth in the systems  $NH_4Cl-H_2O$  and  $[CH_2CN]_2-H_2O$ : steady state measurements and analysis*, *J. Cryst. Growth*, Vol. 234, 2002, pp. 731-739
- [Hap58] J. Happel, *Viscous Flow in Multiparticle Systems : Slow Motion of Fluids Relative to beds of Spherical Particles*, *AIChE J.*, Vol. 13, 1958, pp. 122-125
- [Heb73] D.J. Hebditch, *Segregation in Castings*, Ph.D. Thesis, Département de Métallurgie, Université d'Oxford, 1973
- [Heb74] D.J. Hebditch et J.D. Hunt, *Observations of Ingot Macrosegregation on Model Systems*, *Metall. Trans.*, Vol. 5, 1974, pp. 1557-1564
- [Hel62] A. Hellawell et P.M. Herbert, *Proc. Roy. Soc. A*, Vol. 269, 1962, pp. 560
- [Hen98] S. Henry, T. Minghetti et M. Rappaz, *Dendrite Growth Morphologies in Aluminium Alloys*, *Acta Mater.*, Vol. 46, N° 18, 1998, pp. 6431-6443
- [Hua81] S.C. Huang et M.E. Glicksman, *Fundamentals of Dendritic Solidification*, *Acta Metall.*, Vol. 29, 1981, pp. 701,717-734
- [Hun84] J.D. Hunt, *Steady State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectic*, *Mater. Sci. Eng.*, Vol. 65, 1984, pp. 75-83
- [Iva47] G.P. Ivantsov, *Doklady Akademii Nauk SSSR* 58, 1947, pp. 567 cité par [Kur86]
- [Jac65] K.A. Jackson et J.D. Hunt, *Transparent compounds that freeze like metals*, *Acta Metall.*, Vol. 13, 1965, pp. 1212-1215
- [Jac66] K.A. Jackson, J.D. Hunt, D.R. Uhlmann et T. Seward III, *On the Origin of the Equiaxed Zone in Castings*, *Trans. Metall. Soc. AIME*, Vol. 233, 1966, pp. 149-236
- [Jal96] T. Jalanti, *Etude de la sédimentation et du transport d'une phase solide granulaire dans un liquide soumis à des mouvements de convection naturelle d'origine thermique*, Projet de Diplôme, Laboratoire de Métallurgie Physique, EPFL, 1996
- [Jal00] T. Jalanti, *Etude et modélisation de la macroségrégation dans la coulée semi-continue des alliages d'aluminium*, Thèse n° 2145, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 2000

- [Jan91.1] J.Jang et A. Hellawell, *Use of NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O analogue castings to model aspects of continuous casting, Part 1 Asymmetry in inclined moulds*, Ironmaking and Steelmaking, Vol. 18, N° 4, 1991, pp. 267-274
- [Jan91.2] J.Jang et A. Hellawell, *Use of NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O analogue castings to model aspects of continuous casting, Part 2 Columnar-equiaxed grain transition and crystal sedimentation rates*, Ironmaking and Steelmaking, Vol. 18, N° 4, 1991, pp. 275-283
- [Kar84] A. Karma et J.S. Langer, *Impurity effects in dendritic solidification*, Phys. Rev, 1984, Vol. A30, pp. 3147-3155
- [Kat67] T.Z. Kattamis, J.C. Coughlin et M.C. Flemings, *Influence of coarsening on dendrite arm spacing of aluminum-copper alloys*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 239, 1967, pp. 1504
- [Kim92] S. Kim et R.N. Grugel, *The Transition from Columnar to Equiaxed Dendritic Growth in Proeutectic, Low-Volume Fraction Copper, Pb-Cu Alloys*, Metall. Trans. A, Vol. 23A, 1992, pp. 1807-1815
- [Kir58] J.S. Kirkaldy et W.V. Youdelis, *Contribution to the theory of inverse segregation*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 212, 1958, pp. 833-840
- [Kra04] M.J.M. Krane, *Macrosegregation development during solidification of a multicomponent alloy with free-floating solid particles*, Appl. Math. Modell., Vol. 28, 2004, pp. 95-107
- [Kur86] W. Kurz, B. Giovanola et R. Trivedi, *Theory of microstructural development during rapid solidification*, Acta Metall., Vol. 34, N° 5, 1986, pp. 823-830
- [Kur92] W. Kurz et D.J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, 3ème ed., Trans Tech Publications, Suisse, 1992
- [Lan77] J.S. Langer et H. Müller-Krumbhaar, *Stability effects in dendritic crystal growth*, J. Cryst. Growth, Vol. 42, 1977, pp. 11-14
- [Lan78] J.S. Langer et H. Müller-Krumbhaar, *Theory of Dendritic Growth*, Acta Metall., Vol. 26, 1978, pp. 1681,1689,1697-1708
- [Lan87] J.S. Langer, *Dendritic sidebranching in the three-dimensional symmetric model in the presence of noise*, Phys. Rev. A, Vol. 36, 1987, pp. 3350-3358
- [Lar82] Grand Dictionnaire Encyclopédique Larousse 1982, Librairie Larousse
- [Lee93] Y.W. Lee, R. Ananth et N. Gill, *Selection of a length scale in unconstrained dendritic growth with convection in the melt*, J. Cryst. Growth, Vol. 132, 1993, pp. 226-230
- [Les86] G. Lesoult, *Cristallisation et microstructures, Solidification, Techniques de l'ingénieur*, M 58, 1986, pp. 1-28
- [Les00] G. Lesoult, *Transformations de la matière et de l'énergie*, Cours de 1<sup>ère</sup> année, année 2000/2001

- [Les01] G. Lesoult, V. Albert, B. Appolaire, H. Combeau, D. Daloz, A. Joly, C. Stomp, G.U. Grün, P. Jarry, *Equiaxed growth and related segregations in cast metallic alloys*, Science and Technology of Advanced Materials, Vol. 2, 2001, pp. 285-291
- [Li98] Q. Li et C. Beckermann, *Scaling behavior of three-dimensional dendrites*, Phys. Rev. E, Vol. 57, N° 3, 1998, pp. 3176-3188
- [Lid94] D. R. Lide (Ed.), CRC Handbook of Chemistry and Physics, 75th edition, CRC Press Inc., 1994, Section 6, pp. 257
- [Lip87] J. Lipton, M.E. Glicksman et W. Kurz, *Equiaxed Dendrite Growth in Alloys at Small Undercooling*, Metall. Trans. A, Vol. 18, 1987, pp. 341-345
- [Liu95] J.M. Liu, Z.G. Liu et Z.C. Wu, *In-Situ observations of dendritic growth of ammonium chloride crystals from an aqueous solution system*, Scrip. Metall. Mater., Vol. 32, 1995, pp. 445
- [Liu02] S. Liu, S.Z. Lu, A. Hellawell, *Dendritic array growth in the systems NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O and [CH<sub>2</sub>CN]<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O : the detachment of dendrite side arms induced by deceleration*, J. Cryst. Growth, Vol. 234, 2002, pp. 740-750
- [Lu02] Y. Lu, C. Beckermann, A. Karma, *Convection effects in Three-Dimensional Dendritic Growth*, Proceedings of IMECE 2002, ASME Intern. Mech. Eng. Cong. & Exp., Louisiane, 2002
- [Lud04] A. Ludwig et M. Wu, *On the Interaction between Macrosegregation, Shrinkage Flow and Grain Movement*, Solidification Processes and Microstructures, Proceedings of the 2004 TMS Annual Meeting, Charlotte, North Carolina, 2004, pp. 99-110
- [Mar63] D.W. Marquardt, *An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters*, J. Soc. Indust. Appl. Math., Vol. 11, N° 2, 1963, pp. 431-441
- [Mar03] M.A. Martorano, C. Beckermann et Ch.-A. Gandin, *A Solutal-Interaction Mechanism for the Columnar-to-Equiaxed Transition in Alloy Solidification*, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 34A, 2003, pp. 1657-1674
- [Maz95] T. Mazet, *Etude des structures de solidification et des ségrégations dans les lingots d'acier*, thèse de doctorat de l'INPL, 1995
- [McC93.1] M.H. McCay, T.D. McCay et J.A. Hopkins, *The Nature and Influence of Convection on the Directional Dendritic Solidification of a Metal Alloy Analog, NH<sub>4</sub>Cl, and H<sub>2</sub>O*, Metall. Trans. B, Vol. 24B, 1993, pp. 669-675
- [McC93.2] M.H. McCay et T.D. McCay, *The measurement of transient dendrite tip interface supersaturation in NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O using optical techniques*, J. Cryst. Growth, Vol. 126, 1993, pp. 223-228
- [McC94] M.H. McCay et T.D. McCay, *The influence of microgravity on the dendritic growth rates of NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O: an international microgravity laboratory experiment*, J. Cryst. Growth, Vol. 135, 1994, pp. 594-600

- [Mcf86] G.B. McFadden et S.R. Coriell, *The effect of fluid flow due to the crystal-melt density change on the growth of a parabolic isothermal dendrite*, J. Cryst. Growth, Vol. 74, 1986, pp. 507-512
- [Mer54] H.J. Merk et J.A. Prins, *Thermal convection in laminar boundary layers III*, Applied scientific research, Section A, Vol. 4, 1954, pp. 207-221
- [Mer99] J.P. Mercier, G. Zambelli, W. Kurz, *Introduction à la science des matériaux, Traité des Matériaux, Tome 1*, Presses polytechniques et universitaires romandes, 1999
- [Mha99] M. M'Hamdi, H. Combeau et G. Lesoult, *Modelling of heat transfer coupled with columnar dendritic growth in continuous casting of steel*, International Journal of Numerical Methods for Heat & Fluid Flow, Vol. 9, n° 3, 1999, pp. 296-317
- [Mik69] E.S. Miksch, *Solidification of Ice Dendrites in Flowing Supercooled Water*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 245, 1969, pp. 2069-2072
- [Miy95.1] Y. Miyata et H. Tanaka, *Dendritic Growth in Undercooled Melt with Forced Convection : Experiment for Pure Succinonitrile*, ISIJ Int., Vol. 35, N° 6, 1995, pp. 596-599
- [Miy95.2] Y. Miyata, *Dendritic Growth in Undercooled Melt with Forced Convection : theory*, ISIJ Int., Vol. 35, N° 6, 1995, pp. 600-603
- [Mor91] A. Mortensen, *On the Rate of Dendrite Arm Coarsening*, Metall. Trans. A, Vol. 22A, 1991, pp. 569-574
- [Mul63] W.W. Mullins et R.F. Sekerka, *Morphological Stability of a Particle Growing by Diffusion or Heat Flow*, J. Appl. Phys., Vol. 34, 1963, pp. 323-329
- [Mul64] W.W. Mullins et R.F. Sekerka, *Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy*, J. Appl. Phys., Vol.35, n°2, 1964, pp. 444-451
- [Nea73] G. Neale, N. Epstein et W. Nader, *Creeping flow relative to permeable spheres*, Chem. Eng. Sc., Vol. 28, 1973, pp.1865-1874
- [Neu12] F. Neumann, *Die Partiellen Differentialgleichungen der Mathematischen Physik*, Riemann-Weber, Vol. 2, 1912, pp.121 cité par [Poi88]
- [Nor39] L. Northcott et D.E. Thomas, *Dendritic Structures. Part I – The Influence of Crystal Orientation*, J. Inst. Metals, Vol. 65, 1939, pp. 205-216
- [Nor46] L. Northcott, *Dendritic Structures of Columnar Crystals*, J. Inst. Metals, Vol. 72, 1946, pp. 283-291
- [Old66] W. Oldfield, *A Quantitative Approach to Casting Solidification : Freezing of Cast Iron*, Transactions of the ASM, Vol. 59, 1966, pp. 945-961
- [Pap35] A. Papapetrou, *Zeitschrift für Kristallographie* 92, 1935, 89 cité par [Kur86]
- [Pet48] E.S. Pettyjohn et E.B. Christiansen, *Effect of particle shape on free-settling rates of isometric particles*, Chem. Eng. Prog., Vol. 44, 1948. pp. 157-172



- [Poi88] D. Poirier et M. Salcudean, *On Numerical Methods Used in Mathematical Modeling of Phase Change in Liquid Metals*, J. of Heat Transfer, Vol. 110, 1988, pp. 562-570
- [Poi94] D.R. Poirier et G.H. Geiger, *Transport Phenomena in Materials Processing*, TMS, Warrendale, PA, 1994
- [Pre86] W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, *Numerical Recipes : The Art of Scientific Computing*. Cambridge, University Press, UK Cambridge, 1986
- [Qui00] Quid 2000, D. et M. Frémy, édition Robert Laffont
- [Qui03.1] G. Quillet, *Influence de la convection, naturelle ou forcée, sur l'apparition des mésoségrégations lors de la solidification des alliages métalliques*, Thèse de Doctorat en Energétique Physique de l'INPG, 2003
- [Qui03.2] G. Quillet, A. Ciobanas, P. Lehmann et Y. Fautrelle, *Meso-Segregations during Solidification in a Binary Alloy under the Influence of Convection*, International Scientific Colloquium, Modelling for Electromagnetic Processing, Hannovre, 2003
- [Ram97] A. Ramani et C. Beckermann, *Dendrite Tip Growth Velocities of Settling NH<sub>4</sub>Cl Equiaxed Crystals*, Script. Mater., Vol. 36, N°6, 1997, pp. 633-638
- [Ram04] J.C. Ramirez et C. Beckermann, *Examination of Binary Alloy Free Dendritic Growth Theories with a Phase-Field Model*, Solidification Processes and Microstructures, Proceedings of the 2004 TMS Annual Meeting, Charlotte, North Carolina, 2004, pp. 373-378
- [Rap87.1] M. Rappaz et Ph. Thévoz, *Solute Diffusion Model for Equiaxed Dendritic Growth*, Acta Metall., Vol. 35, N° 7, 1987, pp. 1487-1497
- [Rap87.2] M. Rappaz et Ph. Thévoz, *Solute Diffusion Model for Equiaxed Dendritic Growth : Analytical Solution*, Acta Metall., Vol. 35, N° 12, 1987, pp. 2929-2933
- [Rap89] M. Rappaz, *Modelling of microstructure formation in solidification processes*, Int. Mater. Rev., Vol. 34, N°3, 1989, pp. 93-123
- [Rap93] M. Rappaz et Ch.-A. Gandin, *Probabilistic modelling of microstructure formation in solidification processes*, Acta Metall. Mater., Vol. 41, 1993, pp. 345-360
- [Rap98] M. Rappaz, M. Bellet, M. Deville, *Modélisation numérique en science et génie des matériaux, Traité des Matériaux, Tome 10*, Presses polytechniques et universitaires romandes, 1998
- [Sar88] J.R. Sarazin et A. Hellawell, *Channel formation in Pb-Sn, Pb-Sb and Pb-Sn-Sb alloys ingots and comparison with the system NH<sub>4</sub>Cl-H<sub>2</sub>O*, Metall. Trans. A, Vol. 19A, 1988, pp. 1861-1871
- [Sch42] E. Scheil, *Bemerkungen zur Schichtkristallbildung*, Zeitschrift für Metallkunde, Vol. 34, 1942, pp. 70-72
- [Sch47] E. Scheil, *Beitrag zum Problem der Blockseigerung*, Metallforschung, Vol. 38, 1947, pp. 69-75

- [Sek67] R.F. Sekerka, R.G. Seidensticker, D.R. Hamilton et J.D. Harrison, *Investigation of Desalinization by Freezing*, Westinghouse Research Lab. Report, Ch. 3, 1967 cité par [Lan77]
- [Sek95] R.F. Sekerka, S.R. Coriell et G.B. McFadden, *Stagnant Film model of the effect of natural convection on the dendrite operating state*, J. Cryst. Growth, Vol. 154, 1995, pp. 370-376
- [Som84] K. Somboonsuk, J.T. Mason et R. Trivedi, *Interdendritic Spacing: Part I Experimental Study*, Metall. Trans. A, 1984, Vol. 15A, pp. 967-975
- [Sou67] R.T. Southin, *Nucleation of the Equiaxed Zone in Cast Metals*, Trans. Metall. Soc. AIME, Vol. 239, 1967, pp. 220-225
- [Ste91] J. Stefan, Ann. Physik U. Chem. (Wiedemann) N.F., Vol. 42, 1891, pp. 269-286 cité par [Poi88]
- [Sto00] C. Stomp, H. Combeau et B. Appolaire, *Hydrodynamics of Moving Structures during a Static Solidification Process*, Solidification and Gravity 2000, Materials Science Forum, Vol. 329-330, 2000, pp. 127-138
- [Tak00] H. Takatani, Ch.-A. Gandin et M. Rappaz, *EBSD Characterisation and Modelling of Columnar Dendritic Grains Growing in the Presence of Fluid Flow*, Acta Mater., Vol. 48, 2000, pp. 675-688
- [Tem60] D.E. Temkin, Doklady Akademii Nauk SSSR 132, 1960, pp. 1307 cité par [Lan77]
- [Tem62] D.E. Temkin, Sov. Phys.-Crystallogr., Vol. 7, 1962, pp. 354-357
- [Thé88] Ph. Thévoz, *Modélisation de la solidification dendritique équiaxe*, Thèse, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 1988 cité par [Gan95]
- [Tho83] C.V. Thompson et F. Spaepen, *Homogeneous Crystal Nucleation in Binary Metallic Alloys*, Acta Metall., Vol. 31, 1983, pp. 2021-2027
- [Tri70] R. Trivedi, *Growth of Dendritic Needles from a Supercooled Melt*, Acta Metall., Vol. 18, 1970, pp. 287-296
- [Tri78] R. Trivedi et W.A. Tiller, *Interface morphology during crystallization - II. Single filament, unconstrained growth from a binary alloy melt*, Acta Metall., Vol. 26, 1978, pp. 679-687
- [Tri86] R. Trivedi et W. Kurz, *Morphological Stability of a planar interface under rapid solidification conditions*, Acta Metall., Vol. 34, N° 8, 1986, pp. 1663-1670
- [Tri91] R. Trivedi et J.T. Mason, *The Effects of Interface Attachment Kinetics on Solidification Interface Morphologies*, Metall. Trans. A, Vol. 22A, 1991, pp. 235-249
- [Tri94] R. Trivedi et W. Kurz, *Dendritic Growth*, Int. Mat. Rev., Vol. 39, N° 2, 1994, pp. 49-74
- [Und70] E.E. Underwood, *Quantitative Stereology*, Addison-Wesley Publishing Company, Reading, Massachusetts, USA, 1970 cité par [Gan95]

- [Van94] I. Vannier, *Modélisation de la solidification des lingots d'acier*, thèse de doctorat de l'INPL, 1994
- [Vol26] M. Volmer et A. Weber, *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, Vol. 119, 1926, pp. 277 cité par [Kur92]
- [Vol29] M. Volmer, *Z. Elektrochem.*, Vol. 35, 1929, pp. 555 cité par [Gan95]
- [Wal59] D. Walton et B. Chalmers, *The Origin of the Preferred Orientation in the Columnar Zone of Ingots*, *Trans. Metall. Soc. AIME*, Vol. 215, 1959, pp. 447
- [Wan93] C.Y. Wang et C. Beckermann, *A Unified Solute Diffusion Model for Columnar and Equiaxed Dendritic Alloy Solidification*, *Mater. Sci. Eng.*, A171, 1993, pp. 199-211
- [Wan94] C.Y. Wang et C. Beckermann, *Prediction of Columnar to Equiaxed Transition during Diffusion-Controlled Dendritic Alloy Solidification*, *Metall. Mater. Trans.*, Vol. 25A, 1994, pp. 1081-1093
- [Wan95] C.Y. Wang, S. Ahuja, C. Beckermann et H.C. De Groh III, *Multiparticle Interfacial Drag in Equiaxed Solidification*, *Metall. Mater. Trans.*, Vol. 26B, 1995, pp. 111-119
- [Wan96.1] C.Y. Wang et C. Beckermann, *Equiaxed dendritic Solidification with Convection : Part I. Multiscale / Multiphase Modeling*, *Metall. Mater. Trans.*, Vol. 27 A, 1996, pp. 2754-2764
- [Wan96.2] C.Y. Wang et C. Beckermann, *Equiaxed dendritic Solidification with Convection : Part II. Numerical Simulations for an Al-4 Wt Pct Cu Alloy*, *Metall. Mater. Trans.*, Vol. 27 A, 1996, pp. 2765-2783
- [Win54] W.C. Winegard et B. Chalmers, *Supercooling and Dendritic Freezing in Alloys*, *Trans. Quart. ASM*, Vol. 46, pp. 1214-1224, 1954
- [Wit79] S. Witzke, J.P. Riquet et F. Durand, *Visualisation de la convection lors de la cristallisation basaltique et équiaxe d'une solution transparente*, *Mémoires scientifiques, Revue de métallurgie*, Vol. 76, N° 11, 1979, pp. 701-714

## Annexe 1 - Principaux Symboles et Notations

### Exposants

capt	capture
col	colonnaire
d	liquide interdendritique
dépl	déplacement
e	équilibre
eq	équiaxe
ext	extérieur
f	liquide extradendritique
germ	germination
i/j	interface entre les phases i et j
ij	indice d'une direction cristallographique
int	interpolé
l	liquide
m	zone pâteuse
max	maximal
p	particule
s	solide
sed	sédimentation
S	état
s m	solide interne à la zone pâteuse
$t_m$	temps micro
$t_M$	temps macro
$\mu$	moyenne
$\sigma$	écart-type
$\infty$	à l'infini
*	valeur critique

### Indices

a	amas
c	chimique
e	équivalente à l'enveloppe
E	eutectique
F	élément
K	cinétique

L	liquidus
$l_c$	longueur de capillarité
M	fusion
n	nœud
p	pointe
r	relatif
s	seuil
S	solidus
surf	surface
T	totale
th	thermique
vol	volume
x,y	composante d'un vecteur en coordonnées cartésiennes
$\kappa$	courbure
$\nu, \mu$	cellule
$\Sigma$	sphère
0	valeur initiale

Notations grecquesUnités

$\alpha$	paramètre du micro pas de temps	-
$\beta$	rayon normalisé	-
$\beta_{th}$	coefficient d'expansion thermique	$^{\circ}\text{C}^{-1}$
$\beta_c$	coefficient d'expansion solutale	$\% \text{pds}^{-1}$
$\delta$	variation par interpolation	-
$\delta'$	variation par déplacement	-
$\delta t$	micro pas de temps	s
$\delta_c$	épaisseur de couche limite solutale	m
$\delta_{th}$	épaisseur de couche limite thermique	m
$\Delta G$	variation d'enthalpie libre	$\text{J m}^{-3}$
$\Delta_s^1 h_f$	enthalpie massique de fusion	$\text{J kg}^{-1}$
$\Delta_s^1 H_f$	enthalpie volumique de fusion	$\text{J m}^{-3}$
$\Delta_s^1 s_f$	entropie massique de fusion	$\text{J K}^{-1} \text{kg}^{-1}$
$\Delta_s^1 S_f$	entropie volumique de fusion	$\text{J K}^{-1} \text{m}^{-3}$
$\Delta t$	macro pas de temps	s
$\Delta T$	surfusion de croissance	K
$\Delta T^{\mu}$	surfusion moyenne de germination	K
$\Delta T^{\sigma}$	écart-type de la surfusion de germination	K
$\varepsilon$	facteur de pénalisation	$\text{s m kg}^{-1}$
$\phi$	angle d'arrivée du fluide	rad

$\gamma$	tension interfaciale	$\text{J m}^{-2}$
$\Gamma$	coefficient de Gibbs-Thomson	$\text{m K}$
$\eta, \xi, \theta$	coordonnées paraboloidales	-
$\kappa$	conductibilité thermique	$\text{W m}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$
$\kappa$	courbure	$\text{m}^{-1}$
$\lambda$	longueur d'onde	$\text{m}$
$\lambda_1$	espacement interdendritique primaire	$\text{m}$
$\lambda_2$	espacement interdendritique secondaire	$\text{m}$
$\Lambda$	coefficient de normalisation	-
$\mu_0$	coefficient de la surfusion cinétique	$\text{m s}^{-1} \text{ K}^{-1}$
$\mu$	viscosité dynamique	$\text{Pa s}$
$\nu$	viscosité cinématique	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
$\theta$	angle	$\text{rad}$
$\rho$	masse volumique	$\text{kg m}^{-3}$
$\sigma^*$	constante de stabilité marginale	-
$\tau$	constante de temps	$\text{s}$
$\omega$	nombre d'onde	$\text{m}^{-1}$
$\Omega$	sursaturation à la pointe de la dendrite	-
$\psi$	sphéricité	-

### Notations latines

### Unités

$a$	distance de saut	$\text{m}$
$a$	maille élémentaire	$\text{m}$
$A$	aire	$\text{m}^2$
$A_i$	constante dans l'expression de la vitesse de la pointe	$\text{m s}^{-1} \text{ K}^{-j}$
$\mathcal{A}$	aire de la forme de croissance associée à une cellule	$\text{m}^2$
$c_v^n$	coefficient d'interpolation	-
$C$	centre d'une cellule	-
$C_i$	constante dans l'expression du coefficient de traînée	-
$C_D$	coefficient de traînée	-
$C_g$	terme correctif de forme	-
$C_f$	terme correctif de porosité	-
$c_p$	capacité calorifique massique	$\text{J K}^{-1} \text{ kg}^{-1}$
$C_p$	capacité calorifique volumique	$\text{J K}^{-1} \text{ m}^{-3}$
$d$	diamètre	$\text{m}$
$D$	coefficient de diffusion	$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$
$D_i$	constante dans l'expression de la sursaturation	-
$f$	fraction massique	$\% \text{ pds} / \% \text{ pds}$
$F$	élément	-

F	fonction	-
g	fraction volumique	$\text{m}^3 / \text{m}^3$
G	centre de croissance	-
h	coefficient de transfert	$\text{W m}^{-2}$
H	enthalpie	$\text{J m}^{-3}$
I	indice	-
k	coefficient de partage	% pds / % pds
$k_b$	constante de Boltzmann	$\text{J K}^{-1}$
K	perméabilité	$\text{m}^2$
$l_c$	longueur de capillarité	m
$l_{CA}$	taille d'une cellule	m
L	longueur	m
m	pente du liquidus	$^{\circ}\text{C \%pds}^{-1}$
M	masse	kg
M	constante de maturation	$\text{m}^3 \text{s}^{-1}$
$\dot{n}$	vitesse de germination	$\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$
$N_i^j$	nombre d'éléments i dans l'élément j	-
$N_2$	exposant de la surfusion dans l'expression de $v_f$	-
$\{N_v\}$	voisinage d'une cellule v	-
Nu	nombre de Nusselt	-
n	densité de germes	$\text{m}^{-3}$
$N_g$	nombre d'atomes d'un germe	-
P	pression	Pa
$Pe_{th}$	nombre de Péclet thermique	-
$Pe_v$	nombre de Péclet chimique	-
$Pe_u$	nombre de Péclet hydrodynamique	-
Pr	nombre de Prandtl	-
$\dot{Q}_a$	flux de chaleur métal-air	$\text{W m}^{-2}$
$\dot{Q}_c$	flux de chaleur métal refroidisseur	$\text{W m}^{-2}$
R	rayon de courbure	m
$r_p$	rayon de courbure d'une pointe de dendrite	m
$r_g$	rayon d'un germe	m
$R_g$	constante molaire des gaz parfaits	$\text{J K}^{-1} \text{mol}^{-1}$
Re	nombre de Reynolds	-
S	sommet	-
$S^{s/l}$	concentration d'aire interfaciale solide/liquide	$\text{m}^{-1}$
$S_v$	surface spécifique du solide	$\text{m}^{-1}$
Sh	nombre de Sherwood	-
St	nombre de Stefan	-
Sc	nombre de Schmidt	-

$t$	temps	s
$t_f$	temps local de solidification	s
$t_m$	temps micro	s
$t_M$	temps macro	s
$T$	température	°C
$\dot{T}$	vitesse de refroidissement	°C s <sup>-1</sup>
$V$	volume	m <sup>3</sup>
$V_m$	volume molaire	m <sup>3</sup> mol <sup>-1</sup>
$w$	composition	%pds

### Vecteurs\*

$\mathbf{a}$	accélération	m s <sup>-2</sup>
$\mathbf{F}$	force	N
$\mathbf{F}_D$	force de traînée	N
$\mathbf{g}$	gravité	m s <sup>-2</sup>
$\mathbf{G}_c$	gradient solutal	%pds m <sup>-1</sup>
$\mathbf{G}_{th}$	gradient thermique	K m <sup>-1</sup>
$\bar{\mathbf{G}}$	gradient moyen	K m <sup>-1</sup>
$\mathbf{n}$	normale d'une interface	-
$\mathbf{M}$	force de friction volumique	N m <sup>-3</sup>
$\mathbf{p}$	quantité de mouvement	kg m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{P}$	poids	N
$\mathbf{P}_A$	poussée d'Archimède	N
$\mathbf{u}$	vitesse débitante de la phase liquide (ie. $g^l \mathbf{v}^l$ )	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{u}^l$	vitesse relative de déplacement du liquide (ie. $\mathbf{v}^l - \mathbf{v}^s$ )	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{u}_\eta, \mathbf{u}_\xi, \mathbf{u}_\theta$	vecteurs unitaires en coordonnées paraboloidales	-
$\mathbf{u}_x, \mathbf{u}_y, \mathbf{u}_z$	vecteurs unitaires en coordonnées cartésiennes	-
$\mathbf{v}$	vitesse moyenne des phases (ie. $g^l \mathbf{v}^l + g^s \mathbf{v}^s$ )	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}^l$	vitesse de déplacement de la phase liquide	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}^s$	vitesse de déplacement de la phase solide	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}_a$	vitesse de déplacement de l'amas	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}_{abs}$	vitesse absolue stabilisante	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}_f$	vitesse d'avancée du front	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}_p$	vitesse de la pointe de la dendrite	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{v}_r$	vitesse relative de déplacement du grain	m s <sup>-1</sup>
$\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}$	axes en coordonnées cartésiennes	-

\* module : même notation sans gras.



---

## Fonctions

$E_1(x)$     Fonction exponentielle intégrale

$$E_1(x) = \int_x^{\infty} \frac{\exp(-t)}{t} dt$$

$\Gamma(x,y)$     Fonction gamma incomplète

$$\Gamma(x,y) = \int_y^{\infty} t^{x-1} \exp(-t) dt$$

$Iv(x)$     Fonction d'Ivantsov

$$Iv(x) = x \exp(x) E_1(x)$$

## Annexe 2 - Cinétique de croissance en régime diffusif

Le calcul développé par Ivantsov [Iva47] a pour but de déterminer la valeur de la surfusion adimensionnelle (diffusion thermique) ou de la sursaturation (diffusion solutale) à la pointe d'une dendrite croissant en régime purement diffusif. Il se base sur plusieurs hypothèses : a) La dendrite est assimilée à un paraboloïde de révolution [Pap35], b) La dendrite est considérée comme isotherme ou isosolutale, selon le cas considéré, c) Les masses volumiques des phases liquide et solide sont prises égales, afin de ne pas prendre en considération le terme de retrait qui génère un mouvement de liquide vers la surface de la dendrite.

Sous ces hypothèses, on peut schématiser la dendrite en coordonnées paraboloidales  $(\eta, \xi, \theta)$ , sous la forme d'une surface de valeur  $\eta$  constante et égale à 1 (Fig. A2.1). Dans ce nouveau repère, la résolution de l'équation de conservation de la chaleur ou du soluté se réalise plus aisément.

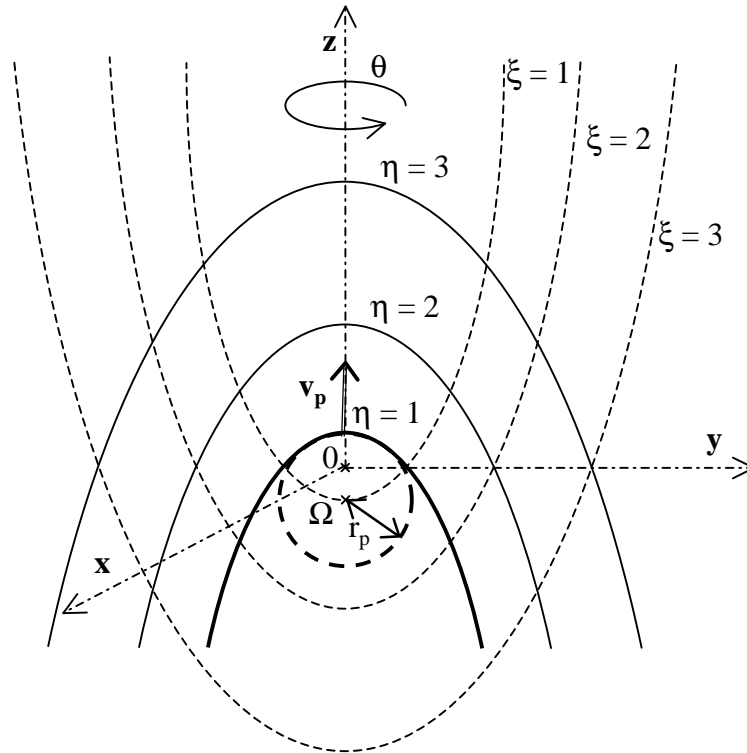


Fig. A2.1 : Représentation d'une dendrite de rayon de courbure à la pointe  $r_p$  dans un système de coordonnées paraboloidales  $(\eta, \xi, \theta)$ . Le sommet de la dendrite est à la distance  $r_p/2$  du point  $O$ , centre du repère, et  $\Omega$ , le centre de la sphère osculatrice en ce sommet, a pour coordonnées  $(\eta=0, \xi=1)$ . Par rapport à un référentiel extérieur fixe, la pointe de la dendrite se déplace avec la vitesse  $v_p$  parallèle à l'axe  $Oz$ .

Le changement de coordonnées du repère  $(0, x, y, z)$  au repère  $(0, \eta, \xi, \theta)$  se réalise par le système d'équations :

$$\begin{cases} x = r_p \eta \xi \cos(\theta) \\ y = r_p \eta \xi \sin(\theta) \\ z = \frac{r_p}{2} (\eta^2 - \xi^2) \end{cases} \quad (\text{A2.1})$$

➤ **Dendrite thermique**

On se place dans le cadre de la croissance d'une dendritique thermique (surfusion chimique nulle) à la vitesse  $\mathbf{v}_p$ . En régime diffusif et permanent, l'équation de conservation de la chaleur dans le liquide s'écrit, dans le référentiel en mouvement centré en 0 et se déplaçant par rapport à un référentiel fixe à la vitesse  $\mathbf{v}_p$  :

$$D_{th}^l \Delta T + v_p \frac{\partial T}{\partial z} = 0 \quad (A2.2)$$

où  $\Delta$  représente l'opérateur laplacien et  $D_{th}^l$  le coefficient de diffusion thermique dans le liquide, indépendant de la température.

En faisant le changement de repère et en exprimant l'équation (A2.2) dans les coordonnées  $(\eta, \xi, \theta)$ , on obtient alors :

$$D_{th}^l \left( \frac{\partial^2 T}{\partial \eta^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial \xi^2} + \frac{\eta^2 + \xi^2}{\eta^2 \xi^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} + \frac{1}{\eta} \frac{\partial T}{\partial \eta} + \frac{1}{\xi} \frac{\partial T}{\partial \xi} \right) + r_p v_p \left( \eta \frac{\partial T}{\partial \eta} - \xi \frac{\partial T}{\partial \xi} \right) = 0 \quad (A2.3)$$

En définissant le nombre de Péclet thermique,  $Pe_{th}$ , associé à la pointe de dendrite et à sa vitesse de croissance, par :

$$Pe_{th} = \frac{r_p v_p}{2 D_{th}^l} \quad (A2.4)$$

on peut écrire l'équation (A2.3) sous la forme :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial \eta^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial \xi^2} + \frac{\eta^2 + \xi^2}{\eta^2 \xi^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} + \left( \frac{1}{\eta} + 2 Pe_{th} \eta \right) \frac{\partial T}{\partial \eta} + \left( \frac{1}{\xi} - 2 Pe_{th} \xi \right) \frac{\partial T}{\partial \xi} = 0 \quad (A2.5)$$

A la lecture de la figure A2.1, on remarque que le problème est axisymétrique car sa définition ne dépend pas de l'angle  $\theta$ . Les dérivées de la température par rapport à ce terme sont donc nulles. De même, la surface de la dendrite est isotherme et donc la valeur de sa température est indépendante de  $\xi$ . On va alors chercher des solutions pour lesquelles cette propriété se poursuit dans le liquide. Avec ces simplifications, l'équation (A2.5) s'exprime sous la forme :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial \eta^2} + \left( \frac{1}{\eta} + 2 Pe_{th} \eta \right) \frac{\partial T}{\partial \eta} = 0 \quad (A2.6)$$

Une première intégration conduit à :

$$\frac{\partial T}{\partial \eta} = \frac{A}{\eta} \exp(- Pe_{th} \eta^2) \quad (A2.7)$$

où A représente une constante d'intégration.

L'écriture du bilan de conservation de la chaleur à l'interface liquide/solide à la pointe de la dendrite, où  $\eta$  est égal à 1, donne :

$$\Delta_s^l h_f \mathbf{v}_p \cdot \mathbf{n} = - D_{th}^l c_p^l \nabla T \cdot \mathbf{n} \quad (A2.8)$$

où  $\mathbf{n}$  désigne la normale à la surface de la dendrite en son sommet,  $\Delta_s^l h_f$  l'enthalpie massique de fusion et  $c_p^l$  la capacité calorifique massique du liquide.

En projetant cette relation selon l'axe  $Oz$ , avec le changement de repère associé, il vient :

$$\Delta_s^l h_f v_p = - \frac{D_{th}^l c_p^l}{r_p} \frac{\partial T}{\partial \eta} \Big|_{\eta=1} \quad (A2.9)$$

La connaissance de la dérivée de  $T$  par rapport à  $\eta$  en 1, permet de déterminer la valeur de  $A$  et la relation (A2.7) se simplifie en :

$$\frac{\partial T}{\partial \eta} = - \frac{2 \exp(\text{Pe}_{th}) \Delta_s^l h_f \text{Pe}_{th}}{\eta c_p^l} \exp(-\text{Pe}_{th} \eta^2) \quad (A2.10)$$

La température sur l'isotherme  $\eta$  est donc égale à :

$$T = T^{s/l} - \frac{\exp(\text{Pe}_{th}) \Delta_s^l h_f \text{Pe}_{th}}{c_p^l} \int_{\text{Pe}_{th}}^{\text{Pe}_{th} \eta^2} \frac{\exp(-u)}{u} du \quad (A2.11)$$

où  $T^{s/l}$  est la température de l'interface solide/liquide.

Si on fait tendre  $\eta$  vers l'infini, on retrouve la température dans le liquide loin de la pointe  $T^{l\infty}$  :

$$T^{l\infty} = T^{s/l} - \frac{\exp(\text{Pe}_{th}) \Delta_s^l h_f \text{Pe}_{th}}{c_p^l} \int_{\text{Pe}_{th}}^{\infty} \frac{\exp(-u)}{u} du \quad (A2.12)$$

La surfusion thermique,  $\Delta T_{th}$ , est égale à la différence entre  $T^{l\infty}$  et  $T^{s/l}$  et on aboutit à :

$$\frac{\Delta T_{th}}{\Delta_s^l h_f / c_p^l} = \text{Pe}_{th} \exp(\text{Pe}_{th}) E_1(\text{Pe}_{th}) \quad (A2.13)$$

où  $E_1$  est la fonction exponentielle intégrale.

Cette expression correspond à la relation d'Ivantsov :

$$\Omega_{th} = \text{Iv}(\text{Pe}_{th}) \quad (A2.14)$$

où  $\Omega_{th}$  représente la surfusion adimensionnelle, rapport de la surfusion thermique et du rapport,  $\Delta_s^l h_f / c_p^l$ , de l'enthalpie massique de fusion et de la capacité calorifique massique.  $\text{Iv}$  désigne la fonction d'Ivantsov.

➤ ***Dendrite solutale***

Dans le cas d'une pointe de dendrite croissant en régime de diffusion solutal, le raisonnement développé ici s'applique de manière similaire. Sous l'hypothèse que l'ensemble du système est isotherme, à la température  $T^{s/l}$ , et que la surface de la dendrite a une concentration donnée par le diagramme des phases à cette température, on aboutit alors à la relation :

$$\Omega_c = Iv(Pe_v) \quad (A2.15)$$

où  $\Omega_c$  représente la sursaturation de la dendrite :

$$\Omega_c = \frac{w^{l s/l} - w^{l \infty}}{w^{l s/l} - w^{s s/l}} \quad (A2.16)$$

et  $Pe_v$  est le nombre de Péclet chimique associé à la pointe:  $Pe_v = \frac{r_p v_p}{2 D_c^l}$  (A2.17)

Les termes  $w^{l s/l}$  et  $w^{s s/l}$  correspondent aux compositions respectives des phases liquide et solide à l'interface de solidification.  $w^{l \infty}$  représente la composition du liquide à l'infini.

Le profil de composition est alors donné en fonction de  $\eta$  par l'expression :

$$w = w^{l s/l} - \exp(Pe_{th}) (w^{l s/l} - w^{s s/l}) \frac{Pe_{th} \eta^2}{Pe_{th}} \int \frac{\exp(-u)}{u} du \quad (A2.18)$$

➤ ***Approche en couche limite***

Dans le cadre d'une approche en couche limite, il est possible de considérer que la composition à l'infini,  $w^{l \infty}$ , est atteinte à une distance  $\delta_c$  depuis la pointe ( $\xi = 0$ ), correspondant à la coordonnée  $\eta_c$ . Il vient alors :

$$\eta_c = \sqrt{1 + \frac{2 \delta_c}{r_p}} \quad (A2.19)$$

Sous l'hypothèse supplémentaire que cette couche limite corresponde à cette unique coordonnée  $\eta_c$  pour l'ensemble des valeurs de  $\xi$ , l'expression de la sursaturation chimique (A2.15) est alors remplacée par sa valeur déduite du calcul de  $w(\eta_c)$  (Eq. A2.18) :

$$\Omega_c = Pe_c \exp(Pe_c) \left[ E_1(Pe_c) - E_1\left(Pe_c \left(1 + \frac{2 \delta_c}{r_p}\right)\right) \right] \quad (A2.20)$$

### Annexe 3 - Cinétique de croissance en régime convectif

Le travail de Ananth et Gill [Ana91] a permis de donner l'expression de la valeur de la surfusion adimensionnelle dans un milieu où les transferts de chaleur se font simultanément par diffusion et convection. Néanmoins, les expressions obtenues ne sont valables que dans le cas d'un liquide arrivant frontalement sur la pointe avec une vitesse  $\mathbf{u}^{l\infty}$  (considérée par rapport au grain solide portant la dendrite) parallèle et de sens contraire à  $\mathbf{v}_p$ . De manière similaire au cas précédemment étudié, dans ce cadre restrictif, les équations de conservation sont simplifiées et les solutions obtenues ne dépendent pas de la valeur de l'angle  $\theta$ . En reprenant les corrections apportées par Appolaire [App99.2] et qui permettent de retrouver les résultats de Miyata [Miy95.2], nous allons présenter ici, de manière succincte, les raisonnements conduisant aux différentes expressions correspondant aux régimes rencontrés.

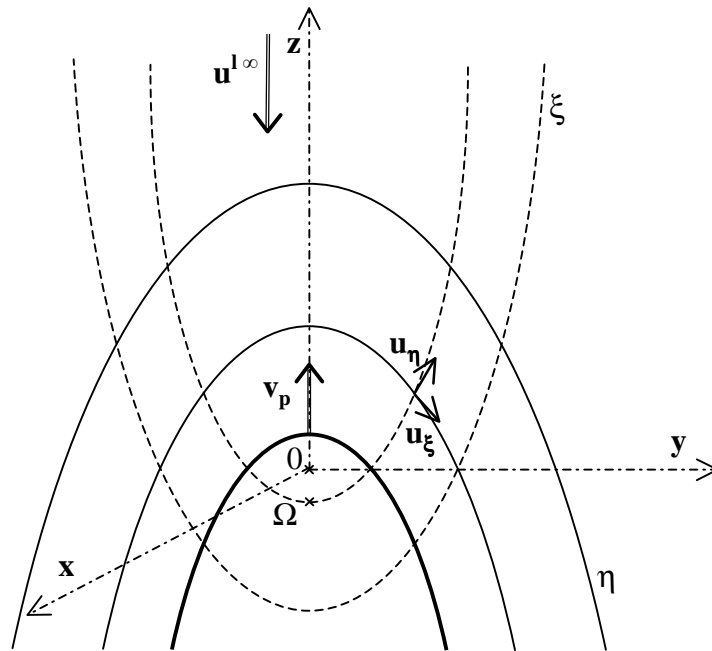


Fig. A3.2 : Représentation d'une dendrite croissant en régime convectif. Le liquide arrive de l'infini avec la vitesse  $\mathbf{u}^{l\infty}$ , parallèle à l'axe  $Oz$ , et définie par rapport à un repère extérieur fixe. La vitesse est calculée dans le système de coordonnées paraboloidales  $(\eta, \xi, \theta)$  et exprimée sous la forme des composantes suivant les vecteurs unitaires  $\mathbf{u}_{\eta}$  et  $\mathbf{u}_{\xi}$ .

En l'absence de force surfacique ou volumique, l'équation de Navier-Stokes prend, dans un liquide newtonien incompressible, à la pression  $P$ , se déplaçant à la vitesse  $\mathbf{u}^l$ , la forme suivante :

$$\frac{\partial \mathbf{u}^l}{\partial t} + [\mathbf{u}^l \cdot \nabla] \mathbf{u}^l = -\frac{1}{\rho^l} \nabla P + \nu^l \nabla^2 \mathbf{u}^l \quad (\text{A3.21})$$

$\rho^l$  et  $\nu^l$  sont respectivement la masse volumique et viscosité cinématique du liquide.

La taille des rayons de courbure des pointes de dendrites est de l'ordre de 1 à 10  $\mu\text{m}$  et les vitesses de déplacement du liquide à proximité de cette pointe restent voisines de quelques centimètres par seconde. Ces considérations nous amènent à supposer que l'écoulement se réalise

à bas nombre de Reynolds. Sous cette hypothèse et en considérant également que l'écoulement est permanent, l'équation (A3.21) se simplifie en :

$$\nu^l \nabla^2 \mathbf{u}^l = \frac{1}{\rho^l} \nabla P \quad (\text{A3.22})$$

Cette équation se résout parallèlement à l'équation de conservation de la masse liquide :

$$\text{div}(\mathbf{u}^l) = 0 \quad (\text{A3.23})$$

L'équation de conservation de la chaleur, s'écrit, en régime permanent, sous la forme :

$$D_{th}^l \Delta T + \text{div}(\mathbf{u}^l \cdot \mathbf{T}) + \mathbf{v}_p \cdot \nabla T = 0 \quad (\text{A3.24})$$

Ainsi, il est nécessaire, dans une première étape, de résoudre l'équation de Navier-Stokes (Eq. A3.22) afin de connaître le profil de vitesse du liquide dans le repère  $(0, \eta, \xi, \theta)$  en mouvement, à la vitesse  $\mathbf{v}_p$ . Cette vitesse est ensuite introduite dans l'équation A3.24 et la résolution de cette nouvelle équation permet le calcul de l'évolution de la température puis de la surfusion adimensionnelle  $\Omega_{th}$ .

Le problème étant axisymétrique, la vitesse  $\mathbf{u}^l$  n'est pas fonction de l'angle  $\theta$  et peut être cherchée comme une fonction des seules variables  $\eta$  et  $\xi$ . Les conditions aux limites émises sur le vecteur  $\mathbf{u}^l$  sont le non-glissement à la paroi de la dendrite ( $\mathbf{u}^l(\eta, \xi) = \mathbf{0}$  si  $\eta = 1$ ) et une vitesse égale à  $\mathbf{u}^{l\infty}$  si  $\xi$  ou  $\eta$  tend vers l'infini. La résolution directe de l'équation A3.22 pose cependant problème. En effet, les solutions générales que l'on obtiendra ne permettront pas de retrouver cette dernière condition loin de la pointe dendritique. Ce comportement est la manifestation du paradoxe de Stokes sur les corps dont une dimension est infinie et que l'on rencontre notamment dans le calcul du champ de vitesse entourant un cylindre. La solution obtenue dans ce cadre de résolution ne sera valable que sur une distance  $\eta$  à partir de la pointe de l'ordre de  $\sqrt{2 / \text{Re}}$  [Ana91] où  $\text{Re}$  représente le nombre de Reynolds associé à la pointe dendritique et donné par :

$$\text{Re} = \frac{\text{Pe}_{th} + \text{Pe}_u}{\text{Pr}} \quad (\text{A3.25})$$

où  $\text{Pe}_u$  est le nombre de Péclet hydrodynamique :

$$\text{Pe}_u = \frac{r_p \mathbf{u}^{l\infty}}{2 D_{th}^l} \quad (\text{A3.26})$$

et  $\text{Pr}$  le nombre de Prandtl :

$$\text{Pr} = \frac{\nu^l}{D_{th}^l} \quad (\text{A3.27})$$

Au delà de cette distance, le terme d'inertie,  $[\mathbf{u}^l \cdot \nabla] \mathbf{u}^l$ , négligé dans l'équation A3.28 se manifeste et doit être pris en considération dans le calcul du mouvement liquide. Pour lever cette difficulté, il est possible d'utiliser l'approximation d'Oseen [Ana91]. Le terme d'inertie, non linéaire, est linéarisé loin de la pointe et alors approximé par la valeur  $[\mathbf{u}^{l\infty} \cdot \nabla] \mathbf{u}^l$ . Ainsi, la solution obtenue tend vers  $\mathbf{u}^{l\infty}$  loin de la pointe.

## 1) Approximation d'Oseen

La nouvelle équation, dont les solutions vérifient l'ensemble des conditions aux limites, s'écrit :

$$[\mathbf{u}^l \cdot \nabla] \mathbf{u}^l = -\frac{1}{\rho^l} \nabla P + \nu^l \nabla^2 \mathbf{u}^l \quad (\text{A3.29})$$

Sa résolution par Ananth et Gill fournit le champ de vitesse selon ses composantes  $\mathbf{u}_\eta$  et  $\mathbf{u}_\xi$ , respectivement normales aux courbes d'isovaleurs  $\eta$  et  $\xi$  (Fig. A3.2). Le vecteur vitesse de liquide  $\mathbf{u}^l$  vaut ainsi  $u_\eta \mathbf{u}_\eta + u_\xi \mathbf{u}_\xi$  avec :

$$u_\eta = -\frac{2 \text{Pe}_u D_{th}^l \eta}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} \left[ 1 + \frac{\text{Pe}_{th}}{\text{Pe}_u} - \frac{E_1(\text{Re} \eta^2)}{E_1(\text{Re})} - \frac{1}{\eta^2 \text{Re}} \times \frac{\exp(-\text{Re}) - \exp(-\text{Re} \eta^2)}{E_1(\text{Re})} \right] \quad (\text{A3.30})$$

$$u_\xi = \frac{2 \text{Pe}_u D_{th}^l \xi}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} \left[ 1 + \frac{\text{Pe}_{th}}{\text{Pe}_u} - \frac{E_1(\text{Re} \eta^2)}{E_1(\text{Re})} \right] \quad (\text{A3.31})$$

Précédemment, nous avons fait l'hypothèse que, en régime diffusif, le champ de température était indépendant des variables  $\theta$  et  $\xi$ . La géométrie du problème restant axisymétrique, cette hypothèse reste valable et conduit à chercher le champ de température comme une fonction de l'unique variable  $\eta$ . L'équation A3.24 est simplifiée et s'écrit [App99.2] :

$$u_\eta \frac{\partial T}{\partial \eta} = \frac{D_{th}^l}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} \left[ \frac{\partial^2 T}{\partial \eta^2} + \frac{1}{\eta} \frac{\partial T}{\partial \eta} \right] \quad (\text{A3.32})$$

Le changement de la composante de vitesse  $u_\eta$  par son expression (Eq. A3.30) donne une équation différentielle en T du second ordre. Ananth et Gill en calculent la solution par une double intégration, en fixant les constantes d'intégration grâce à la condition aux limites en l'infini et au bilan de conservation de la chaleur à l'interface (Eq. A2.8), sous l'hypothèse d'une égalité des masses volumiques solide et liquide. Elle conduit à l'expression du profil de température sous la forme d'une fonction du seul paramètre  $\eta$ , validant par la même l'hypothèse émise. Avec les corrections apportées par Appolaire [App99.2], la surfusion adimensionnelle  $\Omega_{th}$  est alors égale à :

$$\Omega_{th} = 2 \text{Pe}_{th} \int_1^\infty \exp \left\{ -\ln \eta + (1-\eta^2) \text{Pe}_{th} - \text{Pe}_u \left[ \left( \eta^2 + \frac{1}{\text{Re}} \right) \left( 1 - \frac{E_1(\text{Re} \eta^2)}{E_1(\text{Re})} \right) - (1+2 \ln \eta) \frac{\exp(-\text{Re})}{\text{Re} E_1(\text{Re})} + \frac{\exp(-\text{Re} \eta^2)}{\text{Re} E_1(\text{Re})} \right] \right\} d\eta \quad (\text{A3.33})$$



## 2) Écoulement de Stokes

Les calculs menés précédemment nous permettent d'obtenir une solution à l'équation de Stokes (A3.22). De manière similaire aux calculs réalisés dans l'approximation de Oseen, la vitesse  $\mathbf{u}^1$  est recherchée sous la forme d'une dérivée à la fonction de courant. Elle conduit aux expressions suivantes des composantes du vecteur vitesse :

$$u_\eta = -\frac{\eta D_{th}^1}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} \left( 2 Pe_{th} + 2 q \ln(\eta) + \frac{q}{\eta^2} - q \right) \quad (A3.34)$$

$$u_\xi = \frac{\xi D_{th}^1}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} (2 Pe_{th} + 2 q \ln(\eta)) \quad (A3.35)$$

La constante d'intégration  $q$  illustre le paradoxe de Stokes. Elle ne peut être fixée en respectant la condition aux limites d'une vitesse égale à  $u^{1\infty}$  lorsque l'on s'éloigne de la pointe ( $\eta$  ou  $\xi$  tend vers l'infini). Ananth et Gill [Ana91] proposent de la déterminer en effectuant un développement limité à l'ordre 2 des vitesses données par l'approximation d'Oseen (Eq. A3.30, 31). Ceci conduit à avoir :

$$q = \frac{2 Pe_u}{E_1(Re)} \quad (A3.36)$$

L'introduction du profil de vitesse ainsi calculé dans l'équation de conservation A3.32 permet d'obtenir une équation différentielle dont la résolution donne un nouveau profil de température. Il permet d'obtenir une expression plus simple de la surfusion adimensionnelle :

$$\Omega_{th} = 2 Pe_{th} \int_1^\infty \exp\left(-\ln \eta + (1-\eta^2) Pe_{th} - \frac{2 Pe_u}{E_1(Re)} [1-\eta^2 + (1+\eta^2) \ln \eta]\right) d\eta \quad (A3.37)$$

Rigoureusement, seule l'expression de la surfusion adimensionnelle selon l'approximation d'Oseen (Eq. A3.33) semble valable. La vitesse du liquide utilisée pour son calcul respecte les conditions aux limites posées initialement. Cependant l'expression obtenue est complexe et difficilement calculable. L'approximation des vitesses donnée par l'équation de Stokes (Eq. A3.22) fournit ainsi une valeur simplifiée de  $\Omega_{th}$ . Néanmoins, dans les deux cas, on retrouve l'expression de la relation d'Ivantsov (A2.14) pour une vitesse du liquide nulle. Appolaire [App99.2] a montré que les deux valeurs restent similaires dans de larges domaines de variations des nombres adimensionnels. Ainsi, l'expression (A3.37) sera préférée à (A3.33) pour sa plus grande facilité d'utilisation.

Les deux valeurs calculées correspondent également à des expressions de sursaturation dans le cas de la croissance d'une dendrite solutale. Le nombre de Péclet thermique,  $Pe_{th}$ , est remplacé par le Péclet chimique,  $Pe_v$ , et le nombre de Prandtl,  $Pr$ , par le nombre de Schmidt,  $Sc$ .

### 3) Écoulement potentiel

Ananth et Gill étudient également le régime d'écoulement autour de la pointe dendritique à haut nombre de Reynolds. Dans celui-ci, la viscosité est négligeable et le terme  $v^1 \nabla^2 \mathbf{u}^1$  est pris nul dans l'équation (A3.21) ce qui conduit à une vitesse de liquide dérivant d'un potentiel et dont l'expression est :

$$u_\eta = - \frac{2 D_{th}^1}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} \left( Pe_{th} \eta + Pe_u \left( \eta - \frac{1}{\eta} \right) \right) \quad (A3.38)$$

$$u_\xi = \frac{2 \xi D_{th}^1}{r_p \sqrt{\xi^2 + \eta^2}} (Pe_{th} + Pe_u) \quad (A3.39)$$

Contrairement aux hypothèses précédentes, la condition de non-glissement du liquide à l'interface ne s'applique alors plus, ce qui conduit à avoir  $\mathbf{u}^1 \neq \mathbf{0}$ .

Le calcul de la surfusion adimensionnelle donne l'expression :

$$\Omega_{th} = Pe_{th} \frac{\exp(Pe_{th} + Pe_u)}{(Pe_{th} + Pe_u)^{Pe_u}} \Gamma(Pe_u, Pe_{th} + Pe_u) \quad (A3.40)$$

où  $\Gamma$  est la fonction gamma incomplète qui est définie par intégration [Abr72] sous la forme :

$$\Gamma(x, y) = \int_y^\infty t^{x-1} \exp(-t) dt \quad (A3.41)$$

Les vitesses de liquide restant faibles dans notre travail, cette expression ne sera pas utilisée car elle correspond à des régimes d'écoulement que nous n'avons pas rencontré.

## Annexe 4 - Lois de sédimentation

Le calcul de la vitesse de déplacement d'un corps s'obtient par l'écriture du principe fondamental de la dynamique :

$$\sum_i \mathbf{F}_i = \frac{d\mathbf{p}}{dt} \quad (\text{A4.42})$$

où  $\mathbf{p}$  représente la quantité de mouvement du corps et  $\mathbf{F}_i$  les forces extérieures agissant sur celui-ci.

Dans le cadre de notre travail, ce principe a été utilisé afin de prédire le déplacement des amas de grains constitués par les grains équiaxes attachés mutuellement. Nous allons donner dans le cas simple où ces amas sont assimilés à des sphères pleines l'expression prise par la vitesse de déplacement, déduite de la résolution de l'équation A4.42. Nous détaillerons ensuite les termes utilisés dans ce bilan dans le cas général où les amas sont considérés comme des corps non sphériques et poreux, notamment la valeur de la force de traînée et son expression.

### 1) Bilan des forces

Si l'on considère un corps sédimentant dans un liquide au repos et assimilé à une sphère pleine de rayon  $r$ , trois forces agissent sur lui :

$\mathbf{P}$  : le poids dirigé dans le sens du vecteur gravité  $\mathbf{g}$ , égal à :

$$\mathbf{P} = \frac{4}{3} \pi r^3 \rho^s \mathbf{g} \quad (\text{A4.43})$$

où  $\rho^s$  est la masse volumique du solide.

$\mathbf{P}_A$  : la poussée d'Archimède dirigée dans le sens contraire du vecteur gravité, égal à :

$$\mathbf{P}_A = -\frac{4}{3} \pi r^3 \rho^l \mathbf{g} \quad (\text{A4.44})$$

où  $\rho^l$  est la masse volumique du liquide entourant la sphère.

$\mathbf{F}_D$  : la force de traînée qui s'oppose au mouvement de la particule et est dirigée dans le sens contraire de sa vitesse,  $\mathbf{v}_\Sigma$ , qui s'écrit [Ahu92.1, Jal96] :

$$\mathbf{F}_D = -\frac{1}{2} \rho^l v_\Sigma \mathbf{v}_\Sigma A_\Sigma C_D \quad (\text{A4.45})$$

où  $A_\Sigma$  est l'aire d'une section de la sphère, égal à  $\pi r^2$ , et  $C_D$  le coefficient de traînée propre à la particule. En supposant la vitesse suffisamment faible pour se trouver dans le régime de Stokes, la valeur de ce coefficient est :

$$C_D = \frac{24}{\text{Re}} = \frac{12 v^l}{r v_\Sigma} \quad (\text{A4.46})$$

où  $\text{Re}$  désigne le nombre de Reynolds relatif au diamètre de la sphère.

La quantité de mouvement  $\mathbf{p}$  correspond au produit de la masse de la particule sphérique et de sa vitesse. Cette masse étant supposée constante, il vient pour dérivée de  $\mathbf{p}$  :

$$\frac{d\mathbf{p}}{dt} = \frac{4}{3} \pi r^3 \rho^s \frac{d\mathbf{v}_\Sigma}{dt} \quad (\text{A4.47})$$

L'équation A4.42 s'écrit alors sous la forme :

$$\mathbf{P} + \mathbf{P}_A + \mathbf{F}_D = \frac{d\mathbf{p}}{dt} \quad (\text{A4.48})$$

soit :

$$\frac{4}{3} \pi r^3 \rho^s \mathbf{g} - \frac{4}{3} \pi r^3 \rho^l \mathbf{g} - \frac{1}{2} \rho^l v_\Sigma \mathbf{v}_\Sigma A_\Sigma C_D = \frac{4}{3} \pi r^3 \rho^s \frac{d\mathbf{v}_\Sigma}{dt} \quad (\text{A4.49})$$

Si la chute se réalise verticalement, dans le sens de la gravité  $\mathbf{g}$ , les différents vecteurs intervenant dans l'équation A4.49 sont alignés et la projection de la relation s'écrit :

$$(\rho^s - \rho^l) g - \frac{9 \rho^l v^l}{2 r^2} v_\Sigma = \rho^s \frac{d v_\Sigma}{dt} \quad (\text{A4.50})$$

En supposant la vitesse initiale nulle, à  $t = 0$ , la solution a pour expression :

$$v_\Sigma(t) = v_\Sigma^\infty \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad (\text{A4.51})$$

où la constante de temps  $\tau$  vaut :

$$\tau = \frac{2 r^2 \rho^s}{9 \mu^l} \quad (\text{A4.52})$$

avec  $\mu^l$  la viscosité dynamique du liquide, égale au produit  $\rho^l v^l$ , et  $v_\Sigma^\infty$  la vitesse terminale, pour laquelle la dérivée temporelle de la vitesse est nulle, égale à :

$$v_\Sigma^\infty = \frac{2 r^2 (\rho^s - \rho^l) g}{9 \mu^l} \quad (\text{A4.53})$$

La constante de temps caractérise la rapidité de la particule à atteindre sa vitesse terminale de chute. Ainsi, après une durée de  $5 \tau$ , l'écart relatif entre  $v_\Sigma(t)$  et  $v_\Sigma^\infty$  est inférieur à 1 % et les deux termes peuvent être considérés égaux.

En assimilant les amas que nous étudions à des sphères dont le rayon est de l'ordre de 1 mm et, en première approximation, reste constant, on peut estimer la durée mise pour atteindre la vitesse terminale de chute à partir du calcul de  $\tau$ . En considérant une viscosité dynamique voisine de 1 mPa s et une masse volumique de 5000 kg m<sup>-3</sup>, valeurs habituelles dans les alliages métalliques,  $\tau$  est proche de 1 s. Cette valeur est faible en comparaison du temps total de déplacement des amas. Elle justifie que l'on néglige l'accélération dans le calcul de la vitesse de déplacement comme proposé par Ahuja et al. [Ahu92.1] et Jalanti [Jal96]. Cette vitesse se déduit alors de l'écriture d'un bilan des forces nul.

## 2) Expression des forces

Les valeurs de constantes de temps  $\tau$  que nous obtenons nous conduisent à négliger l'évolution temporelle de la vitesse. Ainsi, à la fin des pas de temps au cours desquels le déplacement du grain équiaxe est modélisé, nous considérons que la vitesse terminale de chute est atteinte. En négligeant également la variation de masse du grain au cours de ce déplacement, cette vitesse nous permet d'avoir une dérivée temporelle de la quantité de mouvement  $\mathbf{p}$  nulle. L'équation A4.42 se résume à un bilan des forces appliqués au grain égal à  $\mathbf{0}$ . Les trois forces que nous avons définies précédemment ( $\mathbf{P}$ ,  $\mathbf{P}_A$ ,  $\mathbf{F}_D$ ) s'appliquent de manière comparable au grain équiaxe mais leur expression est plus complexe.

Nous avons repris l'hypothèse de Ahuja [Ahu92.2], de Groh III [Gro93] et Apollaire [App99.2] consistant à entourer le grain d'une enveloppe poreuse, ceci afin de faciliter le calcul du terme de traînée dans l'écriture du bilan de forces (Fig. A4.3). En deux dimensions, cette enveloppe apparaît sous la forme d'un quadrilatère, qui correspond à une section réalisée dans le plan d'une enveloppe octaédrique 3D.

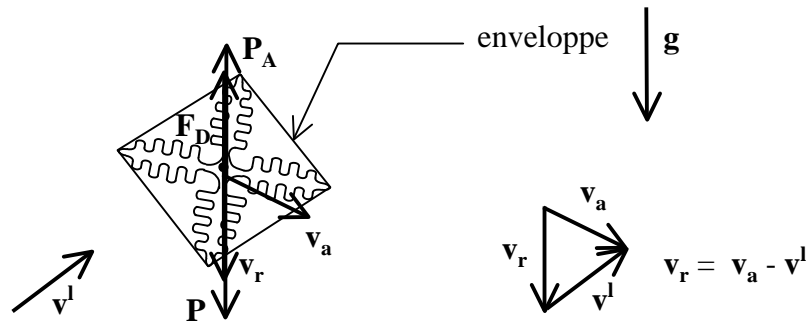


Fig. A4.3 : Grain équiaxe entouré de son enveloppe. La vitesse relative du grain,  $\mathbf{v}_r$ , est donnée comme la différence entre la vitesse de déplacement propre du grain  $\mathbf{v}_a$  et du liquide l'environnant,  $\mathbf{v}^l$ . Cette figure est similaire à celle présentée en II.25.

Les valeurs des forces appliquées au grain sont respectivement égales à :

$$\text{Pour le poids :} \quad \mathbf{P} = M_e \mathbf{g} \quad (\text{A4.54})$$

où  $M_e$  est la masse de l'enveloppe, somme des masses des phases solide et liquide :

$$M_e = g^{s,m} V_e \rho^s + g^{l,m} V_e \rho^l \quad (\text{A4.55})$$

$V_e$  est le volume de l'enveloppe,  $\rho^s$  et  $\rho^l$  les masses volumiques des phases liquide et solide et  $g^{s,m}$  et  $g^{l,m}$  les fractions volumiques internes de ces mêmes phases.

$$\text{Pour la poussée d'Archimède :} \quad \mathbf{P}_A = - M_e^l \mathbf{g} \quad (\text{A4.56})$$

où  $M_e^l$  est la masse de liquide correspondant au volume de l'enveloppe :

$$M_e^l = V_e \rho^l \quad (\text{A4.57})$$

La force de traînée  $\mathbf{F}_D$  s'écrit sous la forme [Ahu92.1, Jal96] :

$$\mathbf{F}_D = -\frac{1}{2} \rho^l v_r \mathbf{v}_r A_e C_D \quad (\text{A4.58})$$

où  $\mathbf{v}_r$  est la vitesse relative de l'enveloppe par rapport au grain, égale à la différence entre la vitesse propre du grain,  $\mathbf{v}_a$ , et la vitesse du liquide entourant le grain,  $\mathbf{v}^l$  (Fig. A4.3).  $A_e$  est l'aire de la surface de l'enveloppe vue par la vitesse relative de l'amas et  $C_D$  le coefficient de traînée.

Nous avons un bilan nul des forces s'exerçant sur l'enveloppe :

$$\mathbf{P} + \mathbf{P}_A + \mathbf{F}_D = \mathbf{0} \quad (\text{A4.59})$$

soit :

$$\left[ g^{s,m} V_e (\rho^s - \rho^l) \right] \mathbf{g} - \frac{1}{2} \rho^l v_r \mathbf{v}_r A_e C_D = \mathbf{0} \quad (\text{A4.60})$$

L'expression de la vitesse relative de déplacement obtenue est :

$$\mathbf{v}_r = \left( \frac{2 g^{s,m} (\rho^s - \rho^l) V_e g}{\rho^l A_e C_D} \right)^{1/2} \mathbf{u}_g \quad (\text{A4.61})$$

où  $\mathbf{u}_g$  est le vecteur unitaire désignant la direction dans laquelle s'exerce la gravité ( $\mathbf{g} = g \mathbf{u}_g$ ).

Si l'enveloppe est pleine, sphérique et de rayon  $r$ , les différents termes prennent les valeurs :

$$g^{s,m} = 1 \quad (\text{A4.62})$$

$$V_e = \frac{4}{3} \pi r^3 \quad (\text{A4.63})$$

$$A_e = \pi r^2 \quad (\text{A4.64})$$

et, dans l'hypothèse où la vitesse de chute se réalise à bas nombre de Reynolds (typiquement  $Re < 0,1$  [Ahu92.1]), ce qui correspond au régime de Stokes, le coefficient de traînée est égal à :

$$C_D = \frac{24}{Re} \quad (\text{A4.65})$$

où le nombre de Reynolds vaut, avec  $d$  le diamètre de la sphère :

$$Re = \frac{d v_r}{\nu^l} \quad (\text{A4.66})$$

L'introduction des termes A4.62-65 dans l'équation A4.61 redonne l'expression de la vitesse terminale de chute d'une sphère pleine, à bas nombre de Reynolds (A4.53).

*Discussion sur le coefficient de traînée  $C_D$  et la section apparente  $A_e$  :*

Comme cela à été précédemment proposé [Ahu92.2, Gro93, App99.2], nous avons choisi d'assimiler l'enveloppe poreuse à une sphère poreuse de diamètre  $d_e$  afin de calculer le coefficient de traînée. Cette assimilation permet également de considérer que l'aire  $A_e$  vue par la vitesse relative du liquide est égale à celle d'une section de la sphère :

$$A_e = \pi \frac{d_e^2}{4} \quad (\text{A4.67})$$

La comparaison de la vitesse terminale de chute de cette enveloppe octaédrique avec la vitesse terminale de chute d'une sphère pleine se réalise par l'utilisation de deux coefficients correctifs permettant de prendre successivement en considération l'effet de la forme de l'enveloppe et de la porosité et définis par les expressions :

$$C_g = \frac{v_{\text{sed}}}{v_{\text{eq}}^{\text{sed}}} \quad (\text{A4.68})$$

$$C_f = \frac{v_{\text{eq}}^{\text{sed}}}{v_{\text{por}}^{\text{sed}}} \quad (\text{A4.69})$$

Le coefficient  $C_g$  est le rapport de la vitesse de sédimentation du grain équiaxe,  $v^{\text{sed}}$ , sur la vitesse de sédimentation de la sphère équivalente,  $v_{\text{eq}}^{\text{sed}}$ , c'est à dire de la sphère de même volume que la particule. Son calcul se réalise à partir du facteur de forme  $\psi$ , qui correspond au rapport de l'aire de la sphère équivalente sur l'aire de la particule. Cette valeur est toujours inférieure à l'unité, une particule sédimentant toujours plus lentement que sa sphère équivalente.

Le coefficient  $C_f$  permet de comparer les sédimentations d'une sphère poreuse et d'une sphère équivalente homogène ayant le même diamètre et la même densité apparente. Il est défini par le rapport de la vitesse de sédimentation de cette sphère équivalente,  $v_{\text{eq}}^{\text{sed}}$ , sur la vitesse de sédimentation de la sphère poreuse,  $v_{\text{por}}^{\text{sed}}$ . Cette valeur est également toujours inférieure à l'unité, la porosité d'une particule facilitant son déplacement par rapport à sa sphère équivalente.

Dans le cas où les grains équiaxes sédimentent majoritairement à faibles nombres de Reynolds, Ahuja [Ahu92.1] considère que l'on se trouve dans un domaine où la loi de Stokes (A4.65) s'applique. En faisant l'hypothèse que les phénomènes de porosité et de facteur de forme de l'enveloppe dendritique sont indépendants, il propose d'écrire le coefficient de traînée de l'enveloppe entourant le grain équiaxe sous la forme :

$$C_D = \frac{24}{\text{Re}} \frac{C_f}{C_g} \quad (\text{A4.70})$$

Cette valeur est ensuite réintroduite dans l'équation A4.61 et permet de retrouver la vitesse de sédimentation de l'enveloppe poreuse.

Dans le cas des particules de sphéricités voisines de 1, c'est à dire des particules de forme voisine de la sphère, une relation entre  $C_g$  et  $\psi$  a été proposée par Pettyjohn et Christiansen [Pet48] sous la forme :

$$C_g = 0.843 \log\left(\frac{\psi}{0.065}\right) \quad (\text{A4.71})$$

Nous avons choisi de reprendre la corrélation similaire développée par Ahuja et al. [Ahu92.2], puis corrigée par de Groh III et al. [Gro93], propre à la sédimentation de particules de structure dendritique :

$$C_g = 1.26 \log\left(\frac{\Psi}{0.163}\right) \quad (\text{A4.72})$$

La valeur du coefficient correctif de porosité,  $C_f$ , est plus complexe à estimer. Neale et al. [Nea73] ont utilisé dans leur étude une extension de la loi de Darcy pour les milieux fortement poreux. L'équation qu'ils présentent tend vers l'équation de Darcy dans le cas des faibles porosités. Sa résolution conduit à une valeur de  $C_f$  valable pour un large domaine de variation de porosité et qui s'exprime sous la forme :

$$C_f = \frac{2\beta^2 \left(1 - \frac{\tanh(\beta)}{\beta}\right)}{2\beta^2 + 3 \left(1 - \frac{\tanh(\beta)}{\beta}\right)} \quad (\text{A4.73})$$

où le coefficient  $\beta$  est défini comme le rayon normalisé de la sphère poreuse, par :

$$\beta = \frac{d_e}{2\sqrt{K}} \quad (\text{A4.74})$$

avec  $K$  la perméabilité associée au milieu intérieur à la sphère poreuse.

Le calcul de la perméabilité d'un milieu est donné par la relation de Carman-Kozeny [Car56] :

$$K = \frac{g^1{}^3}{5 S_v g^s{}^2} \quad (\text{A4.75})$$

où  $g^1$  est la fraction volumique de liquide du milieu,  $g^s$  la fraction de solide et  $S_v$  la concentration d'aire interfaciale, rapport de l'aire de séparation entre volume liquide et volume solide,  $A^{s/1}$ , et du volume de solide,  $V_s$ .

Dans le cas de l'enveloppe dendritique cette relation s'écrit sous la forme [Gro93] :

$$K = \frac{g^{1m}{}^3}{5 \left(\frac{A^{s/1}}{V_e}\right)^2} \quad (\text{A4.76})$$

où  $g^{1m}$  est la fraction de liquide interne à l'enveloppe,  $A^{s/1}$  l'aire de contact de la dendrite avec le liquide et  $V_e$  le volume de l'enveloppe.

Cette même relation peut également s'exprimer à partir de  $\lambda_2$ , l'espacement interdendritique secondaire dans l'enveloppe, par la relation développée par Jalanti [Jal96,Jal00] (Annexe 6) :

$$K = \frac{g_i^1{}^3 \lambda_2^2}{180 g_i^s{}^2} \quad (\text{A4.77})$$



Ainsi, dans le cas des écoulements à faibles nombres de Reynolds, le calcul de  $\mathbf{v}_r$ , la vitesse relative de sédimentation, se réalise en définissant une enveloppe autour du grain et en résolvant le problème posé simultanément par les équations A4.61, A4.70, A4.71 et A4.73-77.

L'hypothèse d'un déplacement des grains à faible nombre de Reynolds reste cependant critiquable. Pour des particules de tailles importantes ou des mouvements rapides, il est possible que l'hypothèse de Stokes ( $Re < 0,1$ ) ne se vérifie plus. On est alors conduit à élargir le domaine de validation de l'expression  $C_D$ . Haider et Levenspiel [Hai89], reprenant de nombreuses expériences réalisées précédemment pour des particules de formes variées établissent une relation reliant le coefficient de traînée au nombre de Reynolds et au facteur de forme de la particule :

$$C_D = \frac{24}{Re} \left( 1 + C_1 Re^{C_2} \right) + \frac{C_3}{1 + \frac{C_4}{Re}} \quad (\text{A4.78})$$

avec les paramètres  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  et  $C_4$  sont des fonctions de  $\psi$  sous la forme :

$$C_1 = \exp(2.3288 - 6.4581 \psi + 2.4486 \psi^2) \quad (\text{A4.79 a})$$

$$C_2 = 0.0964 + 0.5565 \psi \quad (\text{A4.79 b})$$

$$C_3 = \exp(4.905 - 13.8944 \psi + 18.4222 \psi^2 - 10.2599 \psi^3) \quad (\text{A4.79 c})$$

$$C_4 = \exp(1.4681 + 12.2584 \psi - 20.7322 \psi^2 + 15.8855 \psi^3) \quad (\text{A4.79 d})$$

L'intérêt de l'équation (A4.78) réside dans le large domaine de variation du nombre de Reynolds pour laquelle elle demeure valable ( $Re < 25000$  [Hai89]), ce qui permet de recouvrir également le domaine des faibles nombres de Reynolds où la loi de Stokes (A4.65) est valide.

Ces auteurs proposent également de simplifier l'expression précédente en l'utilisant sous une forme où les différents paramètres  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $C_3$  et  $C_4$  ont été partiellement linéarisés. Elle conduit à :

$$C_1 = 8.1716 \exp(- 4.0655 \psi) \quad (\text{A4.80 a})$$

$$C_2 = 0.0964 + 0.5565 \psi \quad (\text{A4.80 b})$$

$$C_3 = 73.69 \exp(- 5.0748 \psi) \quad (\text{A4.80 c})$$

$$C_4 = 5.378 \exp(6.2122 \psi) \quad (\text{A4.80 d})$$

Cependant, dans notre travail, nous avons choisi de nous référer aux paramètres initiaux (A4.79) non modifiés.

Ahuja, voulant étendre son étude à des domaines de variation plus importants du nombre de Reynolds, utilise l'expression définie par Haider et Levenspiel [Hai89] (A4.78). En cherchant une expression du coefficient de traînée permettant de retrouver l'équation A4.70 pour des valeurs faibles de  $Re$ , il conclut sur la généralisation de la valeur de  $C_D$  sous la forme :

$$C_D = \frac{24 C_f}{C_g Re} \left( 1 + C_g C_1 Re^{C_2} \right) + \frac{C_3}{1 + \frac{C_4}{Re}} \quad (\text{A4.81})$$

où les différents paramètres sont donnés par les équations A4.80.

Une remarque importante est nécessaire. L'équation précédente n'est pas strictement identique à celle donnée par Ahuja [Ahu92.1]. Le terme 0.0964 apparaissant dans l'équation A4.80 b) est remplacé par -0.0964. Par la suite, nous avons repris les valeurs citées dans l'article original [Hai89]. De plus le terme  $C_g$  présent au dénominateur au début du second membre de l'équation A4.81 est également absent dans l'égalité écrite par Jalanti [Jal96].

Il est à noter également que la prise en considération de domaine de variation plus large pour le nombre de Reynolds, due à l'étude de grains de plus grande taille, devrait également conduire à prendre en compte le terme d'inertie ainsi que de nouvelles forces, ce qui n'a pas été fait dans cette étude.

## Annexe 5 - Equations macroscopiques

Les équations macroscopiques résolues à l'échelle du maillage en éléments finis sont les équations de conservation de la masse, de l'enthalpie, du soluté et de la quantité de mouvement du liquide. Elles sont écrites en utilisant l'expression générale donnée par Rappaz et al. [Rap98] et prennent les formes suivantes :

*Equation de conservation de la masse*

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{v}) = 0 \quad (\text{A5.82})$$

*Equation de conservation de l'enthalpie*

$$\frac{\partial (\rho h)}{\partial t} + \text{div}(\rho h \mathbf{v}) - \text{div}(\kappa \mathbf{grad} T) = 0 \quad (\text{A5.83})$$

avec  $h$  l'enthalpie massique,  $\kappa$  la conductibilité thermique et  $T$  la température.

*Equation de conservation du soluté*

$$\frac{\partial (\rho w)}{\partial t} + \text{div}(\rho w \mathbf{v}) - \text{div}(D_c^l \mathbf{grad}(\rho w)) = 0 \quad (\text{A5.84})$$

où  $D_c^l$  désigne le coefficient de diffusion chimique.

Jalanti [Jal00] fait l'hypothèse que la diffusion solutale est négligeable devant les phénomènes convectifs. Sous cette hypothèse, cette équation se simplifie en :

$$\frac{\partial (\rho w)}{\partial t} + \text{div}(\rho w \mathbf{v}) = 0 \quad (\text{A5.85})$$

*Equation de la conservation de la quantité de mouvement du liquide*

Cette équation correspond à l'équation de Navier-Stokes. Le solide est supposé indéformable et le liquide newtonien. L'expression générale de la conservation de la quantité de mouvement, pour les deux composantes  $x$  et  $y$ , s'écrit :

$$\frac{\partial (\rho^l u_x)}{\partial t} + \text{div}\left(\frac{\rho^l}{g^l}(u_x \mathbf{u})\right) - \mu \Delta u_x + g^l \frac{\mu}{K} u_x = \rho^l g^l g_x - g^l \frac{\partial P^l}{\partial x} \quad (\text{A5.86})$$

$$\frac{\partial (\rho^l u_y)}{\partial t} + \text{div}\left(\frac{\rho^l}{g^l}(u_y \mathbf{u})\right) - \mu \Delta u_y + g^l \frac{\mu}{K} u_y = \rho^l g^l g_y - g^l \frac{\partial P^l}{\partial y} \quad (\text{A5.87})$$

$P^l$  désigne la pression du liquide et  $g_x$  et  $g_y$  sont les composantes selon  $x$  et  $y$  du vecteur gravité  $\mathbf{g}$ .  $\mathbf{u}$  est la vitesse relative de déplacement moyenne des phases par rapport au solide, égale à  $\mathbf{v} - \mathbf{v}^s$  [Rap98]. La méthode de pénalisation employée par Jalanti [Jal00] consiste à exprimer le terme de pression  $P^l$  à l'aide de l'équation de conservation de la masse A5.82 écrite sous l'hypothèse d'une masse volumique  $\rho$  constante et d'une vitesse de solide de divergence nulle. Sous ces hypothèses, l'équation A5.82 permet d'exprimer le terme de pression sous la forme donnée par l'équation A5.88 (méthode de pénalisation - paragraphe IV.1) et de le remplacer ainsi dans les équations A5.86 et A5.87.

$$P^l = -\frac{1}{\varepsilon} \operatorname{div} \mathbf{u} \quad (\text{A5.88})$$

De plus, dans la résolution macroscopique que nous avons faite de l'équation de Navier-Stokes, le terme  $\mathbf{u}$  correspond en fait à la vitesse débitante de liquide, égale à  $g^l \mathbf{v}^l$ , la vitesse de solide étant alors prise nulle, sauf dans le terme de création provoqué par l'existence d'une force de friction volumique. Pour la même raison, les équations A5.83 et A5.85 sont résolues en considérant que la vitesse moyenne des phases,  $\mathbf{v}$ , est égale à  $g^l \mathbf{v}^l$ . Le transport des termes d'enthalpie et de concentration solutale est réalisé à l'échelle CA lors du déplacement des informations contenues dans les cellules.

## Annexe 6 - Calcul des concentrations d'aire interfaciale

Le calcul de la perméabilité  $K$  d'un milieu nécessite l'utilisation de lois physiques tenant compte de la quantité de phase solide présente dans celui-ci. Ainsi, un milieu dans lequel la fraction de solide,  $g^s$ , est élevée présente une perméabilité faible due aux interactions importantes entre les domaines solide et liquide. A l'inverse, un milieu caractérisé par une fraction de solide faible est fortement perméable, le liquide n'étant pas freiné dans son mouvement. L'un des paramètres caractérisant cette importance des interactions solide/liquide dans le milieu est la surface spécifique,  $S_v$ , égale au rapport de l'aire interfaciale  $A^{s/l}$  sur le volume de solide  $V^s$ . La relation de Carman-Kozeny [Car56] permet ensuite d'exprimer la perméabilité du milieu sous la forme :

$$K = \frac{(1-g^s)^3}{5 S_v^2 g^s} \quad (\text{A6.89})$$

Cette relation est celle utilisée par Wang et Beckermann [Wan95] dans le calcul de la perméabilité interne aux grains équiaxes dendritiques et par Jalanti [Jal00] dans le celui de la perméabilité du milieu pâteux. Si la fraction de solide  $g^s$  est une variable connue,  $S_v$  reste plus difficile à estimer dans le cas de la croissance de structures équiaxes. Ce terme dépend alors de la géométrie considérée pour les bras dendritiques. Selon la dimension dans laquelle se développe ces bras, différentes relations sont utilisables.

Wang et Beckermann [Wan96.1] se basent sur l'hypothèse que les bras dendritiques se présentent sous la forme de plaques infinies espacées par la distance  $\lambda_2$  correspondant à l'espacement dendritique secondaire. La figure A6.4 donne une représentation schématisée de ces bras, en se ramenant à une surface en vis à vis de dimension  $H \times L$ ,

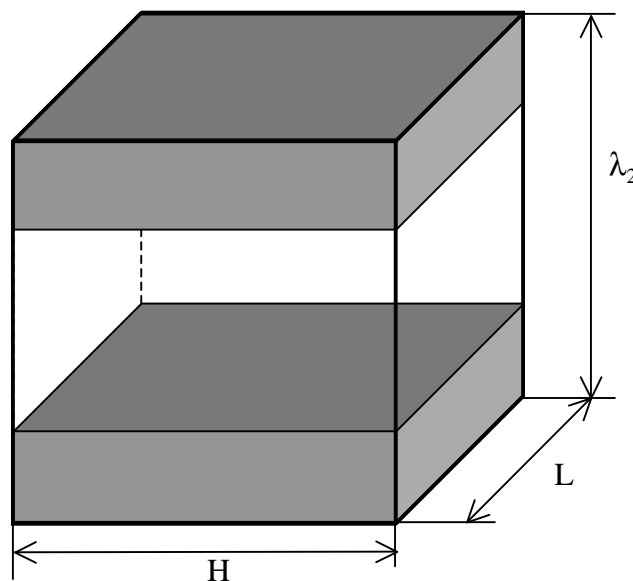


Fig. A6.4 : Représentation schématisée des bras dendritiques sous la forme de plaques infinies parallèles espacées de la distance  $\lambda_2$ . L'épaisseur de ces plaques est reliée à la valeur de la fraction de solide.

Sous cette hypothèse, les valeurs des aires interfaciales et volume de solide propre à ce domaine sous égale à :

$$A^{s/l} = 2 H L \quad (\text{A6.90})$$

$$V^s = g^s H L \lambda_2 \quad (\text{A6.91})$$

La surface spécifique est alors égale à :

$$S_v = \frac{2}{g^s \lambda_2} \quad (\text{A6.92})$$

Comme le remarque Wang et Beckermann, ce modèle pose le problème de ne pas permettre de retrouver la valeur de la surface spécifique de l'enveloppe granulaire lorsque le solide a disparu ( $g^s = 1$ ). De plus, l'expression de la surface totale du solide dans l'enveloppe,  $A^{s/l}$ , ne prend pas en considération l'épaisseur de ce solide.

Il apparaît plus juste de considérer les bras dendritiques comme des cylindres de rayon  $r$  se développant parallèlement c'est à dire en croissant dans une même direction. Si l'on considère que les rayons de ces cylindriques sont identiques, la figure A6.5 en donne alors une représentation schématisée.

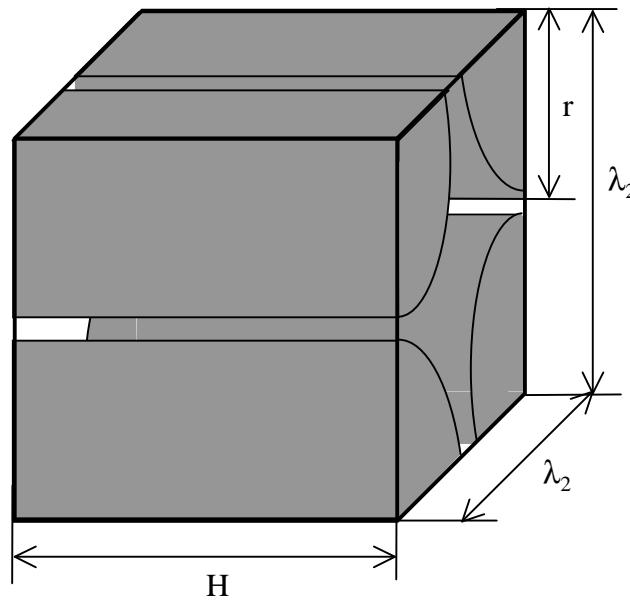


Fig. A6.5 : Représentation schématisée des bras dendritiques sous la forme de cylindres infinis parallèles, espacés de la distance  $\lambda_2$ . La fraction de solide du milieu est fonction de leur rayon  $r$  et de la distance  $\lambda_2$ .

On obtient ainsi pour expression des surface et volume :

$$A^{s/l} = 2 \pi r H \quad (\text{A6.93})$$

$$V^s = \pi r^2 H = g^s H \lambda_2^2 \quad (\text{A6.94})$$

Cette dernière relation permet d'exprimer  $r$  en fonction de la fraction de solide et de l'espacement interdendritique :

$$r = \lambda_2 \sqrt{\frac{g^s}{\pi}} \quad (\text{A6.95})$$

La surface spécifique est alors égale à :

$$S_v = \frac{2}{r} = \frac{2}{\lambda_2} \sqrt{\frac{\pi}{g^s}} \quad (\text{A6.96})$$

Dans la situation où les branches dendritiques sont assimilées à des prismes à bases carrées, la formule précédente est modifiée et prend la valeur (A6.97) donnée par Appolaire [App99.2]. Cette valeur lui permet ensuite de donner une expression plus générale de l'aire interfaciale entre liquide et solide, valable pour une évolution de la fraction volumique de zone pâteuse entre 0 à 1.

$$S_v = \frac{4}{\lambda_2 \sqrt{g^s}} \quad (\text{A6.97})$$

Jalanti choisit de considérer les structures dendritiques sous la forme d'hémisphère jointives de rayon  $r$ . Cette hypothèse permet de relier la dimension de ces structures à l'espacement interdendritique  $\lambda_2$  ( $r = \lambda_2 / 2$ ), ce que ne permet pas les expressions obtenues avec un modèle 2D. Le schéma de ces structures est représentée à la figure A6.6 .

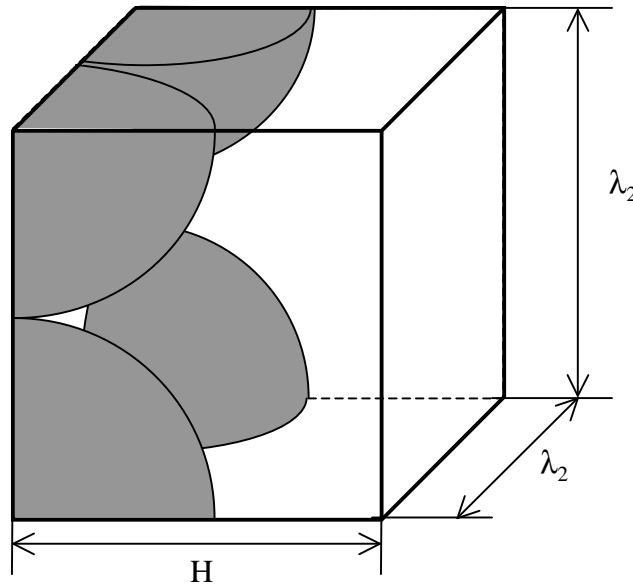


Fig. A6.6 : Représentation schématisée des bras dendritiques sous la forme d'hémisphères de rayon  $\lambda_2/2$  jointives.

Les surfaces et volume totaux des hémisphères présentées à la figure A6.6 sont ainsi égaux à :

$$A^{s/l} = \frac{1}{2} 4 \pi \left(\frac{\lambda_2}{2}\right)^2 \quad (\text{A6.98})$$

$$V^s = \frac{2}{3} \pi \left(\frac{\lambda_2}{2}\right)^3 = g^s \lambda_2^2 H \quad (\text{A6.99})$$

La concentration d'aire interfaciale est alors donnée par :

$$S_v = \frac{6}{\lambda_2} \quad (\text{A6.100})$$

Cette relation se révèle indépendante de la valeur de la fraction solide, l'hypothèse que les hémisphères sont jointives permettant de lever l'indétermination existant entre  $g^s$  et  $\lambda_2$ . L'utilisation de l'expression A6.100 conduit à la concentration d'aire interfaciale  $S^{s/l}$  donnée par la relation IV.44.

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur Michel BELLET, Maître de Recherche, Ecole des Mines de Paris, Sophia Antipolis**

**Monsieur Yves FAUTRELLE, Professeur, ENSHM, I.N.P.G. , St Martin d'Hères**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur GUILLEMOT Gildas

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,  
une thèse intitulée :

**« Formation de structures de grains dans des alliages à solidification dendritique –  
Modélisation couplée automates cellulaires et éléments finis »**

en vue de l'obtention du titre de :

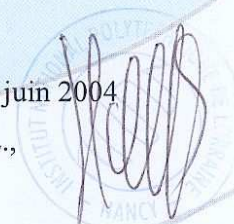
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Science et ingénierie des matériaux »

Fait à Vandoeuvre, le 25 juin 2004

Le Président de l'I.N.P.L.,

L. SCHUFFENECKER



NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAY  
BOITE POSTALE  
F - 54500  
VANCEUVRE CEDEX



# Formation de Structures de Grains dans des Alliages à Solidification Dendritique

## Modélisation couplée Automates Cellulaires et Eléments Finis

### **Résumé :**

La solidification des alliages métalliques donne lieu à la formation de structures de grains dendritiques, colonnaire ou équiaxe. A la distribution spatiale de ces structures est associée une ségrégation de première importance pour la prédiction des propriétés du matériau. Dans le but d'étudier l'influence de la formation des grains sur la ségrégation, nous avons développé un modèle original, nommé CAFE. Il couple une approche en Automates Cellulaires (CA), support à la modélisation microscopique du développement des grains, et une approche en Eléments Finis (FE), modélisant l'évolution des variables macroscopiques. Le couplage défini entre CA et FE permet de tenir compte du déplacement des grains alors que les équations macroscopiques sont résolues dans l'approximation d'un solide fixe. Les différentes parties du couplage ont ainsi été validées numériquement. Nous avons également développé une approche en couche limite permettant un calcul rapide de la cinétique de croissance aux pointes des dendrites. Les résultats obtenus en simulant la chute de cristaux de  $\text{NH}_4\text{Cl}$  retrouvent les tailles de grains mesurées et, partiellement, l'évolution des vitesses de sédimentation. La simulation de l'expérience de solidification de Hebditch et Hunt sur des lingots plomb-étain montre l'existence d'une déstabilisation au front due à l'évolution d'un régime de croissance contraint à un régime de croissance non contraint, ce qui conduit à l'apparition de canaux ségrévés. Pour une structure colonnaire, l'orientation cristallographique des grains influence celle des canaux ségrévés. Dans le cas d'une structure équiaxe, la taille des grains modifie l'amplitude des mésoségrégations. L'influence de la structure granulaire sur la ségrégation est ainsi modélisée. Cependant, tant les résultats des confrontations pour la sédimentation des cristaux  $\text{NH}_4\text{Cl}$  que la carte de ségrégation en étain indiquent qu'il serait nécessaire de modifier le calcul de la fraction de solide interne aux grains.

**Mots-Clefs :** Solidification, Structure, Ségrégation, Modélisation, Alliage, Dendrite, Automates Cellulaires, Eléments Finis

# Formation of Grain Structure in Dendritic Alloy Solidification

## Coupled Cellular Automaton – Finite Element Modelling

### **Abstract :**

The solidification of metallic alloys gives rise to the formation of columnar or equiaxed dendritic grain structures. A segregation of prime importance for the prediction of the material properties is associated with the spatial distribution of this structure. A model has been developed for the study of the influence of the formation of the grains structure on segregation. It couples a cellular automaton (CA) method with a finite element (FE) method. The CA method simulates the development of the grains while the FE method solves the conservation equations that govern the evolution of the macroscopic variables. The coupling scheme between the CA and FE methods is defined to account for the movement of the grains, the approximation of a fixed solid being used within the FE method. The various parts of this coupling scheme have been numerically validated. We have also developed a boundary layer approach which gives us the possibility to easily calculate the dendrite tip growth velocity. The fall of  $\text{NH}_4\text{Cl}$  crystals agrees with the measured grain sizes and, partially, with the sedimentation velocities. The simulation of the Hebditch and Hunt experiment on the solidification of lead-tin ingots shows a destabilization at the growth front due to the transition from a constrained to an unconstrained growth regime. This leads to the formation of segregated channels. The orientation of the segregated channels is shown to depend on the crystallographic orientation of the columnar structure. For an equiaxed structure, the grain size modifies the amplitude of the mesosegregations. In this way the influence of the grains structure on the mesosegregation is modelled. The comparisons with experimental results indicate that the model would benefit from an extension that calculates more precisely the internal solid fraction of the grains.

**Keywords :** Solidification, Structure, Segregation, Modelling, Alloy, Dendrite, Cellular Automaton, Finite Element