

Prédiction de la taille et de la composition des inclusions dans une poche d'acier liquide : étude numérique

Laurent Claudotte

▶ **To cite this version:**

Laurent Claudotte. Prédiction de la taille et de la composition des inclusions dans une poche d'acier liquide : étude numérique. Autre [cond-mat.other]. Université Henri Poincaré - Nancy 1, 2010. Français. NNT : 2010NAN10020 . tel-01748207

HAL Id: tel-01748207
https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748207

Submitted on 29 Mar 2018

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.

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Thèse

présentée en vue d'obtenir le titre de

Docteur de l'Université Henri Poincaré, Nancy-I

École doctorale : Énergie Mécanique et MAtériaux

Spécialité : Physique

par

Laurent CLAUDOTTE

Prédiction de la taille et de la composition des inclusions dans une poche d'acier liquide – *étude numérique*.

Soutenance publique prévue le 26 mars 2010

Membres du jury :

Rapporteurs :	M. Rodney O. FOX	Professeur, Iowa State University, Ames – USA
	M. Alain LINÉ	Professeur, INSA, Toulouse
Examinateurs :	M. Frédéric GRUY	Professeur, ENSMSE, Saint-Etienne
	Mlle. Marie SIMONNET	Docteur ingénieur-chercheur, ArcelorMittal, Maizières
	M. Nicolas RIMBERT	Maitre de conférences, ESSTIN, Nancy
	M. Benoit OESTERLÉ	Professeur, ESSTIN, Nancy
	M. Pascal GARDIN	Docteur ingénieur-chercheur, ArcelorMittal, Maizières

Laboratoire d'Énergétique et de Mécanique Théorique et Appliquée
UMR 7563 CNRS – INPL – UHP
ESSTIN – 54500 Vandœuvre-lès-Nancy

Remerciements

Mes remerciements vont tout d'abord à mes partenaires pédagogiques, industriels et administratifs. Ils m'ont permis de réaliser cette folle histoire scientifique, industrielle et tellement humaine. Sans le soutien de Benoit Oesterlé mon directeur de thèse et de Nicolas Rimbert mon co-directeur de thèse, cette thèse n'aurait pas eu lieu. Ils ont eu confiance en moi et en mes capacités innovatrices, scientifiques et relationnelles pour me proposer comme candidat à ce projet. Mon respect pour ces professeurs que j'avais en cours n'a fait que s'accroitre durant ces trois dernières années passées à leurs côtés.

Je remercie Pascal Gardin, grand instigateur de ce projet, de m'avoir transmis son regard critique sur les résultats et du temps qu'il m'accordait pour répondre à mes questions. Il a su me donner l'inspiration pour toujours valoriser notre travail quand les mots me manquer. Une dernière pensée pour lui rappeler notre petit détour pour voir la petite sirène.

Ma gratitude est aussi dirigée vers Marie Simonnet, ma tutrice industrielle et grande relectrice de mes rapports. Elle a toujours été d'une oreille attentive à mes différentes réflexions professionnelles et personnelles.

Que dire à Jean Lehmann sinon milles merci pour le temps passé à répondre à mes interrogations que ce soit sur la thermodynamique ou sur les logiciels CEQCSI puis MIPPHASOLACIDO. Sans son aide et celle de Nicolas Bontems, le couplage n'aurait jamais abouti d'une manière aussi efficace.

Je remercie également les rapporteurs de ce manuscrit Rodney O. Fox et Alain Liné ainsi que le président du jury Frédéric Gruy d'avoir lu mon mémoire et d'avoir fait spécialement le déplacement depuis les États-Unis, Toulouse et Saint-Etienne. Leurs commentaires et remarques me permettront d'améliorer encore ce mémoire.

Durant ces trois dernières années, j'ai eu la chance de faire la connaissance de nombreuses personnes. Je remercie en premier lieu mon chef de département Patrick Hug et mon chef de service Jean-Luc Borean ainsi que mes collègues du service PIM devenu THEMEF (Armand, Mahklouf, Thierry, Laurence, Marc, Alain, Jean-Pierre, Mohammed, Julien et enfin Valérie) mais aussi ceux du département PE (Marie-Claire, Évangeline, Claire, Soline, Magalie ou encore Mathieu, Pascal et Jean-Marc). Il y a aussi les « extérieurs » représentés par Geoffroy, Ségolène et Loic avec qui la belotte a fit son grand come-back dans ma vie. Mes remerciements sont aussi dirigés vers les personnes de mon laboratoire qui ont eu une grande place dans ma vie de doctorant (Marie-Luce, Anne, Nicolas, Benoit, Mohamed, Mickael, Amine, Patrice, Abdel, Salah, Daniel Malterre, Edith Lang, Christinne Sartori, Catherine Denis et récemment Clément, Noëlia et Irène Léonard). Nicolas, tu as été plus que mon tuteur et cette relation m'a permis de grandir intellectuellement, je t'en suis profondément reconnaissant.

Lorsque je repense à mes début de thèse, je pense tout de suite à la résidence. Manu, Fréd, Justine, Claire et Martin ont participé à mon quotidien des premiers instants. Malgré notre dispersion, nous avons conservé le contact et j'espère que nous le conserverons au-delà.

Le travail c'est la santé à ce qu'il parait mais l'entretien du corps est tout aussi important que celui de l'esprit d'équipe. C'est pourquoi, j'envoie un grand merci à toute l'équipe de volley : Pat,

Sam, Soph, David, Jean, Savine, Delphine, Jacques et ceux dont la présence comptait pour un demi. Encore une fois, la présence de Manu « La Résidence » fut primordiale pour que ce mélange ait lieu.

Merci à mes amis d'enfance (Jess, Brice, Célia, David, Céline, Olivier, Alexandra, Sabrina, …), aux amis retrouvés grâce à FB (Julie, Chrystel, Annelo, ..) et à mes potos d'école (Fabien et Vanessa, Audrey, Nono, Réré, Sébos, Wiwi et Charlie). Merci d'avoir été présent dans les meilleurs moments comme dans les moins bons, de votre écoute, des soirées très spéciales autour d'une bonne bière et du Irish trip. Vous avez toujours cru en moi et cette estime a fait la différence en de nombreuses occasions.

Je tiens à remercier ma famille de m'avoir soutenue durant toutes ces années universitaires. 9 ans ça fait long, vous avez même du croire que je deviendrai un Tanguy. Et pour cause, mes déplacements m'ont souvent permis de squatter les maisons familiales et de profiter des bons petits plats de ma mère, de ma grand-mère ou encore ceux de Chantal. Je remercie particulièrement mon père, ma mère, ma sœur et leurs conjoints d'avoir contribué à cette réussite ainsi que mes deux neveux Timothée et Louis pour leurs joies de vivre.

Enfin, je remercie les personnes qui ne se retrouvent pas dans ces lignes et qui pensent le mériter.

Je termine ces remerciements en dédicaçant ce mémoire à mes grands parents et à ma fille à venir. Ils représentent mon passé, mon présent et surtout mon futur. La fin de ce projet de thèse est le commencement de nouvelles aventures dans lesquelles je m'investirai encore une fois tout entier.

Table des matières

Nomenclature 9

Introduction générale 19
Bibliographie 29

Chapitre 1

Écoulement dans la poche d'acier liquide 33
1.1 La géométrie de la poche 33
1.2 Hydrodynamique de la poche 35
1.2.1 Modèles hydrodynamiques 35
1.2.2 L'écoulement turbulent et sa modélisation 37
1.2.3 La cascade d'énergie de la turbulence 38
1.2.4 Modélisation de la turbulence : de Boussinesq au *k*-*ε* réalisable 41
1.2.5 L'équation de transport des scalaires 44
1.2.6 Le traitement pariétal 45
1.3 Injection d'un gaz dans un milieu fluide 46
1.3.1 Hydrodynamique des bulles de gaz 46
1.3.2 Variation de masse volumique locale 48
1.3.3 Variation du diamètre des bulles – Loi de Mariotte 49
1.3.4 Panache de bulles d'argon 49
1.3.5 Énergie de brassage 50
1.4 Conclusions 50
Bibliographie 51

Chapitre 2

Production, évolution et extraction des précipités 54
2.1 Thermodynamique et cinétique de précipitation 54
2.1.1 Modèle de micro-mélange 55
2.1.2 Germination 57
2.1.3 Croissance cristalline 59
2.2 Collisions entre particules 60
2.2.1 Collision brownienne 61
2.2.2 Collisions laminaires et turbulentes 62
2.2.3 Collisions par séparation gravitaire 65
2.2.4 Efficacité de collision 66
2.2.5 Collision globale 67
2.3 Dimension fractale 68
2.4 Extraction des inclusions du bain d'acier 70
2.4.1 Extraction aux parois et au laitier 70
2.4.2 Extraction par les bulles 72
2.5 Conclusions 72
Bibliographie 73

Chapitre 3

Suivi de la population d'inclusions d'oxydes 76
3.1 Le bilan de population 76
3.2 Résolution de l'équation de bilan de population 77
3.2.1 Méthode des classes 78
3.2.2 Méthode standard des moments 80
3.2.3 Méthode de quadrature des moments 81
3.2.4 Méthode de quadrature directe des moments 82
3.3 Conclusions 85
Bibliographie 85

Chapitre 4

Description de l'outil numérique / Modèle Multi-QMOM 88
4.1 État de l'art : Fluent®/CEQCSI 88
4.2 Nouveau couplage : Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM 89
4.2.1 Formulation du modèle Multi-QMOM 89
4.2.2 Modèle de croissance 92
4.2.3 Modèle d'extraction 95
4.3 Validation du modèle Multi-QMOM 97
4.3.1 Validation du module de précipitation 97
4.3.2 Validation du module de la croissance par diffusion 100
4.3.3 Validation du module d'agrégation 102
4.3.4 Vérification du transport du vecteur de moments 104
4.4 Traitement des résultats de l'outil numérique 106
4.5 Conclusions 110
Bibliographie 111

Chapitre 5

Simulation de cas industriels 114
5.1 Expérience de Wakoh & Sano 115
5.1.1 Introduction 115
5.1.2 Ensemble des cas tests considérés 116
5.1.3 Résultats d'expérience 117
5.1.4 Transformation des distributions : de surface en volume 118
5.1.5 Simulations numériques 119
5.1.6 Résultats des simulations 121
5.1.7 Conclusions 127
5.2 Désoxydation de la poche par précipitation d'alumine 129
5.2.1 Introduction 129
5.2.2 Mise en place de la simulation 131
5.2.3 Tests préliminaires du module d'extraction 134
5.2.4 Simulation numérique de la désoxydation de la poche 135
5.2.5 Conclusions 140
5.3 Production simultanée d'alumine et de rutile 141
5.4 Production d'aluminate de titane 143
5.4.1 1er cas industriel : 15 s séparant l'injection entre Al et Ti 146
5.4.2 2nd cas industriel : 180 s séparant l'injection entre Al et Ti 150
5.4.3 Conclusions des simulations industrielles 152
5.5 Conclusions 153
Bibliographie 154

Conclusions générales et perspectives 156
Bibliographie 158

Annexe 1 : L'algorithme Produit-Différence 160

Annexe 2 : Constructions des diamètres 162

Annexe 3 : Construction du vecteur de moment 164

Annexe 4 : *AICHE Journal* 165

Annexe 5 : *Steel Research International* 202

Nomenclature

- ***Alphabet latin***

a_0	m	Distance interatomique
a_i		Activité de l'élément
a		Matrice regroupant les a_α et b_α utilisée dans DQMOM
A		Matrice utilisée dans DQMOM pour faire évoluer les poids et les abscisses
b_α	m	Largeur du panache de bulles de gaz
B	m^{-3}	Vitesse d'apparition des particules due à l'agglomération
C_D		Coefficient de trainée
C_{ij}		Nombre d'atomes j dans l'oxyde i
$C_i^{(i)}$	mol m^{-3}	Concentration de l'élément i à l'interface
$C_i^{(l)}$	mol m^{-3}	Concentration de l'élément i loin de l'interface
C_k		Terme correctif d'ordre k associé à DQMOM
C_L'		Coefficient de portance
d	m	Diamètre de la particule
d		Matrice regroupant les C_k et S_k utilisée dans DQMOM
d_0	m	Diamètre initial de la particule
d_{10}	m	Diamètre moyen arithmétique
d_{30}	m	Diamètre moyen volumique
d_{32}	m	Diamètre de Sauter
d_{43}	m	Diamètre de De Brouckere
D	m^{-3}	Vitesse de disparition des particules due à l'agglomération
D	m	Diamètre de la poche sidérurgique
D_f		Dimension fractale
D_i	$m^2\ s^{-1}$	Coefficient de diffusion de l'élément i

E		Constante empirique
f		Paramètre dépendant de la taille de la particule
$f_{u,i}$		Coefficient de réponse d'une particule i
F		Facteur correctif appliqué sur la vitesse de croissance en surface
F_i	kg m s^{-2}	Forces extérieures au fluide
$\mathbf{F}^*$		Vecteur de forces additionnelles au mouvement d'une particule dans un fluide
$\mathbf{F}_g$		Vecteur de la force de pesanteur
$\mathbf{F}_P$		Vecteur de la force de portance
g	m s^{-2}	Accélération gravitationnelle
$\mathbf{g}$		Vecteur de l'accélération gravitationnelle
G	m s^{-1}	Vitesse de croissance par diffusion
$h(\xi;t)$		Terme source
h_g		Coefficient multiplicateur utilisé dans le module de croissance Multi-QMOM
H	kg m^2 s^{-2}	Constante de Hamaker
H	m	Hauteur de la poche
H_0	m	Distance verticale entre l'injecteur et l'origine du panache
I		Force motrice de précipitation
J^*	m^{-3}	Taux de germination
k	m^2 s^{-2}	Énergie cinétique turbulente
k, l		Ordre des moments
k_B	m^2 kg s^{-2} K^{-1}	Constante de Boltzmann
k_i	s^{-1}	Coefficient de transfert de masse
k_v		Facteur de forme volumique
K_O	min^{-1}	Constante de temps de désoxydation
$K_{M_pO_q}$		Coefficient de solubilité de l'oxyde M_pO_q

l_0	m	Distance caractéristique
L	m	Taille caractéristique de la particule ou diamètre
L^*	m	Taille critique de germination
L_i, L_α	m	Abscisses associées aux méthodes de quadrature (QMOM ou DQMOM)
L_f	m	Échelle intégrale longitudinale
L_g	m	Échelle intégrale transversale
m_F	kg	Masse d'acier liquide
m_k	$m^k\ m^{-3}$	Moment d'ordre k en $\mathbf{x}$ à l'instant t
m_{kl}	$m^{k+l}\ m^{-3}$	Moment mixte d'ordre $k+l$ en $\mathbf{x}$ à l'instant t
m_v	kg	Masse ajoutée ou masse virtuelle
M_{amas}	kg	Masse moyenne de l'amas
M_p	$kg\ kmol^{-1}$	Masse molaire de la particule
$n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)$		Fonction densité en nombre
$n(L)$		Fonction densité en nombre écrite pour un diamètre
n_i		Nombre de particules de la classe i
N		Nombre de particules
N_l		Nombre de cellules du maillage
N_p		Nombre de précipités
N_q		Nombre de nœuds des méthodes de quadrature
N_s		Nombre de coordonnées internes
N_s		Nombre de sites de germination
$\mathcal{N}_a$		Nombre d'Avogadro
p		Coefficient stœchiométrique pour l'élément M
P	$kg\ s^{-2}\ m^{-1}$	Pression
P_{ij}		Matrice carrée utilisée pour l'algorithme Produit-Différence
P_S	$kg\ s^{-2}\ m^{-1}$	Pression ferrostatique

P_{ref}	kg s^{-2} m^{-1}	Pression de référence prise au niveau de l'injecteur
P_{atm}	kg s^{-2} m^{-1}	Pression de l'atmosphère au dessus de la poche
q		Coefficient stœchiométrique pour l'oxygène
Q_g	kg s^{-1}	Débit de gaz
$Q_{g,z}$	kg s^{-1}	Débit de gaz à la hauteur z
r	m	Distance horizontale entre un point et l'axe d'injection du gaz
R	m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}	Constante des gaz parfaits
R_c	m	Rayon de collision
s		Pente de la variation de la dimension fractale
S		Coefficient de sursaturation
S		Module du taux de cisaillement moyen
S_e	m^2	Surface d'échange
S_{ij}		Contraintes de cisaillement normales pour $i=j$ et croisées pour $i\neq j$
S_k		Terme source d'ordre k associé à DQMOM
S_s		Termes sources additionnels à l'équation de transport du scalaire s
r		Raison de la suite arithmétique ou géométrique
t	s	Temps
t_c	s	Temps caractéristique de la collision entre particules
t_r	s	Temps caractéristique de la restructuration de l'amas
t_0	s	Temps caractéristique
T	K	Température absolue
u	m s^{-1}	Vitesse
u_i	m s^{-1}	Vitesse moyenne du fluide dans la direction i
u_T	m s^{-1}	Vitesse terminale d'une particule
u_η	m s^{-1}	Échelle de vitesse des structures dissipatives de la turbulence

u'	m s^{-1}	Vitesse moyenne fluctuante du liquide
u^*	m s^{-1}	Vitesse de cisaillement du liquide
$\mathbf{u}_F$		Vecteur vitesse instantanée du liquide
$\mathbf{u}_p$		Vecteur vitesse instantanée d'une particule
v, V	m^3	Volume d'une sphère de diamètre d
v_x	m s^{-1}	Vitesse longitudinale
V_F	m s^{-1}	Vitesse du fluide
V_m	m^3 mol^{-1}	Volume molaire
V_R	m s^{-1}	Vitesse relative entre la particule (gaz ou solide) et le liquide
w_i, w_α	m^{-3}	Poids associés aux méthodes de quadrature (QMOM, DQMOM)
x	m	Coordonnée
$\mathbf{x}$		Vecteur de position
X_i		Fraction molaire de l'élément i
y	m	Distance normale à la paroi
Y		Fraction massique
z	m	Abscisse verticale et hauteur dans la poche
Z		Facteur de Zeldovitch

- ***Alphabet grec***

α		Taux de vide
α_m		Taux de vide sur l'axe d'injection
α_{ij}		Efficacité de collision entre deux éléments des classes i et j
β_{ij}	$m^3\ s^{-1}$	Vitesse de collision des éléments des classes i et j
β_n		Facteur de fréquence
$\dot{\gamma}$	$m\ s^{-2}$	Taux de cisaillement de l'écoulement
Γ_i		Facteur intervenant dans le facteur de fréquence β_n
Γ_s	$m^2\ s^{-1}$	Diffusion moléculaire d'une espèce dans le liquide
Γ_t	$m^2\ s^{-1}$	Diffusion turbulente d'une espèce dans le liquide
δ		Fonction Dirac
δ_{ij}		Symbole de Kronecker
ΔG	$kg\ m^2\ s^{-2}$	Énergie libre de Gibbs
ΔG^*	$kg\ m^2\ s^{-2}$	Énergie de précipitation
ΔG_v	$kg\ m^{-1}\ s^{-2}$	Énergie libre volumique
Δt	s	Pas de temps
ε	$m^2\ s^{-3}$	Taux de dissipation de l'énergie turbulente et énergie de brassage
ε_T	$W\ t^{-1}$	Énergie totale de brassage de la poche
η	m	Échelle de Kolmogorov dissipatrice de l'énergie turbulente
κ		Constante de von Karman
λ_B	m	Échelle spatiale de micro-mélange de Batchelor
λ_f	m	Micro-échelle de Taylor longitudinale
λ_g	m	Micro-échelle de Taylor transversale
μ	$kg\ s^{-1}\ m^{-1}$	Viscosité dynamique du fluide
μ_t	$kg\ s^{-1}\ m^{-1}$	Viscosité dynamique turbulente du fluide

ν	$m^2\ s^{-1}$	Viscosité cinématique du fluide
ν_t	$m^2\ s^{-1}$	Viscosité cinématique turbulente du fluide
ξ		Vecteur propriété
ρ_F	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique du liquide
ρ_p	$kg\ m^{-3}$	Masse volumique des particules
ζ		Flux d'une coordonnée interne
σ	$kg\ s^{-2}$	Tension de surface
σ'_{ij}		Tenseur des contraintes de Reynolds
σ_{L^*}		Écart type de la fonction gaussienne
τ		Rapport entre deux temps caractéristiques
τ_{ij}		Contraintes de Reynolds
τ_{L_f}	s	Échelle temporelle intégrale longitudinale
τ_p	s	Temps de relaxation d'une particule
τ_w	$kg\ s^{-2}\ m$	Taux de cisaillement à la paroi
τ_{λ_f}	s	Échelle temporelle de Taylor longitudinale
τ_η	s	Échelle temporelle des structures dissipatives de la turbulence
ϕ_s		Scalaire transporté par le fluide
ϕ_v		Fraction volumique
Φ_i		Flux de matière par déposition surfacique

- ***Nombres sans dimension***

Eo, Bo	Nombre d'Eötvös équivalent au nombre de Bond
Fr	Nombre de Froude
Ga	Nombre de Galilée
Re	Nombre de Reynolds
Re_p	Nombre de Reynolds particulaire
Re_λ	Nombre de Reynolds basé sur l'échelle de Taylor
Sc	Nombre de Schmidt
Sh	Nombre de Sherwood
St	Nombre de Strouhal

- ***Oxydes***

Al_2O_3	Alumine
$AlTiO_x$	Nom générique des oxydes mixtes d'aluminium et de titane
Al_2TiO_5	Aluminate de titane (Al_2O_3- TiO_2)
SiO_2	Oxyde de silicium
TiO_2	Oxyde de titane ou rutile

- ***Abréviations***

CM / DPB	Méthode des classes
CFD	Outil numérique de mécanique des fluides
CEQCSI	Logiciel thermodynamique qui calcule l'état final d'équilibre chimique
DQMOM	Méthode directe de quadrature des moments
DNS	Direct Numerical Simulation
LES	Large Eddy Simulation
MIPPHASOLACIDO	Logiciel CEQCSI avec un modèle de cinétique de précipitation
Multi-QMOM	Nouvelle méthode de suivi de la PBE développée pour ce projet
PB	Bilan de population
PBE	Équation de bilan de population
PSD	Distribution en taille de particules
QMOM	Méthode de quadrature des moments
RANS	Reynolds Averaged Navier-Stokes
SMM	Méthode standard des moments
UDF	Routines informatiques codées en C pour Fluent®

Introduction générale

« **Il n'est de bon procédé qu'autant qu'il demeure efficace.** »

Emmanuel-Louis Grüner (1809-1883) géologue et sidérurgiste, traité sur la métallurgie (1878).

La production d'acier fut longtemps artisanale. Réservé à une élite, l'acier permettait de réaliser armes, armures ou objets d'arts. Sa production en masse est assez récente comparée aux plus anciens objets trouvés en Chine datant du troisième siècle avant JC dans la région de Hebei.

L'apparition de nouveaux procédés sidérurgiques, durant le XIXème siècle permet son amélioration : conversion directe de la fonte dans les convertisseurs Bessemer (1856), déphosphoration de la fonte par le procédé Thomas-Gillchrist (1877) ou encore augmentation du chauffage permettant la réutilisation de déchets fonte-riblons ou ferrailles dans les fours Martin-Siemens (1856) [3].

Ces dernières années, les quantités d'acier produites ont explosé. Cette croissance est intervenue avec le début d'une nouvelle révolution industrielle en Asie. En 2008, la Chine a produit à elle seule 485,5 millions de tonnes d'acier sur les 1 228,8 mondiales (Figures 1 et 2). Ainsi, 8 entreprises sur les 10 plus grosses mondiales productrices d'acier sont basées en Asie (Tableau 1).

2008		2007			
Rang	Mt	Rang	Mt	Compagnies	Localités
1	103.3	1	116.4	ArcelorMittal	
2	37.5	2	35.7	Nippon Steel	Japon
3	35.4	5	28.6	Baosteel Group	Chine
4	34.7	4	31.1	POSCO	Corée du Sud
5	33.3	NA	31.1	Hebei Steel Group	Chine
6	33.0	3	34.0	JFE	Japon
7	27.7	11	20.2	Wuhan Steel Group	Chine
8	24.4	6	26.5	Tata Steel	Inde
9	23.3	8	22.9	Jiangsu Shagang Group	Chine
10	23.2	10	21.5	U.S. Steel	Etats-Unis

Tableau 1 : Production d'acier des 10 plus grosses entreprises mondiales pour l'année 2008 avec comparaison de l'année 2007. Quantités d'acier exprimées en millions de tonnes (source IISI)

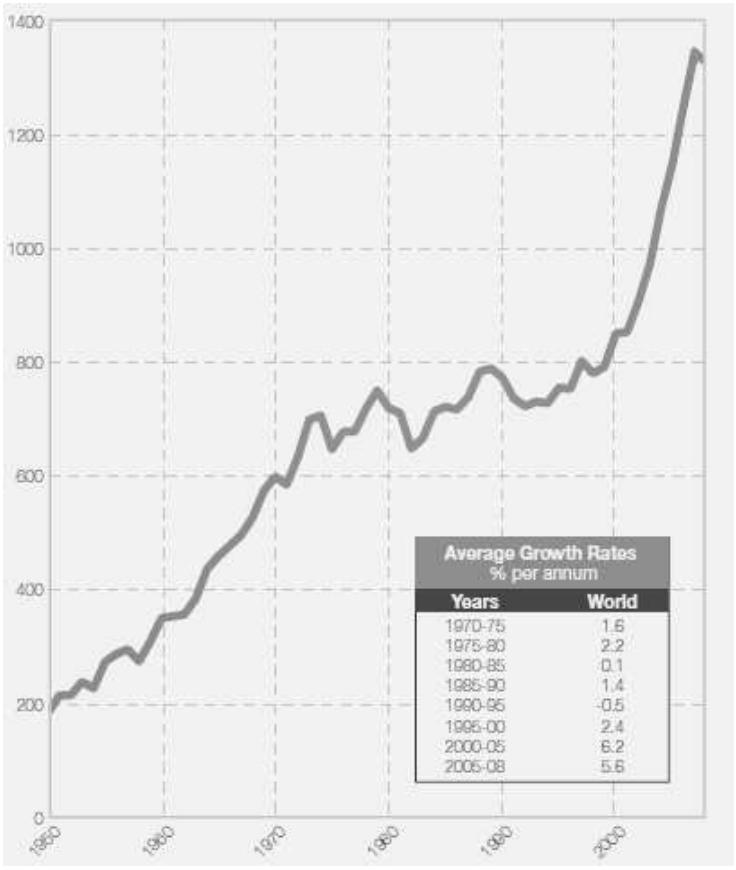


Figure 1 : Production mondiale d'acier en millions de tonnes (source IISI).

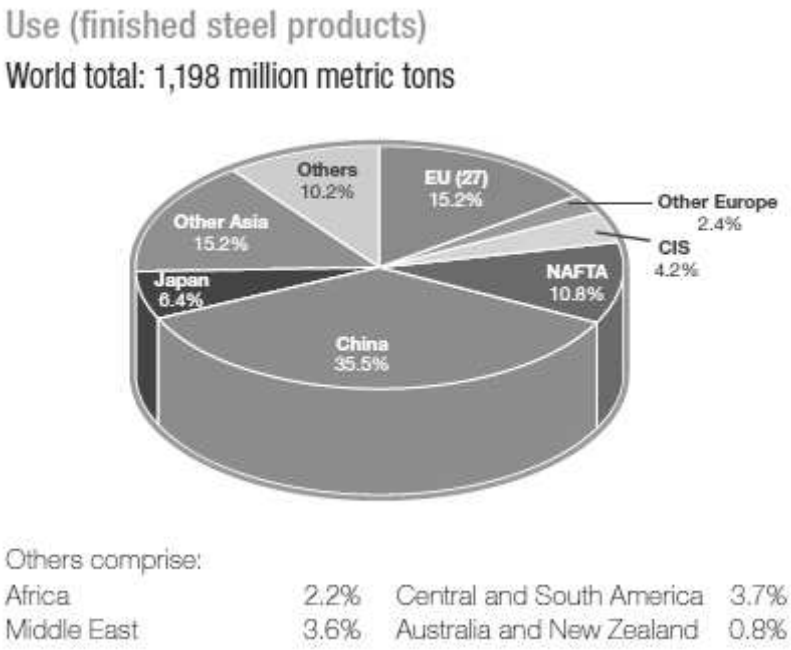


Figure 2 : Répartition de l'utilisation de l'acier fini par région géographique en 2008 (source IISI).

L'acier prend une grande place dans nos sociétés et sa présence se retrouve dans de nombreux domaines (Tableau 2).

Construction de bâtiments	44 %
Construction de machines et appareils	22 %
Automobiles	19 %
Transport de pétrole et gaz	5 %
Emballages	4 %
Construction navale	3 %
Rails	2 %

Tableau 2 : Utilisation de l'acier dans la zone de l'OCDE en 2007 (Source ArcelorMittal).

Il existe cependant une grande différence entre l'acier utilisé pour le bâtiment et celui développé pour l'automobile. Ces deux types d'aciers n'ont pas les mêmes propriétés physiques (allongement à la rupture, conductivité thermique, résilience ou encore ténacité), ni la même composition en éléments. Ce que l'on nomme « acier » est en réalité un mélange binaire de fer et de carbone pouvant contenir des impuretés présentes dans les ingrédients de haut fourneau, des éléments d'addition introduits pour obtenir la composition chimique et des éléments d'accompagnement ajoutés pour contrôler les réactions chimiques. Son taux en carbone permet de le classer en trois familles :

- *fer industriel* (C < 0,050%),
- *acier* (0,050% < C < 2,0%),
- *fonte* (2,0% < C < 6,67%).

La valeur de 6,67% correspond à la limite de solubilité du carbone dans le fer (Figure 3).

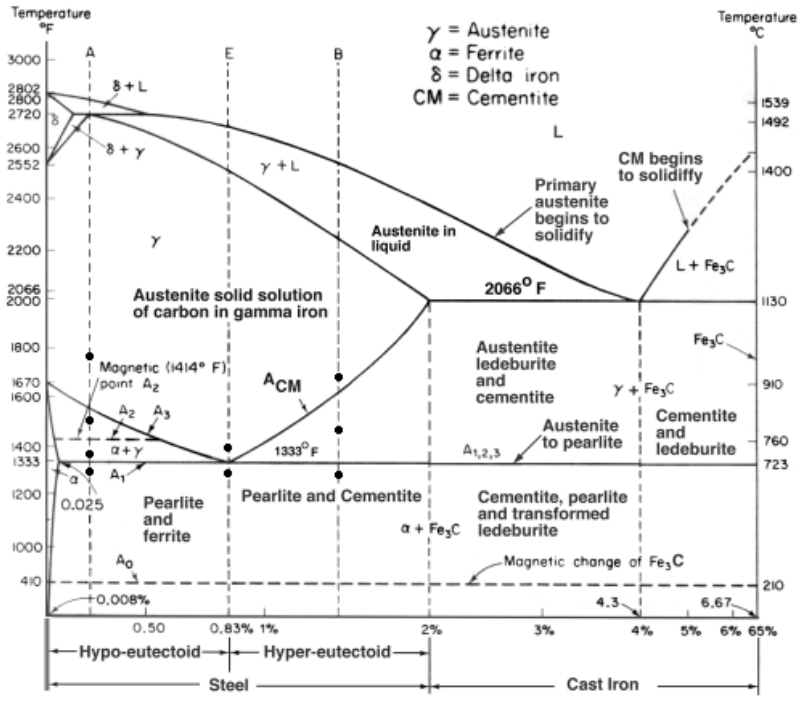


Figure 3 : Diagramme de phase Fer-Carbone.

Produire de l'acier plat fait intervenir de nombreuses opérations (Figure 4) :

- métallurgie primaire :
  - la coke et le minerai de fer sont introduits en haut du haut fourneau et il en sort la fonte,
  - la fonte est ensuite envoyée dans le convertisseur où elle est désulfurée puis décarburé,
  - le métal liquide est introduit dans une poche où il est désoxydé (Figure 5),
- métallurgie secondaire :
  - les éléments d'addition et d'accompagnement sont introduits dans la poche transformant le métal liquide en acier,
  - l'acier est envoyé dans un répartiteur où il s'écoule dans un équipement de coulée continue qui forme des brames,
  - ces brames sont réchauffées puis laminées à chaud,
  - l'acier est laminé à chaud.

Les bobines sont ensuite emmenées au laminage à froid où l'épaisseur de la tôle est réduite à quelques millimètres voir en dessous. Finalement, les surfaces sont protégées d'une future oxydation par galvanisation (déposition de zinc).

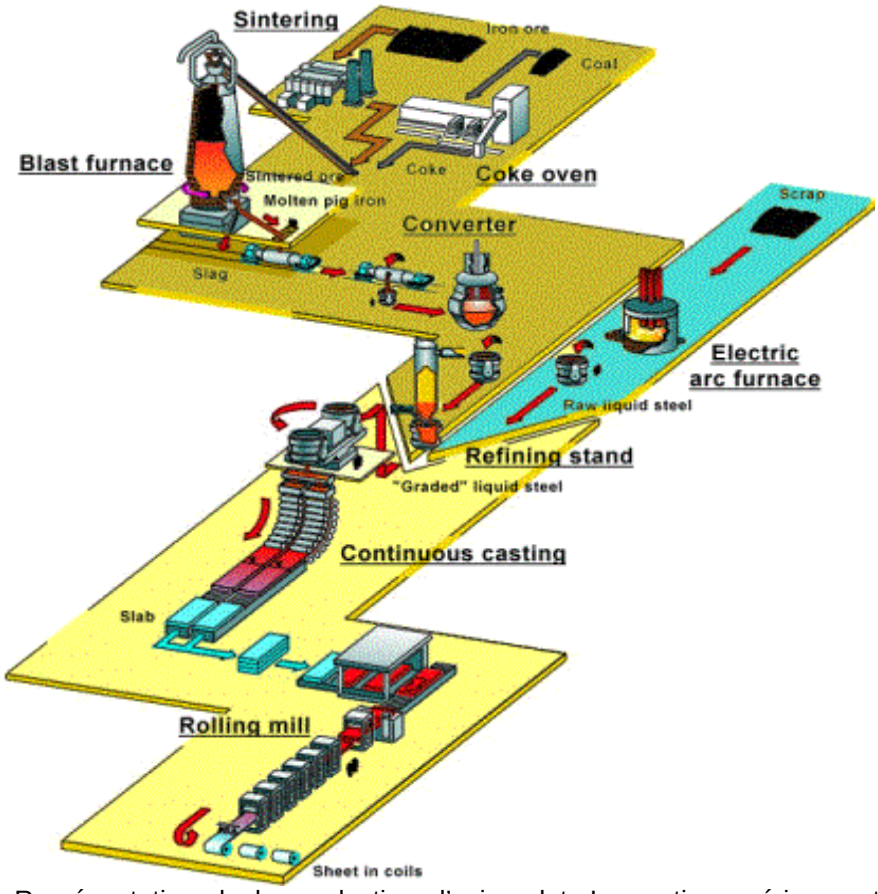


Figure 4 : Représentation de la production d'acier plat. La partie supérieure et inférieure représente respectivement la métallurgie primaire et secondaire. La zone de désoxydation et de mise à nuance se situe à l'intersection de ses deux domaines. La partie de droite correspond quant à elle au retraitement de l'acier.



Figure 5 : La fonte est purifiée de son carbone par injection d'oxygène dans le convertisseur. Le métal liquide est ensuite versé dans la poche puis transporté dans le stand où il sera désoxydé par précipitation d'oxydes et où la composition chimique de l'acier sera fixée.

La décarburation de la fonte (Figure 6).est réalisée par injection d'oxygène qui s'associera au carbone pour former des gaz de monoxyde et de dioxyde de carbone. Cependant, la quantité d'oxygène insufflée doit être supérieure à la quantité nécessaire pour obtenir des aciers bas carbone. L'oxygène superflu se dissout alors dans le fer liquide. Si cet oxygène n'est pas extrait, il se concentre durant le refroidissement des brames et forme ce qu'on appelle des soufflures (Figure 7).

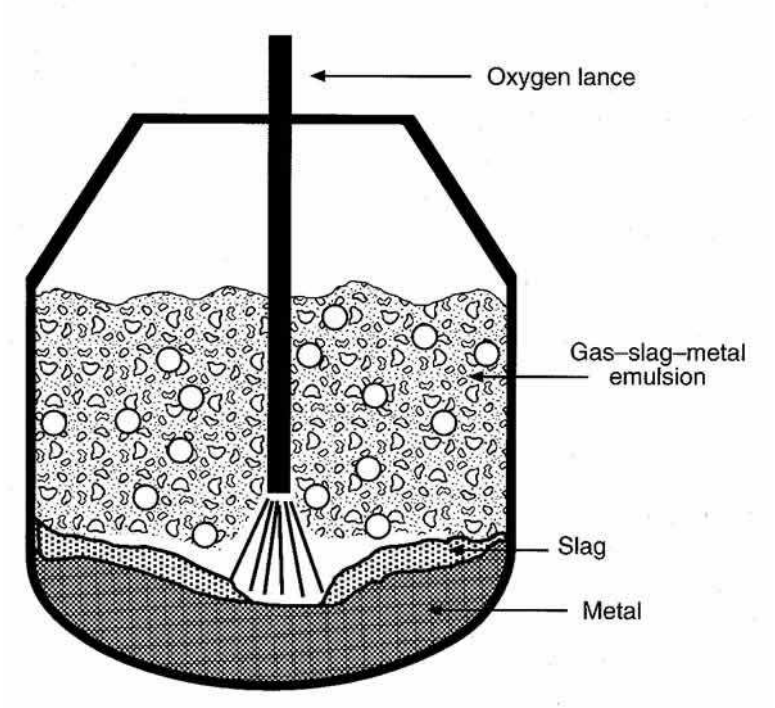


Figure 6 : Schéma représentant l'injection d'oxygène à travers une lance dans le convertisseur. La décarburation se réalise principalement dans l'émulsion comprenant gaz, laitier et métal.



Figure 7 : Soufflures dans les tôles d'aciers provoquées par la présence de gaz lors de la solidification.

Pour éviter ces soufflures, l'oxygène doit être à son tour éliminé avant la mise à nuance. La réalisation de ces deux étapes (désoxydation et mise à nuance) se fait par addition d'éléments dans la poche d'acier liquide (Figures 8). Pour une élimination efficace de l'oxygène à faible coût, l'aluminium est souvent utilisé. Les oxydes d'aluminium ou alumine produisent néanmoins des inclusions solides qui en s'agglomérant forment des amas sphériques ou de formes plus complexes (Figures 9 et 10). Ces précipités dont la taille se situe entre le micromètre et la centaine de micromètre (Figures 11) doivent être éliminés. Ils peuvent en effet obstruer les buses reliant le répartiteur à la coulée continue mais aussi produire des défauts mécaniques lors de l'emboutissage de la tôle ou des défauts de surface se révélant après la mise en peinture.

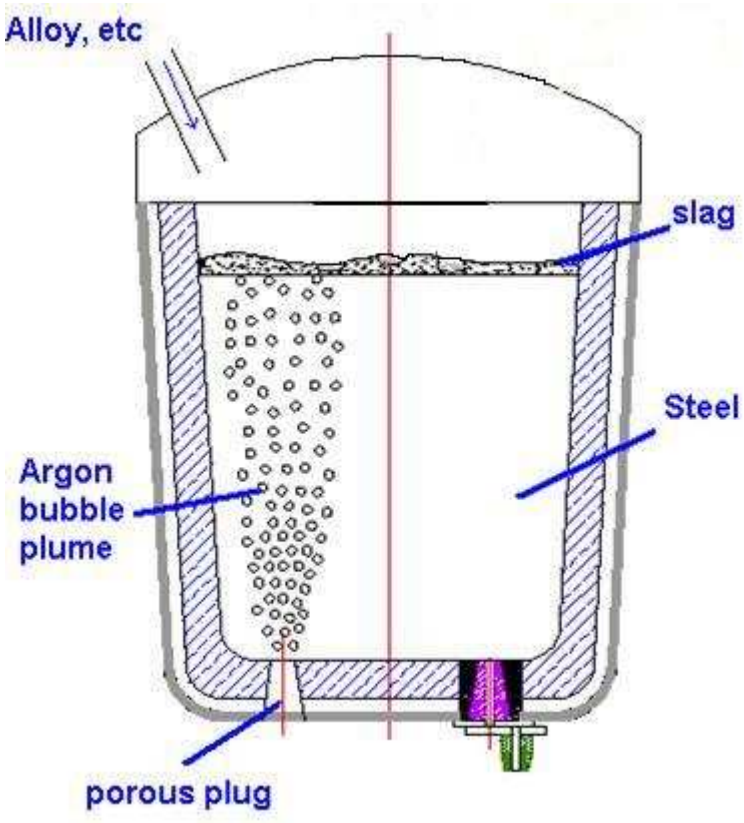


Figure 8 : Schéma représentant une poche sidérurgique simplifiée contenant de l'acier liquide dans laquelle de l'argon est injecté à travers un bouchon poreux. L'acier liquide peut être surmonté d'un laitier. Les éléments d'addition et d'accompagnement sont introduits par le haut.

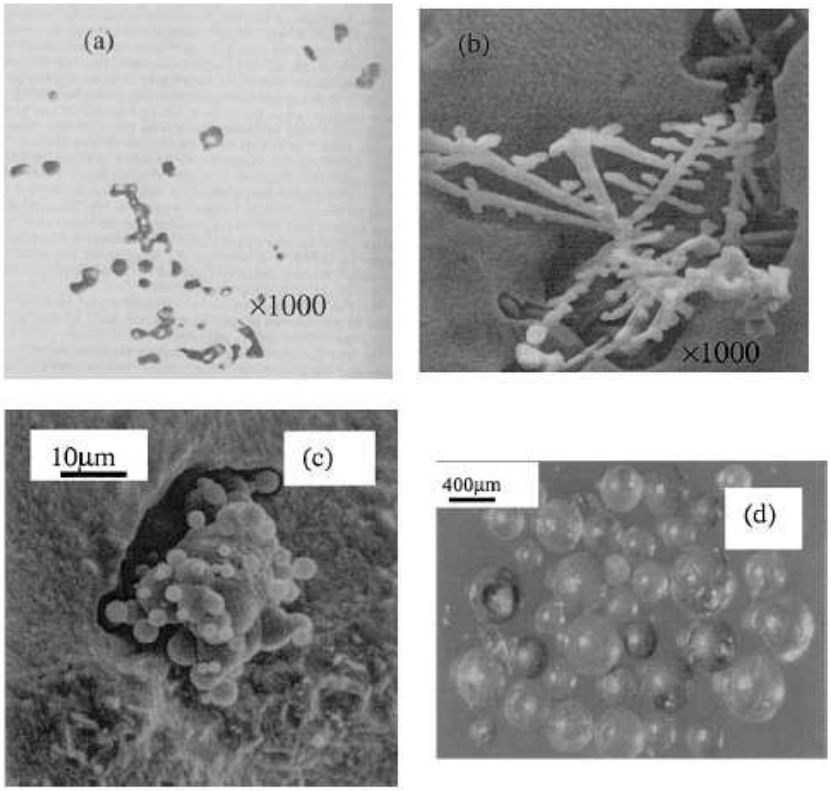


Figure 9 : Morphologies typiques d'inclusions d'alumines. Zhang *et al.* [29] ont remarqué que les formes dendritiques apparaissent dans des zones de fortes concentrations en oxygène (a,b,c) et lorsque ces inclusions fondent, elles reprennent une forme sphérique que l'on retrouve notamment dans le laitier (d).

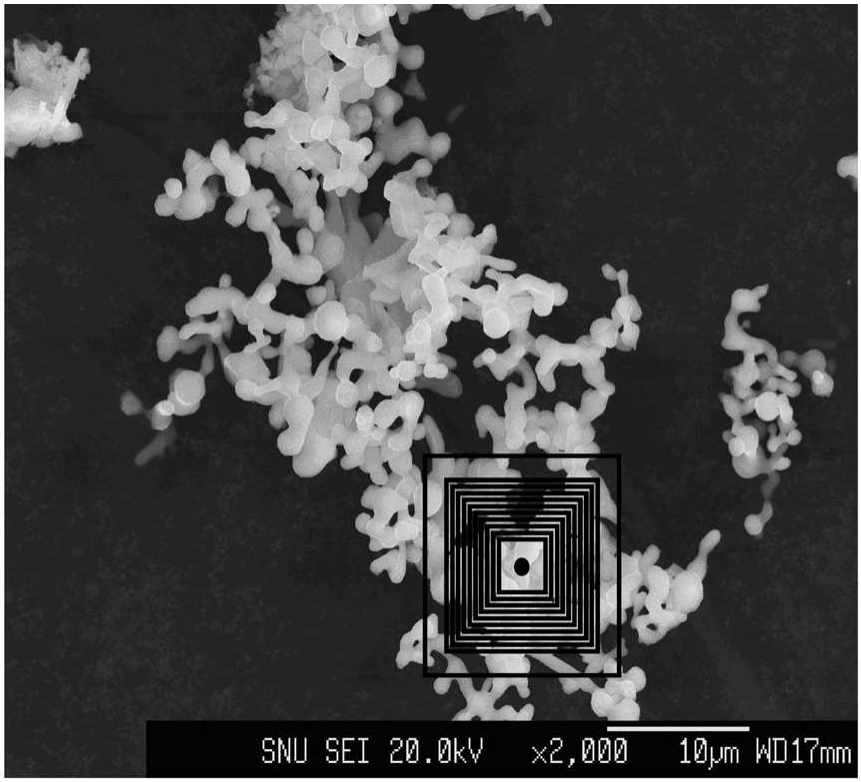


Figure 10 : Image au microscope électronique à balayage d'amas d'alumine [7].

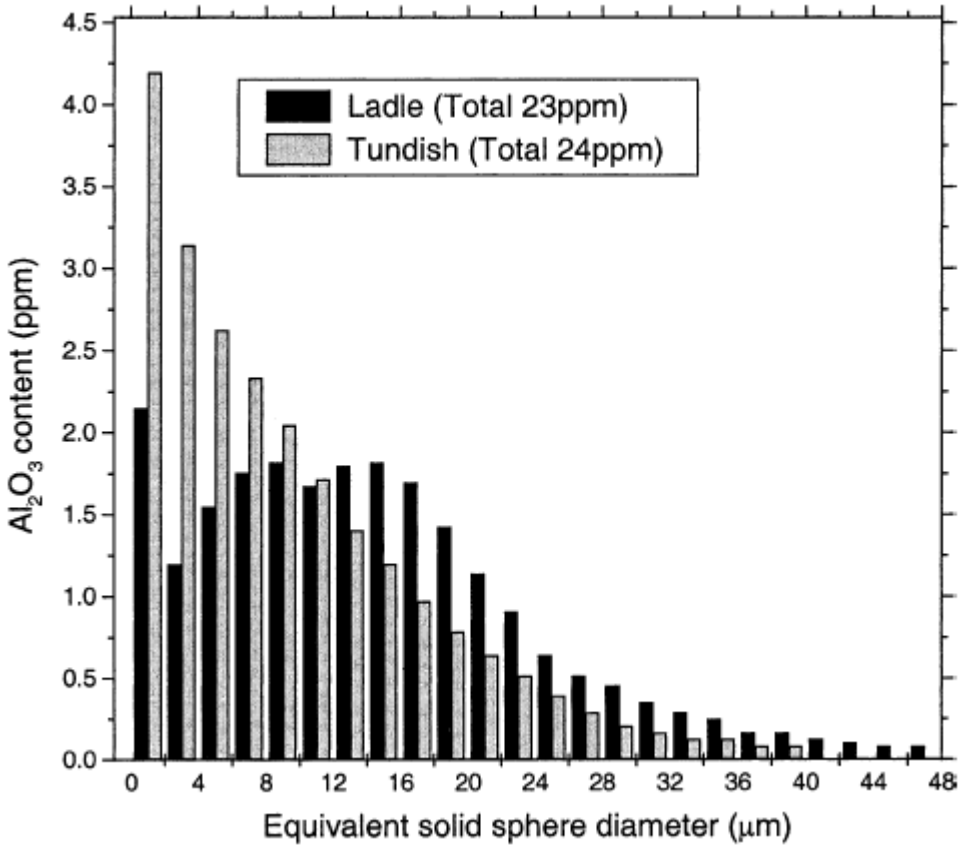


Figure 11 : Distributions classiques en taille des inclusions d'alumine dans la poche et le répartiteur [29].

Ces inclusions d'alumine ne sont pas les seuls précipités à être néfastes pour l'acier. Durant les traitements en poche, il arrive que des inclusions nocives apparaissent suite à une réaction chimique non souhaitée (oxydes mixtes d'aluminium et de titane) ou encore des impuretés provenant de l'usure des briques réfractaires.

L'opacité de l'acier liquide à la lumière visible et une température de fonctionnement élevée (1600°C) rendent difficile l'observation des écoule ments et des précipités ainsi que les prises d'échantillons. L'utilisation d'outils numériques est alors requise pour « voir » ce qui se passe à l'intérieur du bain d'acier liquide et accéder à certaines informations comme la taille du panache de bulles de gaz ou encore la distribution en taille et en composition des inclusions.

L'orientation vers le numérique est d'autant plus réaliste depuis l'émergence d'outils numériques toujours plus performants (Fluent® [8], MIPPHASOLACIDO [14-15]) sur des machines multi-processeurs, multi-cores qui reproduisent avec beaucoup d'efficacité par exemple l'écoulement d'une poche d'eau brassée par injection de bulles d'argon [9,11].

Depuis maintenant une vingtaine d'années, des études expérimentales et numériques sont réalisées pour mieux comprendre et améliorer les procédés de fabrication de l'acier. Ces avancées, regroupées dans des recueils scientifiques [13,20], ont permis de produire des aciers de meilleure qualité dans de nouvelles gammes toujours plus innovantes (acier au manganèse).

Pour améliorer encore la qualité et maîtriser la production des futurs aciers, nous avons choisi d'étudier en particulier les procédés de désoxydation et de mise à nuance. Ce sont les deux

procédés les plus favorables à la production d'inclusions nocives. La présente thèse, « Prédiction de la taille et de la composition des inclusions dans une poche d'acier liquide – Étude numérique », doit permettre notamment de trouver d'une manière numérique les paramètres sur lesquels les aciéristes pourront s'appuyer pour réduire voire éliminer les inclusions nocives.

Pour ce travail, nous pourrons nous appuyer sur de nombreux autres articles traitant d'une manière expérimentale ou numérique du problème de précipitation et d'élimination des inclusions dans une poche sidérurgique (1, 10, 12, 17-19, 23-29), mais aussi sur des articles discutant de problèmes similaires au nôtre (floculation [4-6], réacteur à pales [16,21], réacteur de silicium [2], précipitation oxalique [22]).

La première partie du mémoire, « Modélisation », se concentre sur la physique des phénomènes se déroulant durant la désoxydation et la mise à nuance. Elle est divisée en quatre chapitres. Le premier chapitre explique la turbulence lors de la mise en mouvement de l'acier liquide par injection de bulles d'argon. Après l'étude de l'écoulement dans la poche, le chapitre 2 traite de la thermodynamique qui régit la précipitation des différents oxydes et leur croissance en surface. Les phénomènes d'agrégation et d'extraction terminent ce chapitre. Les différentes méthodes de suivi en taille de la population inclusionnaire sont ensuite expliquées en chapitre 3. Enfin, le chapitre 4 présente le cœur de ce mémoire, c'est-à-dire, la solution choisie pour répondre à la problématique de suivi des différentes distributions en taille et en composition des précipités.

La seconde partie du mémoire « Simulations », est constitué d'un unique chapitre consacré à l'étude de cas expérimentaux et industriels. Nous utiliserons le nouvel outil numérique pour simuler une expérience de précipitation d'alumine contrôlée puis la désoxydation d'une poche sidérurgique et finir sur un cas industriel de précipitation multiple d'oxydes à partir d'aluminium et de titane. Cette dernière simulation doit permettre notamment de vérifier la présence ou non des inclusions nocives d'aluminates de titane suivant le moment d'injection du titane.

Une conclusion viendra clore ce mémoire où les principaux résultats obtenus par les simulations numériques seront rappelés. Nous développerons enfin les perspectives d'amélioration et d'utilisation de ce nouvel outil pour une future utilisation industrielle

Bibliographie

[1]: Aoki J., Zhang L., Thomas B.G., (2005), "Modeling of inclusion removal in ladle refining", Internal report of Illinois University at Urbana-Champaign.

[2]:Ashrafian A., Johansen S.T., Gaal S., Andresen B., (2008), "A reactor model for ladle refining of silicon metal", *6th International Conference on CFD in Oil &Gas, Metallurgical and Process Industries*, SINTEF/NTNU, Trondheim, Norway, 10-12 June.

[3]: Béranger G., Henry G., Sanz G., (1994), "*The book of the steel*", Lavoisier Publishing, Paris.

[4]: Bouyer D., Liné A., Cockx A., Do-Quang Z., (2001), "Experimental analysis of floc size distribution and hydrodynamics in a jar-test", *Transactions of Institution of Chemical Engineers*, **79**(A), pp. 1017-1023.

[5]: Bouyer D., Liné A., Do-Quang Z., (2004), "Experimental analysis of floc size distribution undder different hydrodynamics in a mixing tank", *AIChE Journal*, **50**(9), pp. 2064-2081.

[6]: Bouyer D., Coufort C., Liné A., Do-Quang Z., (2005), "Experimental analysis of floc size distributions in a 1-L jar under different hydrodynamics and physicochemical conditions", *Journal of Colloid and Interface Science*, **292**, pp. 413-428.

[7]: Doo W.C., Kim D.Y., Kang S.C., Yi K.Y., (2007), "Measurement of the 2-dimensional fractal dimensions of alumina clusters formed in an ultra low carbon steel melt during RH process",*ISIJ International*, **47**(7), pp. 1070-1072.

[8]: Fluent 6.3 user guide, (2006), Fluent Inc., Lebanon, NH, USA.

[9]: Goldschmit M.B., Coppola Owen A.H., (2001), "Numerical modeling of gas stirred ladles", *Ironmaking and Steelmaking*, **28**(4), pp. 337-341.

[10]: Grahams K.J., Irons G.A., (2009), "The behavior of non-metallic inclusions during ladle refining", *Proceedings of AISTech Conference, St. Louis, Mo., USA, 4-7 May*.

[11]: Johansen S.T., Boysan F., (1988), "Fluid dynamics in bubble stirred ladles: Part II. Mathematical Modeling", *Metallurgical and Transactions B*, **19B**, pp. 755-764.

[12]: Kwon Y.J, Zhang J., Lee H.G., (2008), "A CFD-based nucleation-growth-removal model for inclusion behavior in a gas-agitated ladle during molten steel deoxidation", *ISIJ International*, **48**(7), pp. 891-900.

[13]: Lange K., (1988), "Thermodynamic and kinetic aspects of secondary steelmaking processes", *International Materials Reviews*, **33**(2), pp. 53-89.

[14]: Lehmann J., Rocabois P., Gaye H., (2001), "Kinetic model of non metallic inclusions precipitation during steel solidification", *Journal of Non-Crystalline Solids*, **282**, pp. 61-71.

[15]: Lehmann J., Rocabois P., Gaye H., (2002), "Modèle cinétique de germination-croissance des inclusions non métalliques lors de la solidification de l'acier", *Rapport interne Arcelor*, PC&S/02/R/040/ TPP.

[16]: Marchisio D.L., Fox R.O., Barresi A.A., Garbero M., Baldi G., (2001), "On the simulation of turbulent precipitation in a tubualr reactor via computational fluid dynamics (CFD)", *Transactions of Institution of Chemical Engineers*, **79**(A), pp. 998-1004.

[17]: Matsuura H., Wang C., Wen G., Sridhar S., (2007), "The transient stages of inclusion evolution during Al and/or Ti additions to molten iron", *ISIJ International*, **47**(9), pp. 1265-1274.

[18]: Miki Y., Thomas B.G., (1999), "Modeling of inclusion removal in a tundish", *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, pp. 639-654.

[19]: Nakanishi K., Szekely J., (1975), "Deoxidation kinetics in a turbulent flow field", *Transactions ISIJ*, **15**, pp. 522-530.

[20]: Ogawa K., (1992), "Recent progress in steelmaking technology for high purity steel", *Nishiyama Memorial Seminar* 143/144 *for the Iron and Steel Institute of Japan*, pp. 137-166.

[21]: Pettiti M., Nasuti A., Marchisio D.L., Vanni M., Baldi G., Mancini N., Podenzani F., (2008), "CFD modelling coupled to population balance to describe bubble size distribution in agitated vessels and bubble columns", *6th International Conference on CFD in Oil &Gas, Metallurgical and Process Industries*, SINTEF/NTNU, Trondheim, Norway, 10-12 June.

[22]: Sommer de Gélicourt Y., (2004), "Précipitation turbulente d'oxalate d'uranium en réacteur vortex – Étude expérimentale et modélisation", *Thèse INPL*, ENSIC, CEA Valrhô.

[23]: Suito H., Ohta H., (2006), "Characteristics of particle size distribution in early stage of deoxidation", *ISIJ International*, **46**(1), pp. 33-41.

[24]: Wakoh M., Sano N., (2007), "Behavior of alumina inclusions just after deoxidation", *ISIJ International*, **47**, pp. 627-632.

[25]: Wang L.T., Zhang Q.Y., Peng S.H., Li Z.B., (2005), "Mathematical model for growth and removal of inclusion in a multi-tuyere ladle gas-stirring", *ISIJ International*, **45**(3), pp. 331-337.

[26]: Wasai K., Mukai K., (1999), "Thermodynamics of nucleation and supersaturation for the aluminum-deoxidation reaction in liquid iron", *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, pp. 1065-1074.

[27]: Wasai K., Mukai K., (2002), "Thermodynamics analysis on metastable alumina formation in aluminum deoxideized iron based on Ostwald's step rule and classical homogeneous nucleation theories", *ISIJ International*, **42**(5), pp. 467-473.

[28]: Zhang J., Lee H.G., (2004), "Numerical modeling of nucleation and growth of inclusions in molten steel based on mean processing parameters", *ISIJ International*, **44**(10), pp. 1629-1638.

[29]: Zhang L., Thomas B.G., (2003), "State of the art in evaluation and control of steel cleanliness", *ISIJ International*, **43**, pp. 271-291.

« Modélisation »

Chapitre 1

Écoulement dans la poche d'acier liquide

A la fin de la métallurgie primaire, la poche d'acier liquide est brassée par injection de bulles d'argon ou par force électromagnétique (non étudiée ici). Ce brassage a pour conséquence d'homogénéiser la composition chimique et d'accélérer les réactions chimiques et l'extraction des inclusions non-métalliques.

Les phénomènes physiques produisant l'écoulement dans l'acier liquide (T = 1600℃) ainsi que les méthodes numériques pour les simuler seront étudiés dans ce chapitre. Ils sont liés à l'interaction entre le milieu fluide et les bulles de gaz mais aussi entre le milieu fluide et les parois.

1.1 La géométrie de la poche

Le réacteur utilisé pour la désoxydation et la mise à nuance de l'acier est un cylindre tapissé de briques réfractaires. Il a subi de nombreuses améliorations depuis les années 50 mais son principe d'utilisation reste identique.

Des électrodes introduites dans le liquide permettent son réchauffage tandis que du gaz ou un champ d'induction électromagnétique réalise son brassage. Un laitier d'aciérie (*i.e.* initialement sous forme de poudre, composé essentiellement d'oxydes) vient le couvrir en surface pour le protéger de l'oxygène et d'une perte de chaleur. Il est aussi utilisé pour la capture des inclusions et pour réaliser un équilibre chimique (*e.g.* désulfuration, déphosphoration). La poche est parfois recouverte d'un capot où un vide partiel est réalisé. Cette opération permet de diminuer la présence d'oxygène, les pertes de chaleur mais aussi d'améliorer le brassage. Enfin, des éléments d'addition sont introduits en surface soit sous forme de petites pièces (*e.g.* sphériques ou pyramidales), soit sous forme de fils gainés.

Ces informations peuvent être retrouvées sur la figure suivante (*cf.* Figure 1.1) et ne sont bien évidemment pas exhaustives.

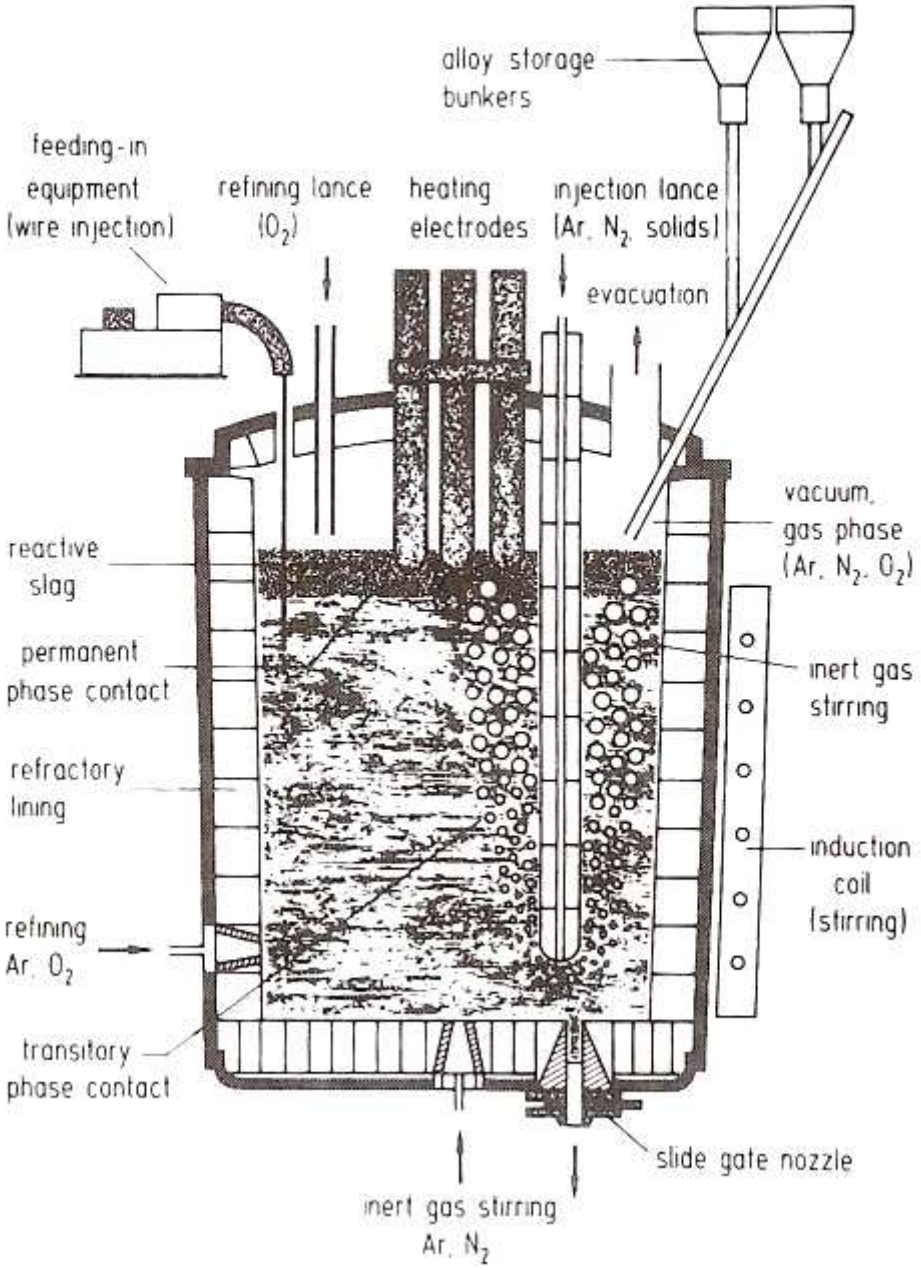


Figure 1.1 : Schéma d'une poche regroupant un certain nombre de dispositifs d'actions pouvant être appliqués sur l'acier liquide durant de sa transformation de fonte en acier fini [14].

1.2 Hydrodynamique de la poche

Dans le cas d'un brassage par injection d'argon, l'hydrodynamique de la poche est réalisée par transfert d'énergie cinétique des bulles vers le liquide. Initialement au repos, le fluide va se mettre progressivement en rotation verticale. Les bulles atteignent la surface puis s'échappent du milieu liquide en traversant l'interface acier liquide-laitier et laitier-atmosphère. Certains paramètres comme la dimension de la poche, le débit d'argon, le diamètre du bouchon poreux ou sa position dans la poche vont permettre de calculer d'une manière empirique l'énergie de brassage. Cette dernière donnée permet d'estimer le temps de traitement de la poche pour sa désoxydation et sa mise à nuance. Mais depuis l'apparition de l'ère informatique, il est devenu possible de simuler de nombreux phénomènes en résolvant les équations mathématiques qui découlent de la physique.

1.2.1 Modèles hydrodynamiques

D'une manière générale, l'acier liquide à 1600°C est considéré comme un fluide incompressible et newtonien. Les équations de Navier-Stokes gouvernant de tels écoulements hydrodynamiques sont utilisées. En coordonnées cartésiennes et pour un écoulement tridimensionnel incompressible, ces équations prennent la forme suivante avec la convention d'Einstein de sommation des indices répétés :

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \tag{1.1}$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho_F}\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{1}{\rho_F}\frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} + F_i \tag{1.2}$$

$$\frac{\partial \phi_s}{\partial t} + u_j \frac{\partial \phi_s}{\partial x_j} = \Gamma_s \nabla^2 \phi_s + S_s(\phi) \tag{1.3}$$

où F_i représente les forces de volumes (*e.g.* gravitation, poussée d'Archimède ou de portance du train de bulles qui sont considérées comme une phase dispersée calculée indépendamment), p et ρ sont respectivement la pression et la masse volumique du milieu continu, ϕ_s est un scalaire chimique transporté par le fluide, Γ_s est le coefficient de diffusion moléculaire, $S_s(\phi)$ est un terme source réactionnel et τ_{ij} est le tenseur des contraintes visqueuses ayant la forme suivante :

$$\tau_{ij} = \mu\left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i}\right) \text{ et } \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} = \mu\left(\frac{\partial^2 u_i}{\partial x_i^2} + \frac{\partial^2 u_j}{\partial x_j^2}\right) = \mu \nabla^2 u_i \tag{1.4}$$

où μ est la viscosité dynamique du fluide.

Ces équations sont composées d'une équation de conservation de la matière (1.1) et d'équations de conservation de la quantité de mouvement (1.2). Chaque espèce chimique présente dans le fluide est suivie par une équation de transport (1.3) écrite pour un scalaire passif avec un terme source/puits.

La non-linéarité des termes sources telles les forces de volumes intervenant dans l'équation de conservation du moment et le terme source dans l'équation de transport du scalaire rendent la résolution directe des équations aux dérivées partielles délicates. La résolution des équations

de Navier-Stokes est rendue encore plus compliquée par la présence du terme non-linéaire dans le terme d'advection ou convectif.

L'adimensionnalisation de l'équation de conservation du mouvement (1.2) fait apparaître trois nombres adimensionnels :

- le nombre de Strouhal St qui caractérise les évolutions de l'écoulement en fonction du temps :

$$St = \frac{f^* L^*}{U^*} \qquad (1.5)$$

- le nombre de Froude Fr qui caractérise le rapport des forces d'inerties aux forces de masses :

$$Fr = \frac{U^{*2}}{g^* L^*} \qquad (1.6)$$

- et le nombre de Reynolds Re qui caractérise le rapport des forces d'inerties aux forces visqueuses :

$$Re = \frac{U^* L^*}{\nu} \qquad (1.7)$$

f^*, L^*, U^*, g^* et ν sont des paramètres caractéristiques de l'écoulement. Ils représentent respectivement une fréquence, une taille, une vitesse, l'accélération de la pesanteur et la viscosité cinématique $\nu = \mu / \rho$.

Les nombres sans dimensions de Froude Fr et de Reynolds Re permettent d'estimer l'impact de certains phénomènes comme la gravité ou viscosité du fluide sur l'écoulement. Par exemple, un grand nombre de Froude permet de négliger la gravité alors qu'un nombre de Reynolds très inférieur à 1 décrit un fluide très visqueux (*e.g.* bitume, miel).

La transition d'un écoulement laminaire à turbulent se traduit par l'apparition de structures chaotiques et tourbillonnaires. L'écoulement turbulent donne l'avantage de permettre une diffusion plus rapide des espèces dans le milieu. En effet, un terme de diffusion turbulente Γ_t s'ajoute à la diffusion moléculaire Γ_s dans l'équation de transport des scalaires.

Dans le cas d'une poche ayant un diamètre D = 4 m et un débit d'argon Q_g = 300 Nl/min à travers un bouchon poreux placé au centre de la cuve, la vitesse verticale est de l'ordre du mètre par seconde. Le nombre de Reynolds aura la valeur suivante :

$$Re = \frac{V_F \mathrm{D}}{\nu} = \frac{1 \cdot 4}{\frac{0.0062}{7000}} \approx 4.5 \cdot 10^6$$

La géométrie de la poche, la vitesse de brassage ainsi que la rugosité des parois amènent à l'obtention d'un écoulement turbulent.

1.2.2 L'écoulement turbulent et sa modélisation

Tout ce qui suit sur la turbulence est connu. L'écoulement turbulent [2,4,10] se caractérise par des phénomènes physiques aléatoires et chaotiques à grand nombre de degrés de liberté. Les structures turbulentes ont des tailles, des fréquences et des vitesses différentes qui interagissent entre elles. La turbulence est un phénomène dissipatif car la viscosité du fluide est à l'origine du transfert de l'énergie cinétique turbulente produite aux grandes échelles et dissipée par les petites structures. La présence de tourbillons dans l'écoulement turbulent accélère le transfert des espèces par diffusion. Cette propriété physique rend ce phénomène attractif pour des applications industrielles où les aspects de réacteur agité et homogène sont importants.

Trois méthodes permettent de résoudre les équations de Navier-Stokes pour un écoulement en régime turbulent :

La *simulation numérique directe* ou *DNS* (Direct Numerical Simulation) résout toutes les échelles de la turbulence. Le code numérique résout directement les équations de Navier-Stokes sans faire intervenir de modèle turbulent, ce qui requiert que le maillage du domaine fluide ainsi que le pas de temps soient respectivement plus petits que les échelles spatiales et temporelles turbulentes. Cela reste inenvisageable pour des applications industrielles à grandes échelles.

La *simulation des grandes échelles* ou *LES* (Large Eddy Simulation) résout l'écoulement des grandes structures en éliminant des équations de Navier-Stokes les petites échelles par l'utilisation d'un filtre (de type Smagorinsky). Les petits tourbillons sont alors modélisés à l'aide d'une statistique simplifiée.

L'*approche statistique* ou *RANS* (Reynolds Averaged Navier-Stokes), cherche à déterminer un écoulement moyen, au sens de la moyenne statistique. Le mouvement instantané est décomposé en une partie moyenne et une partie fluctuante :

$$u_i = \overline{u}_i + u_i' \tag{1.8}$$

où $\overline{u}_i$ est la vitesse moyenne et u_i' sa composante fluctuante aléatoire. Les équations de Navier-Stokes sont alors réécrites en utilisant cette approche statistique :

$$\frac{\partial \overline{u}_i}{\partial x_i} = 0 \tag{1.9}$$

$$\frac{\partial \overline{u}_i}{\partial t} + \overline{u}_j \frac{\partial \overline{u}_i}{\partial x_j} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} + \nu \nabla^2 \overline{u}_i - \frac{\partial \overline{u_i' u_j'}}{\partial x_j} + \overline{F}_i \tag{1.10}$$

$$\frac{\partial \overline{\phi}_s}{\partial t} + \overline{u}_i \frac{\partial \overline{\phi}_s}{\partial x_i} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} + \Gamma_s \nabla^2 \overline{\phi}_s - \frac{\partial \overline{u_i' \phi_s'}}{\partial x_i} + \overline{S_s}(\phi) \tag{1.11}$$

Par cette transformation, nous avons fait apparaitre de nouveaux termes dans le membre de droite de l'éq. (1.10) et de l'éq. (1.11). En intégrant sur l'espace le troisième terme de l'éq. (1.10) les contraintes turbulentes apparaissent : $\sigma_{ij}' = -\rho \overline{u_i' u_j'}$. C'est un tenseur symétrique du second ordre, nommé tenseur des contraintes de Reynolds, qui représente l'effet du champ fluctuant agissant sur le champ moyen. Il introduit 6 nouvelles grandeurs qui ne peuvent être

reliées avec les grandeurs connues comme la vitesse ou la pression. La formulation de l'énergie cinétique turbulente k est obtenue en calculant la trace de ce tenseur des contraintes de Reynolds :

$$k = \frac{1}{2}\overline{u_i' u_i'} \tag{1.12}$$

La fermeture de l'éq. (1.10) ne sera alors possible qu'avec la modélisation de ce terme. Le troisième terme du membre de droite de l'éq. (1.11) représente quant à lui le flux de scalaire qui prend en compte le transport dû aux composantes fluctuantes de la vitesse. Cette équation doit aussi être fermée par la modélisation de ce terme.

Le choix de l'une ou l'autre de ces approches doit tenir compte du type de résultats souhaités et du temps de calcul. Bien que la *DNS* semble être la meilleure approche pour résoudre les écoulements turbulents, cette méthode nécessite un maillage très fin. Comme toutes les échelles doivent être représentées, il en résulte que le nombre de cellules dans chaque direction doit être de l'ordre de $Re^{3/4}$. Cette valeur est obtenue en faisant le rapport de l'échelle intégrale L_f sur l'échelle de Kolmogorov η (*i.e.* rapport de la taille longitudinale des tourbillons producteurs d'énergie turbulente sur la taille des structures dissipant l'énergie turbulente) (*cf.* §1.2.3). Pour reprendre un exemple, la simulation de la poche brassée à l'argon ($Re \approx 10^6$) requiert au moins 150 000 cellules dans chaque direction. La *LES* semble être un bon compromis entre simulation directe et modélisation statistique. Cette méthode est capable de prédire l'écoulement instantané et de résoudre les structures turbulentes. Cependant, elle perd en efficacité lorsqu'il est besoin de calculer l'écoulement en proche paroi. Pour ce genre de problème les modèles *RANS* sont mieux adaptés. Ils donnent d'assez bons résultats loin des parois, et sont couplés avec des lois pariétales semi-empiriques près des parois pour des temps de calculs raisonnables. Sans omettre que ces méthodes introduisent un problème de fermeture des équations de Navier-Stokes, elles constituent l'approche numérique la plus utilisée pour résoudre des problèmes industriels.

1.2.3 La cascade d'énergie de la turbulence

Dans un écoulement turbulent, les phénomènes se déroulent à plusieurs échelles (*i.e.* espaces, temps, vitesses). L'énergie est produite par les grands mouvements chaotiques. Elle est ensuite transportée par des structures de plus en plus petites, pour être enfin dissipée en chaleur par les plus petits tourbillons. Ces phénomènes de production, transport et dissipation de l'énergie turbulente en turbulence homogène isotrope est un principe fondamental décrit par la théorie de la cascade d'énergie énoncée par Kolmogorov A.N. (1941) [12]. L'utilisation des deux grandeurs turbulentes représentées par la production de l'énergie turbulente k et par le taux de dissipation de l'énergie turbulente ε additionnée à la viscosité cinématique du fluide ν permettent la représentation (*cf.* Figure 1.2) et le calcul de ces différentes échelles.

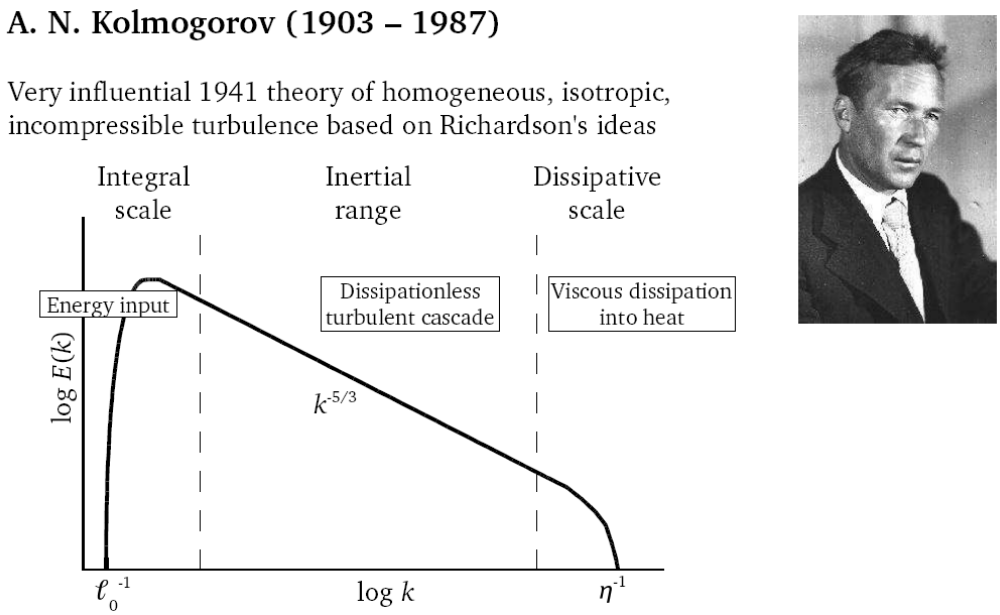


Figure 1.2 : Spectre tridimensionnel de l'énergie de la turbulence. Les trois zones (production, transport et dissipation) sont représentées. Le domaine inertiel est caractérisé par une pente égale à -5/3 en échelle log-log.

Kolmogorov définit les échelles spatiale, temporelle et de vitesse des structures dissipatives de la turbulence à partir d'un nombre de Reynolds unitaire :

$$\mathrm{Re}_\eta = \frac{u_\eta \eta}{\nu} = 1 \tag{1.13}$$

u_η et η sont respectivement la vitesse et la taille des structures dissipatives qui sont alors reliées par l'expression suivante :

$$u_\eta = \frac{\nu}{\eta} \tag{1.14}$$

Les forces cinétiques sont compensées par les forces visqueuses, c'est à dire que l'énergie turbulente est transformée en chaleur. Le taux de dissipation d'énergie turbulente pour le cas d'une turbulence homogène isotrope est alors définit comme suit :

$$\varepsilon = 2\nu \overline{\frac{1}{4}\left(\frac{\partial u_i'}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j'}{\partial x_i}\right)^2} \cong \nu \frac{1}{\tau_\eta^2} \tag{1.15}$$

où τ_η correspond à l'échelle temporelle des structures dissipatives ayant pour valeur approchée :

$$\tau_\eta \approx \left(\frac{\nu}{\varepsilon}\right)^{1/2} \tag{1.16}$$

Les éqs. (1.14) et (1.16) permettent enfin d'obtenir l'échelle de vitesse des structures dissipatives en fonction du taux de dissipation de l'énergie turbulente :

$$u_\eta = (\varepsilon\nu)^{1/4} \tag{1.17}$$

ainsi que l'échelle de taille associée plus communément connue sous le nom d'échelle de Kolmogorov :

$$\eta = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon}\right)^{1/4} \tag{1.18}$$

Comme le taux de dissipation est imposé par la taille des plus gros tourbillons, cela permet de définir l'échelle intégrale longitudinale L_f et transversale L_g [7,25] :

$$L_f = 2L_g \approx \frac{u'^3}{\varepsilon} \tag{1.19}$$

avec u' la vitesse fluctuante :

$$u' \approx \sqrt{\frac{2}{3}k} \tag{1.20}$$

l'échelle de temps intégral :

$$\tau_{L_f} = \frac{L_f}{u'} \tag{1.21}$$

et le nombre de Reynolds turbulent des grosses structures :

$$\mathrm{Re}_{L_f} \equiv \frac{u'L_f}{\nu} \tag{1.22}$$

L'éq. (1.22) ne doit pas être confondue avec le nombre de Reynolds macroscopique :

$$\mathrm{Re}_L = \frac{uL}{\nu} \tag{1.23}$$

En turbulence homogène, les micro-échelles de Taylor longitudinale λ_f et transversale λ_g sont déterminées par le comportement des fonctions d'auto-corrélation près de l'origine [7,25]:

$$\lambda_f = \left(\frac{15\nu u'^2}{\varepsilon}\right)^{1/2} = \sqrt{2}\lambda_g \tag{1.24}$$

Ces micro-échelles caractérisent la taille des tourbillons les plus fréquents et le nombre de Reynolds basé sur cette échelle permet de caractériser l'amplitude de la turbulence :

$$\mathrm{Re}_{\lambda_f} = \left(\frac{15u'^4}{\varepsilon\nu}\right)^{1/2} \tag{1.25}$$

Ce nombre de Reynolds est souvent utilisé dans les modèles physiques car il permet de relier l'échelle intégrale et l'échelle de Kolmogorov par des relations simples [7]. Le tableau 1.1 liste les grandeurs caractéristiques qui ont été développées dans cette partie. Cela va de l'échelle

intégrale où l'énergie est produite en passant par la micro-échelle de Taylor en terminant par l'échelle de Kolmogorov où elle est dissipée.

	Échelle intégrale	Échelle de Taylor	Échelle de Kolmogorov
Espace	$L_f \approx \frac{u'^3}{\varepsilon}$	$\lambda_f = \left(\frac{15\nu u'^2}{\varepsilon}\right)^{1/2}$	$\eta = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon}\right)^{1/4}$
Temps	$\tau_{L_f} = \frac{L_f}{u'}$	$\tau_{\lambda_f} = \left(\frac{15\nu}{\varepsilon}\right)^{1/2}$	$\tau_\eta \approx \left(\frac{\nu}{\varepsilon}\right)^{1/2}$
Vitesse	$u' \approx \sqrt{\frac{2}{3}k}$		$u_\eta = (\varepsilon\nu)^{1/4}$
Reynolds	$\mathrm{Re}_{L_f} \equiv \frac{u' L_f}{\nu}$	$\mathrm{Re}_{\lambda_f} = \left(\frac{15u'^4}{\varepsilon\nu}\right)^{1/2}$	$\mathrm{Re}_\eta = 1$

Tableau 1.1: Grandeurs caractéristiques d'un écoulement en turbulence développée.

Suivant la valeur prise pour u', il peut y avoir quelques différences de définitions sur les échelles intégrales et de Taylor [7].

1.2.4 Modélisation de la turbulence : de Boussinesq au *k*-ε réalisable

Il a été énoncé précédemment (*cf.* §1.2.2) que l'utilisation d'un modèle *RANS* pour modéliser la turbulence est moins coûteuse en temps de calcul que les méthodes *DNS* ou *LES*. Ce modèle donne de bons résultats loin des parois et utilise des lois pariétales semi-empiriques pour résoudre les interactions fluides/parois. Cependant, la fermeture du système d'équations demande le développement d'hypothèses concernant le tenseur de Reynolds et le flux scalaire.

Boussinesq en 1877 [5] propose que le transfert de la quantité de mouvement provoqué par les fluctuations puisse être modélisé par le biais d'une viscosité turbulente μ_t. Il traite ainsi la turbulence comme un état de la matière en considérant les mouvements turbulents comme des mouvements moléculaires. La grande différence avec le gaz se situe au niveau du libre parcours moyen des particules qui serait macroscopique et non plus microscopique.

Cette hypothèse relie ainsi le tenseur (complet) des contraintes de Reynolds σ'_{ij} au champ des vitesses moyennes de l'écoulement [8] :

$$\sigma'_{ij} = -\rho\overline{u'_i u'_j} = 2\mu_t \overline{S_{ij}} - \frac{2}{3}\rho k \delta_{ij} \tag{1.26}$$

avec :

$$\overline{S_{ij}} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j}\right) \tag{1.27}$$

où δ_{ij} est le symbole de Kronecker. Le problème de fermeture ne concerne plus la modélisation du tenseur des contraintes de Reynolds mais le nouveau terme de viscosité dynamique turbulente μ_t.

L'hypothèse de Boussinesq introduit l'idée d'une viscosité turbulente constante. Le transfert d'énergie est identique quelque soit l'échelle de la turbulence. L'échelle de viscosité cinématique turbulente $\nu_t = \mu_t / \rho$ est alors donnée par :

$$\nu_t = \frac{l_0^2}{t_0} \tag{1.28}$$

Dans ce modèle, les échelles turbulentes de longueur l_0 et temporelle t_0 sont des moyennes empiriques algébriques. Aucune autre équation n'est ajoutée. C'est un modèle à zéro-équation.

Prandtl (1925) [18] a le premier développé un modèle zéro-équation satisfaisant avec la théorie de longueur de mélange :

$$\nu_t = l^2 \left| \frac{d\bar{u}}{dy} \right| \tag{1.29}$$

où $l = \kappa y$ est la longueur de mélange (κ est la constante de von Karman et y est la distance normale à la paroi solide). Cette formulation est formellement valide pour des écoulements turbulents en proche paroi avec une vitesse moyenne parallèle à la paroi.

Le modèle de Prandtl fut ensuite généralisé pour des écoulements turbulents tridimensionnels avec le modèle de Smagorinsky (1963) [21] :

$$\nu_t = l^2 S \tag{1.30}$$

avec :

$$S = \sqrt{2\overline{S_{ij}}\,\overline{S_{ij}}} \tag{1.31}$$

où S représente le module du taux de cisaillement moyen de l'écoulement.

Il est encore utilisé comme modèle de sous-maille dans les modèle de turbulence LES.

Pour corriger l'aspect empirique de l'hypothèse de Boussinesq, la viscosité turbulente doit, elle aussi, être modélisée en prenant en compte un couple d'échelles caractéristiques de longueur et de vitesse.

Des modèles dit du premier ordre Baldwin & Barth (1990) et Spalart & Allmaras (1992) [3,22] proposent d'ajouter une équation de transport de l'échelle de viscosité turbulente ν_t :

$$\nu_t = l k^{1/2} \tag{1.32}$$

Cette méthode de résolution est très peu utilisée à l'heure actuelle car encore trop empirique et il lui est préfère le modèle turbulent k-ε standard de Launder et Spalding [15]. Aux équations de Navier-Stokes sont ajoutées deux équations supplémentaires : une sur le taux de production de l'énergie turbulente k et une autre sur le taux de dissipation de l'énergie turbulente ε :

$$\frac{\partial k}{\partial t} + \overline{u_k} \frac{\partial k}{\partial x_k} = \frac{\partial}{\partial x_k}\left[\left(\nu + \frac{\nu_t}{\sigma_k}\right)\frac{\partial k}{\partial x_k}\right] + \nu_t S^2 - \varepsilon + \frac{\overline{S_k}}{\rho} \tag{1.33}$$

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + \overline{u_i} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i}\left[\left(\nu + \frac{\nu_t}{\sigma_\varepsilon}\right)\frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i}\right] + C_{1\varepsilon}\nu_t S^2 \frac{\varepsilon}{k} - C_{2\varepsilon}\frac{\varepsilon^2}{k} + \frac{\overline{S_\varepsilon}}{\rho} \tag{1.34}$$

avec :

$$\nu_t = C_\mu \frac{k^2}{\varepsilon} \tag{1.35}$$

Il est à noter que dans le cas d'écoulements à grands nombres de Reynolds pour lesquels $\lambda << L_f$, le taux de dissipation de l'énergie turbulente est approché par la pseudo-dissipation :

$$\varepsilon = \nu \overline{\left(\frac{\partial u_i'}{\partial x_j}\right)^2} \tag{1.36}$$

Le duo d'équations transportant l'énergie cinétique de la turbulence k et le taux de dissipation ε de cette même énergie cinétique s'obtient en réalisant un bilan énergétique entre les différents mouvements. Les variables $C_{1\varepsilon}, C_{2\varepsilon}, \sigma_k, \sigma_\varepsilon$ et C_μ sont des constantes empiriques qui ont été obtenues pour un écoulement simple air et eau (*cf.* Tableau 1.2). σ_k et σ_ε représentent respectivement les nombres de Prandtl pour k et ε qui représente le rapport entre la viscosité cinématique du fluide et la diffusivité thermique. $\overline{S_k}$ et $\overline{S_\varepsilon}$ sont respectivement des termes sources moyen pour le taux de production de l'énergie turbulente et pour le taux de dissipation de l'énergie turbulente. Dans le cas de notre poche d'acier liquide, la principale source de production d'énergie turbulente vient de l'injection des bulles de gaz utilisées pour le brassage.

$C_{1\varepsilon}$	$C_{2\varepsilon}$	σ_k	σ_ε	C_μ
1.44	1.92	1	1.3	0.09

Tableau 1.2 : Constantes empiriques du modèle *k*-ε standard

Le modèle *k*-ε standard est un modèle semi-empirique qui nécessite un écoulement pleinement turbulent où les effets de la viscosité moléculaire sont négligeables devant ceux produits par la viscosité turbulente. C'est le modèle complet le plus simple qui allie vitesse de calcul, robustesse et précision. Il comporte néanmoins des défauts. Deux grandeurs seulement (k et ε) sont utilisées pour décrire trois propriétés (k, ε et ν_t) et les constantes empiriques ont été obtenues à partir d'expériences dans l'air et dans l'eau.

De plus, les éqs. (1.26) et (1.30) permettent d'écrire l'égalité suivante :

$$\overline{u_i'^2} = \frac{2}{3}k - 2\nu_t \overline{S_{ii}} \tag{1.37}$$

Le terme de gauche de l'éq. (1.37) (*i.e.* $\overline{u_i'^2}$) est par définition positif. Il peut devenir négatif, c'est à dire « non réalisable », lorsque le cisaillement normal $\overline{S_{ii}}$ devient suffisamment fort pour vérifier :

$$\frac{k}{\varepsilon}\overline{S_{ii}} > \frac{1}{3C_\mu} \approx 3.7 \tag{1.38}$$

Il peut aussi être démontré que l'inégalité de Schwartz (*i.e.* $\overline{u_\alpha u_\beta}^2 \le \overline{u_\alpha^2 u_\beta^2}$) peut ne pas être vérifiée pour les termes croisés du tenseur de Reynolds lorsque le taux de cisaillement moyen est trop fort.

Ce problème est corrigé par l'utilisation du modèle *k-ε* réalisable développé par Shih *et al.* [20]. Ainsi, pour assurer la positivité de l'éq. (1.37) et validée l'inégalité de Schwartz, le paramètre C_μ n'est plus constant et devient fonction des taux de déformation et de rotation moyens :

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + \overline{u_i} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_i}\left[\left(\nu + \frac{\nu_t}{\sigma_\varepsilon}\right)\frac{\partial \varepsilon}{\partial x_i}\right] + C_1 S\varepsilon - C_2 \frac{\varepsilon^2}{k + \sqrt{\nu\varepsilon}} + \overline{S_\varepsilon} \tag{1.39}$$

avec :

$$C_1 = \max\left[0.43, \frac{S\frac{k}{\varepsilon}}{S\frac{k}{\varepsilon} + 5}\right] \tag{1.40}$$

L'éq. (1.33) reste inchangée et de nouvelles constantes (*cf.* Tableau 1.3) sont utilisées pour l'éq. (1.39).

C_2	σ_k	σ_ε
1.9	1	1.2

Tableau 1.3 : Constantes empiriques du modèle *k-ε* réalisable

1.2.5 L'équation de transport des scalaires

L'équation de transport des scalaires (1.11) nécessite la modélisation du terme apparu suite à l'approximation de Reynolds. Lorsque les contraintes turbulentes ne sont pas connues, une manière usuelle pour fermer cette équation est d'utiliser l'hypothèse de gradient :

$$\overline{u_i' \phi_s'} = -\frac{\nu_t}{\sigma_\phi}\frac{\partial \overline{\phi_s}}{\partial x_i} = -\Gamma_t \frac{\partial \overline{\phi_s}}{\partial x_i} \tag{1.41}$$

où σ_ϕ correspond au un nombre de Schmidt turbulent dont la valeur est comprise entre 0.7 et 0.9 [6,7]. Le nombre de Schmidt représente le rapport entre la viscosité cinématique du fluide et le coefficient de diffusion de la quantité transportée. Γ_t est appelé coefficient de diffusivité turbulente. Il est identique quelque soit l'espèce chimique transportée.

L'équation de transport des scalaires peut désormais s'écrire :

$$\frac{\partial \overline{\phi_s}}{\partial t} + \overline{u_i}\frac{\partial \overline{\phi_s}}{\partial x_i} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial \overline{p}}{\partial x_i} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left((\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial \overline{\phi_s}}{\partial x_i}\right) + \overline{S_s}(\phi) \tag{1.42}$$

Dans l'hypothèse de l'éq. (1.34), le rapport ν_t / ν a la valeur du nombre de Reynolds turbulent à un facteur près. Or dans un écoulement turbulent ce nombre est très grand (de l'ordre de 10^6 dans l'exemple proposé en §1.2.1). La diffusivité moléculaire Γ_s est alors négligeable devant la diffusivité turbulente Γ_t. Ce résultat explique l'intérêt des écoulements turbulents en milieu industriel lorsqu'on veut brasser des espèces chimiques.

1.2.6 Le traitement pariétal

Le comportement du fluide près de la paroi est simulé en utilisant le modèle proposé par Launder & Spalding (1974) [16]. La loi de paroi calcule une vitesse moyenne :

$$U^* = \frac{1}{\kappa}\ln\left(Ey^*\right) \tag{1.43}$$

où

$$U^* \equiv \frac{UC_\mu^{1/4}\sqrt{k}}{\tau_w/\rho} \tag{1.44}$$

$$y^* = \frac{\rho C_\mu^{1/4}\sqrt{k}\,y}{\mu} \tag{1.45}$$

et E est une constante empirique (= 9.793), U_p est la vitesse moyenne du fluide, y est la distance normale à la paroi et τ_w est le taux de cisaillement à la paroi.

Cette loi logarithmique est connue pour être valide dans la gamme 30 < y^* < 300. Lorsque le "Standard Wall Treatment" est choisi dans le logiciel de mécanique des fluides Fluent®, l'éq. (1.43) est utilisée pour y^* > 11.225 et pour des valeurs inférieures, la loi linéaire suivante est appliquée (*cf.* Figure 1.3) :

$$U^* = y^* \tag{1.46}$$

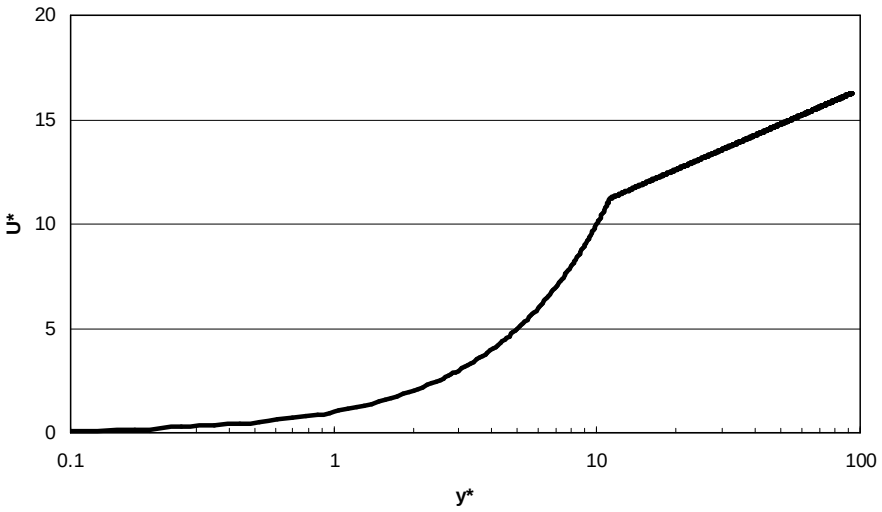


Figure 1.3 : Représentation adimensionnelle semi-log de la vitesse du fluide près de la paroi en fonction de la distance.

1.3 Injection d'un gaz dans un milieu fluide

Les bulles d'argon dans la poche d'acier liquide peuvent être injectées soit à travers un bouchon poreux placé au fond de la poche, soit par une lance introduite dans le liquide. Les deux options peuvent être combinées pour augmenter l'efficacité de brassage. Dans les deux cas, les bulles injectées vont subir différentes forces dont une partie sera transmise à l'acier liquide (*e.g.* force de trainée, force de portance, variation de densité locale ou variation de la taille des bulles) [1,9,11,31]. Ce transfert d'énergie a pour effet d'entrainer l'acier durant la remontée des bulles.

1.3.1 Hydrodynamique des bulles de gaz

La trajectoire d'une particule sphérique de diamètre d en tenant compte de la force de masse ajoutée et de l'expression générale de la traînée est obtenue par intégration de l'équation de transport suivante :

$$m_v \frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = -\frac{\pi d^2}{4}\frac{1}{2}\rho_F C_D V_R\left(\mathbf{u}_F - \mathbf{u}_p\right) + \mathbf{F}^* \tag{1.47}$$

avec m_v la masse ajoutée de la particule :

$$m_v = \left(\rho_p + \frac{1}{2}\rho_F\right)\frac{\pi}{6}d^3 \tag{1.48}$$

et V_R la vitesse relative entre la particule et le fluide :

$$V_R = \left\|\mathbf{u}_p - \mathbf{u}_F\right\| \tag{1.49}$$

où $\mathbf{u}_p$ est le vecteur vitesse de la particule, $\mathbf{u}_F$ le vecteur vitesse de l'acier liquide, C_D le coefficient de traînée, ρ_p et ρ_F sont respectivement la masse volumique de la particule et celle de l'acier liquide et $\mathbf{F}^*$ regroupe les autres forces éventuelles (*e.g.* portance, pesanteur).

La masse ajoutée correspond à la masse virtuelle que la particule déplace lors de son mouvement aléatoire provoqué par l'agitation thermique. En divisant l'éq. (1.47) par la masse ajoutée m_v, le temps de relaxation d'une particule sphérique τ_p apparait :

$$\frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = -\frac{\mathbf{u}_F - \mathbf{u}_p}{\tau_p} + \frac{\mathbf{F}^*}{m_v} \tag{1.50}$$

avec :

$$\tau_p = \left(\frac{\rho_p}{\rho_F} + \frac{1}{2}\right)\frac{4d}{3C_D V_R} \tag{1.51}$$

Ce terme permet de caractériser le temps de réponse dynamique d'une particule dans un fluide donné.

- **Force de traînée**

La trainée est une force de résistance au mouvement ou poids apparent que la particule doit déplacer. Cette force représentée par le premier membre de droite de l'éq. (1.47) joue un rôle prépondérant sur la mise en mouvement d'un liquide initialement au repos par un gaz (*i.e.* brassage pneumatique). Elle est caractérisée par un coefficient de traînée C_D qui a différentes expressions suivant que la particule est indéformable, en régime de Stokes ou non polluée.

La valeur de ce coefficient pour une bulle de gaz dans l'acier est calculée en utilisant les corrélations données par Tomiyama [27] qui distinguent trois cas possibles de milieu liquide :

- non contaminé :

$$C_D = \max\left(\min\left(\frac{16}{Re_p}\left(1+0.15Re_p^{0,687}\right), \frac{48}{Re_p}\right), \frac{8}{3}\frac{Eo}{(Eo+4)}\right) \tag{1.52}$$

- faiblement contaminé :

$$C_D = \max\left(\min\left(\frac{24}{Re_p}\left(1+0.15Re_p^{0,687}\right), \frac{72}{Re_p}\right), \frac{8}{3}\frac{Eo}{(Eo+4)}\right) \tag{1.53}$$

- fortement contaminé :

$$C_D = \max\left(\frac{24}{Re_p}\left(1+0.15Re_p^{0,687}\right), \frac{8}{3}\frac{Eo}{(Eo+4)}\right) \tag{1.54}$$

où Re_p est le nombre de Reynolds particulaire :

$$Re_p = \frac{V_R d}{\nu_F} \tag{1.55}$$

Eo est le nombre d'Eötvös ou nombre de Bond Bo. Il est utilisé pour caractériser la forme des bulles. Il correspond au rapport entre la poussée d'Archimède et la force de tension superficielle :

$$Eo = \frac{d^2 g(\rho_F - \rho_b)}{\sigma} \tag{1.56}$$

où d est défini comme le diamètre de la sphère de même volume :

$$d = \sqrt[3]{\frac{6}{\pi}V} \tag{1.57}$$

Ces relations sont données pour des nombres Eo compris entre 10^{-2} et 10^{3}.

Dans nos simulations comme dans toutes applications industrielles et compte tenu de la nature du liquide, l'expression en milieu fortement contaminé est utilisée pour le calcul du coefficient de trainée C_D pour le brassage pneumatique.

- **Force de portance**

Si la trainée est la composante tangentielle de la force que subit la bulle en mouvement dans le fluide ; alors la force de portance en est sa composante perpendiculaire. Loin de toute paroi, cette force est due uniquement au gradient de vitesse alors que proche d'une paroi, une force de lubrification s'y ajoute. La force de portance peut être répulsive ou attractive suivant la forme de la bulle. Mais dans tous les cas, l'effet de la paroi se traduit par une réduction de la vitesse ascensionnelle et par une force tendant à éloigner la bulle de la paroi. Quelque soit la distance, les effets de la paroi décroissent lorsque le nombre de Reynolds particulaire augmente et ils deviennent négligeable lorsque Re_p atteint la dizaine [17]. On retrouve son expression chez Tomiyama [26,28] :

$$\frac{\mathbf{F_L}}{m_v} = C_L' \rho_F \left(\mathbf{u}_p - \mathbf{u}_F\right) \times \left(\nabla \times \mathbf{u}_F\right) \tag{1.58}$$

où C_L' est le coefficient de portance. Sa valeur théorique pour une bulle sphérique est égale à 0.5 mais empiriquement, il prend une valeur comprise entre 0.25 et 0.3 selon la forme de la bulle.

- **Force de pesanteur**

La force de pesanteur calcule la différence d'accélération due à la gravité terrestre agissant entre le volume d'une particule et le volume équivalent de fluide $V = \left(\pi d^3/6\right)$:

$$\frac{\mathbf{F_g}}{m_v} = \frac{\left(\rho_p - \rho_F\right)\frac{\pi}{6} d^3}{m_v} \mathbf{g} = \left(\frac{\rho_p - \rho_F}{\rho_p + \frac{1}{2}\rho_F} \right) \mathbf{g} \tag{1.59}$$

D'autres forces peuvent être incluses comme la force d'histoire qui calcule l'effet du parcours réalisé par la bulle sur sa trajectoire future. Cette force est très coûteuse à calculer et ne joue un rôle important que dans le cas où la particule et le fluide ont des densités proches [17]. Elle est négligeable lorsque $\tau_p/\tau_k << 1$.

1.3.2 Variation de masse volumique locale

La présence d'argon dans l'acier liquide ($\rho_g << \rho_F$) modifie la masse volumique localement. Cette variation est prise en compte en calculant la masse volumique moyenne du mélange :

$$\rho_{mélange} = (1-\alpha)\rho_F + \alpha\rho_p \tag{1.60}$$

avec :

$$\rho_p = \frac{P_S M_p}{RT} \tag{1.61}$$

et

$$P_S = P_{atm} + \rho_F g\left(H - z\right) \tag{1.62}$$

où α est le taux de vide. Pour obtenir la masse volumique des bulles d'argon, la loi des gaz parfait est appliquée. P_s est la pression ferrostatique, M_p la masse molaire des bulles, R est la constante des gaz parfait, T est la température locale, H est la hauteur d'acier liquide totale et z est la côte du point considéré avec comme référence le fond de la poche.

1.3.3 Variation du diamètre des bulles – Loi de Mariotte

Les bulles d'argon, injectées au fond de la poche, vont subir une pression ferrostatique de plus en plus faible en remontant. La loi des gaz parfaits et l'hypothèse d'une température homogène nous permettent d'écrire la relation sur la variation du diamètre d des bulles en fonction du rapport des pressions :

$$d = \left(\frac{P_{ref}}{P_S} \right)^{\frac{1}{3}} d_0 \tag{1.63}$$

avec :

$$P_{ref} = P_{atm} + \rho_F g H \tag{1.64}$$

où d_0 est le diamètre initial des bulles, P_{ref} est la pression de référence au niveau de l'injecteur de gaz.

Cette équation, plus connue sous le nom de loi de Mariotte, permet de conclure qu'en remontant, le diamètre de la bulle va augmenter. Par exemple, dans une poche RH (du nom de ses concepteurs : Ruhrstahl – Heraeus), la pression en surface peut être égale à 1 mbar et le diamètre de la bulle va alors être multiplié d'un facteur 10.

Plus la bulle aura un diamètre important, plus l'énergie transmise au fluide le sera aussi. A débit identique, une poche sous vide a une énergie de brassage plus importante (*cf.* Tableau 1.4).

Débit d'argon à l'entrée du bouchon poreux		Pression en surface	Energie de brassage	
(L t^{-1} min^{-1})	(L min^{-1})	(Bar)	(W m^{-3})	(W t^{-1})
5.0	1 626.45	1.0	1 500	214.28
5.0	1 626.45	0.1	3 200	457.14
1.0	325.29	1.0	300	42.85
1.0	325.29	0.1	600	85.71

Tableau 1.4 : Énergie de brassage d'une poche suivant le débit de gaz à l'entrée du bouchon poreux avec une poche cylindrique de 46,47 m^3 d'acier ayant une masse volumique moyenne de 7 $t.m^{-3}$ [14].

1.3.4 Panache de bulles d'argon

La détermination expérimentale du champ de vitesse dans l'acier liquide est très difficile à obtenir (*i.e.* milieu opaque). Pour contourner le problème, des expériences dans des poches d'eau ou de métal liquide de Wood ont été réalisées. Par similitude, les résultats de ces essais sont pris comme base de validation du modèle industriel. Xie & Oeters [29,30] ont montré que le panache du mélange liquide/gaz ne dépend ni du lieu d'injection (*e.g.* centré ou excentré) ni des propriétés du gaz injecté (*e.g.* argon, azote ou hélium). Les paramètres importants sont le diamètre de l'injecteur, le débit de gaz, les dimensions de la poche et les propriétés du liquide. Il

est alors possible de connaitre le taux de vide le long de l'axe d'injection α_m et au voisinage α en utilisant les expressions suivantes :

$$\alpha_m = 0.65\left(Q_{g,z}^2\sqrt{\rho_F/(\sigma g)}\right)^{1/4}\Big/\left(z+H_0\right) \tag{1.65}$$

$$\alpha = \alpha_m \exp\left(-r^2/b_\alpha^2\right) \tag{1.66}$$

avec :

$$Q_{g,z} = Q_{g,N}\left(\frac{T}{T_N}\right)\left(\frac{p_N}{p_N + g\rho_F(H-z)}\right) \tag{1.67}$$

$$H_0 = 4.5 d_0^{1/2}\left(Q_{g,0}^2/g\right)^{1/10} \tag{1.68}$$

$$b_\alpha = 0.28(z+H_0)^{7/12}\left(Q_{g,z}^2/g\right)^{1/12} \tag{1.69}$$

où $Q_{g,z}$ le débit de gaz à la hauteur z, σ est la tension de surface du liquide, H_0 la distance entre l'injecteur et l'origine du panache, b_α est la largeur du panache et r est la distance à l'axe d'injection. T_N et P_N sont respectivement la température et la pression du gaz avant injection.

1.3.5 Énergie de brassage

L'énergie de brassage ε_T ou taux de dissipation de l'énergie turbulente correspond à l'énergie transmise par les bulles au fluide. Dans l'industrie, elle s'exprime en W/t et elle permet de caractériser le temps nécessaire à la désoxydation de la poche [1,32]. La littérature regorge de formulations sur le calcul de cette énergie dans l'acier liquide [13,19,24]. Ces expressions sont sensiblement identiques et elles utilisent toutes la géométrie de la poche, les conditions d'injections et les propriétés physiques des fluides mélangés mais diffèrent à une constante près. Sundberg (1978) [23], quant à lui, utilise une expression qui prend en compte l'expansion thermique à pression constante des bulles de gaz depuis le fond de la poche jusqu'à la surface. Ce qui donne l'expression suivante :

$$\varepsilon_T = \frac{RTQ_{g,N}}{m_F V_{m,g}}\left(\ln\left(1+\frac{\rho_F g H}{P_{atm}}\right)+\left(1-\frac{T_N}{T}\right)\right) \tag{1.70}$$

où m_F est la masse d'acier liquide, $V_{m,g}$ est la masse volumique du gaz injecté.

1.4 Conclusions

Dans les simulations numériques, l'écoulement de l'acier liquide est obtenu en utilisant le modèle k-ε réalisable. Pour le suivi de la trajectoire des bulles de gaz, le modèle de turbulence est couplé au modèle lagrangien DPM de Fluent® [6]. Une fois l'écoulement stationnaire atteint $d\varepsilon_T/dt = 0$, l'écoulement est figé pour libérer de la puissance de calcul. Cependant, le calcul de la trajectoire des bulles n'est plus assuré rendant difficile l'estimation de la capture des inclusions par les bulles.

L'énergie de brassage calculée avec l'éq (1.70) et celle obtenue par simulation numérique d'une poche cylindrique tridimensionnelle (Figure 1.4) sont similaires. Nous obtenons

$\varepsilon_T = 22{,}4\text{W/t}$ avec l'équation et $\varepsilon_T \approx 23\text{W/t}$ avec la simulation en utilisant les valeurs données par le tableau 1.5.

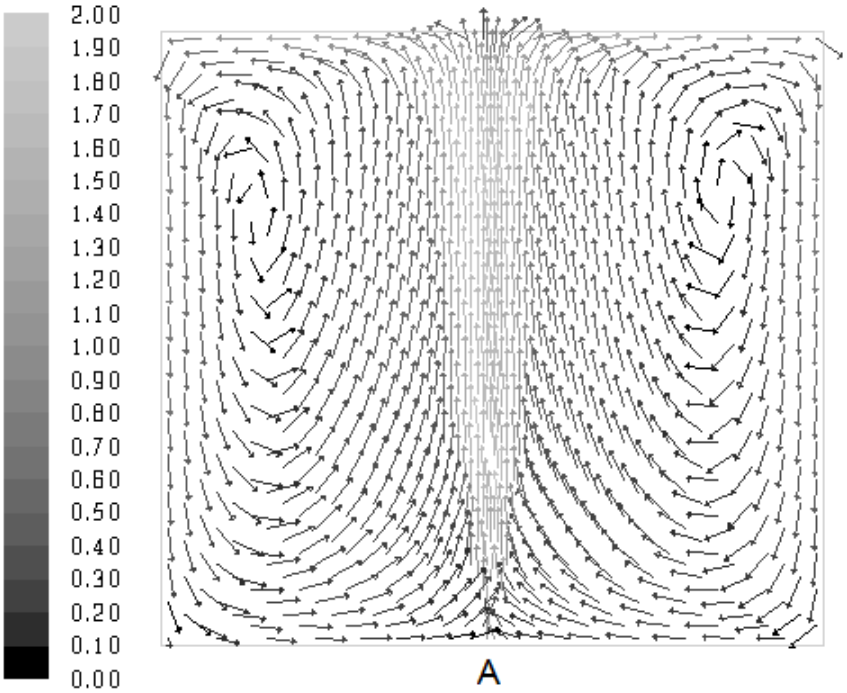


Figure 1.4 : Représentation du champ vectoriel de la vitesse moyenne en m/s de l'acier liquide brassé par injection d'argon en A. La poche métallurgique est représentée par un cylindre contenant environ 90 000 cellules. Le panache de bulles permet à l'acier d'avoir une vitesse ascensionnelle atteignant 2 m/s.

T (K)	T_N (K)	m_{acier} (t)	$Q_{g,N}$ (NL/min)	$V_{m,g}$ (L/mol)	ρ_{acier} (t/m^3)	H (m)	D (m)	P_{atm} (Pa)
1873	300	325	300	22,4	7	3,7	4	101 325

Tableau 1.5 : Paramètres de simulation du brassage par l'argon de la poche sidérurgique.

Bibliographie

[1]: Aoki J., Zhang L., Thomas B.G., (2005), "Modeling of inclusion removal in ladle refining", Internal report of Illinois University at Urbana-Champaign.

[2]: Bailly C., Conte-Bellot G., (2003), "*Turbulence*", CNRS edition, Paris.

[3]: Baldwin B.S., Barth T.J., (1990), "A one-equation turbulence transport model for high Reynolds number wall-bounded flows", *NASA TM-102847*.

[4]: Batchelor G.K., (1952), "The theory of homogeneous turbulence", *Cambridge University Press*.

[5]: Boussinesq J., (1877), "Essai sur la théorie des eaux courantes", *Mémoires à l'académie des Sciences*,T. **23**,pp. 46-50.

[6]: Fluent 6.3 user guide, (2006), Fluent Inc., Lebanon, NH, USA.

[7]: Fox R.O., (2003), "*Computational models for turbulent reacting flows*", Cambridge University Press.

[8]: Gatski T.B., Hussaini M.Y., Lumley J.L., (1996), "*Simulation and modeling of turbulent flows*", Oxford University Press.

[9]: Goldschmit M.B., Coppola Owen A.H., (2001), "Numerical modeling of gas stirred ladles", *Ironmaking and Steelmaking*, **28**(4), pp. 337-341.

[10]: Hinze J.O., (1975), "*Turbulence : Second edition*", MacGraw-Hill series in Mechanical Engineering.

[11]: Johansen S.T., Boysan F., (1988), "Fluid dynamics in bubble stirred ladles: Part II. Mathematical Modeling", *Metallurgical and Transactions B*, **19B**, pp. 755-764.

[12]: Kolmogorov A.N., (1941), "The local structure turbulence incompressible viscous fluid for very large Reynolds number", *Doklady Akademii Nauk SSSR*, **30**(4), pp. 299-303.

[13]: Kor G.J.W., Glaws P.C., (2003), "*Chapter 12: Ladle Operations*", Casting Volume, The AISE Steel Foundation, Pittsburg, PA.

[14]: Lange K., (1988), "Thermodynamic and kinetic aspects of secondary steelmaking processes", *International Materials Reviews*, **33**(2), pp. 53-89.

[15]: Launder B.E., Spalding D.B., (1972), "*Lectures in mathematical models of turbulence*", London Academic Press.

[16]: Launder B.E., Spalding D.B., (1974), "The numerical computation of turbulent flows", *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, **3**, pp. 269-289.

[17]: Oesterlé B., (2006), "*Ecoulements multiphasiques : des fondements aux méthodes d'ingénierie*", Hermes Sciences – Lavoisier, Paris.

[18]: Prandtl L., (1925), "Über die ausgebildete Turbulenz", *ZAMM*, **5**, pp. 136-139.

[19]: Sano M., Mori K., (1983), "Fluid flow and mixing characteristics in a gas-stirred molten metal bath", *Transactions ISIJ*, **23**, pp. 169-175.

[20]: Shih T.H., Liou W.W., Shabbir A., Yang Z., Zhu J., 1995, "A new k-epsilon eddy-viscosity model for high Reynolds number turbulent flows - Model development and validation". *Computers and Fluids*, **24**(3), pp. 227-238.

[21]: Smagorinsky J., (1963), "General circulation experiments with the primitive equations", *Monthly Weather Review*, **91**, pp. 99-165.

[22]: Spalart P.R., Allmaras S.R., (1992), "A one-equation turbulence model for aerodynamic flows", *AIAA Journal*, **29**, pp. 1819-1835.

[23]: Sunberg Y., (1978), "Mechanical stirring power in molten metal in ladles obtained by induction", *Scandinavian Journal of Metallurgy*, **7**, pp. 81-87.

[24]: Suzuki K., Kitamura K., Takenouchi T., Funazaki M., Iwanami Y., (1982), "Manufacturing of High-Purity Steels by Ladle Refining", *Ironmaking & Steelmaking*, July 1982, pp. 33-37.

[25]: Tennekes H, Lumley J.L., 1972, "*A first course in turbulence*", MIT Press.

[26]: Tomiyama A., Zun I., Higaki H., Makino Y., Sakaguchi T., (1997), "A three-dimensional particle tracking method for bubbly flow simulation", *Nuclear Engineering and Design*, **175**, pp. 77-86.

[27]: Tomiyama A., Kataoka I., Zun I., Sakaguchi T., (1998), "Drag coefficients of single bubbles under normal and microgravity conditions", *JSME International Journal*, **41**, pp. 472-479.

[28]: Tomiyama A., Tamai H., Zun I., Hosokawa S., (2002), "Transverse migration of single bubbles in simple shear flows", *Chemical Engineering Science*, **57**, pp.1849-1858.

[29]: Xie Y., Oeters F., (1992), "Experimental studies on the flow velocity of molten metals in a ladle model at centric gas blowing", *Steel Research*, **63**(3).

[30]: Xie Y., Orsten S., Oeters F., (1992), "Behaviour of bubbles at gas blowing into liquid Wood's metal", *ISIJ International*, **32**(1), pp. 66-75.

[31]: Zhang L., Thomas B. G., (2002), "Alumina inclusion behaviour during steel deoxidation", *7th European Electric Steelmaking Conference*, Venice, Italy, pp. 2.77-2.86.

[32]: Zhang J., Lee H. G., (2004), "Numerical modeling of nucleation and growth of inclusions in molten steel based on mean processing parameters", *ISIJ International*, **4**(10), pp. 1629-1638.

Chapitre 2

Production, évolution et extraction des précipités

Lorsque la thermodynamique le prédit, une ou plusieurs réactions chimiques se déroulent et quand l'oxygène est un des éléments réactifs, l'équation bilan générique peut s'écrire de la manière suivante :

$$pM + qO \leftrightarrow M_pO_q \tag{2.1}$$

p et q sont les coefficients stœchiométriques et M est le second élément de la réaction.

Les inclusions solides ou liquides produites (*e.g.* alumine Al_2O_3, rutile TiO_2, oxydes de silicium SiO_2) sont alors transportées dans l'écoulement réactionnel turbulent. Les conditions thermodynamiques locales prédisent si ces particules croissent par diffusion ou au contraire se remettent en solution.

L'agitation brownienne des particules, l'écoulement turbulent et la séparation gravitaire entre les oxydes et l'acier liquide vont faire évoluer les particules à des vitesses différentes qui sont à l'origine des collisions. Ces rencontres vont amener les particules élémentaires à s'agréger et à croitre en amas de plus en plus gros. Toutes les collisions ne sont pas forcément efficaces et certaines collisions ne produisent pas d'agrégats.

Dans le même temps, les particules sont extraites du bain d'acier liquide. La séparation gravitaire est le principal mécanisme car les oxydes ont une densité plus faible que celle de l'acier. Elles flottent vers la surface de la poche où le laitier les absorbe. Ce processus d'extraction est accéléré par le mouvement convectif ascensionnel du fluide. De plus, si le brassage est produit par injection de gaz, les inclusions sont piégées sur la surface des bulles ou dans leurs sillages. Enfin, une partie de ces particules se fixe sur les parois de la poche et peuvent affecter la composition des futurs aciers.

2.1 Thermodynamique et cinétique de précipitation

Les inclusions métalliques et non métalliques (*i.e.* oxydes, sulfures et nitrures) se forment durant les différents traitements de la poche (*i.e.* désulfuration, décarburation ou désoxydation). Ces inclusions modifient la qualité ainsi que les propriétés finales de l'acier. La thermodynamique permet de connaitre les réactions chimiques qui se produisent à l'équilibre. Cependant, cet état d'équilibre chimique n'est pas immédiat et des réactions non souhaitées peuvent apparaître produisant des particules nocives (*e.g.* $Al_2O_3 + TiO_2 \rightarrow Al_2TiO_5$). L'état d'équilibre chimique n'est alors pas suffisant pour décrire l'évolution en taille et en composition d'une poche sidérurgique.

En conséquence, il est nécessaire d'ajouter un modèle de cinétique de précipitation et un suivi en taille des précipités. Ces deux améliorations permettront de prendre en compte la vitesse de

formation, de croissance et de remise en solution des précipités. C'est l'un des intérêts majeurs de ce projet. L'outil numérique final doit permettre d'observer ces phases qui disparaissaient complètement des précédentes simulations numériques alors qu'elles apparaissent dans la composition finale de certains aciers. C'est notamment le cas des oxydes mixtes $AlTiO_x$ (*i.e.* terme générique désignant tous les oxydes mixtes d'aluminium et de titane) qui feront l'objet d'une étude particulière dans le chapitre 6.

Dans ce paragraphe, les modèles de cinétique de précipitation utilisés dans le logiciel MIPPHASOLACIDO vont maintenant être présentés. Ce code de calcul dont l'acronyme signifie « Modèle Informatique de Précipitation de PHAses lors de la SOLidification de l'ACIer et de Distribution des Oxydes » calcule les vitesses de précipitation, de croissance par diffusion et de remise en solution des précipités. C'est une évolution du logiciel CEQCSI pour Calcul d'EQuilibre Chimique pour la SIdérurgie qui étudie uniquement l'état d'équilibre chimique. Le suivi en taille des particules quant à lui sera traité dans les chapitres 3 et 4.

2.1.1 Modèle de micro-mélange

Le modèle de micro-mélange [5] permet de déterminer si un réacteur est parfaitement agité. Il existe en effet un couplage entre l'hydrodynamique (*e.g.* convection, turbulence) et le transfert diffusionnel du mélange. Un fluide porteur peut ainsi être macroscopiquement homogène et microscopiquement hétérogène sous certaines conditions (*i.e.* diffusion lente vis-à-vis des autres phénomènes intervenant [31]). C'est une notion fondamentale car les réactions chimiques se déroulent à l'échelle moléculaire alors que le transport des éléments se déroule à l'échelle du réacteur.

Il a été vu en §1.2.3 que l'échelle de Kolmogorov η correspond à la plus petite échelle de la turbulence en dessous de laquelle il n'y a plus de turbulence [9]. De la même manière, l'échelle de Batchelor λ_B définit la plus petite échelle en dessous de laquelle les différentes phases ne sont plus mélangées :

$$\lambda_B = Sc^{-\frac{1}{2}}\eta \tag{2.2}$$

avec :

$$Sc = \frac{\nu}{D_i} \tag{2.3}$$

où Sc est le nombre de Schmidt défini comme le rapport de la viscosité cinématique du fluide ν sur la diffusivité de l'élément i. Si $Sc > 1$ alors les échelles de Batchelor et de Kolmogorov sont dissociées et un domaine supplémentaire à ceux liés à l'écoulement §1.2.3 est défini (*cf.* Figure 2.1).

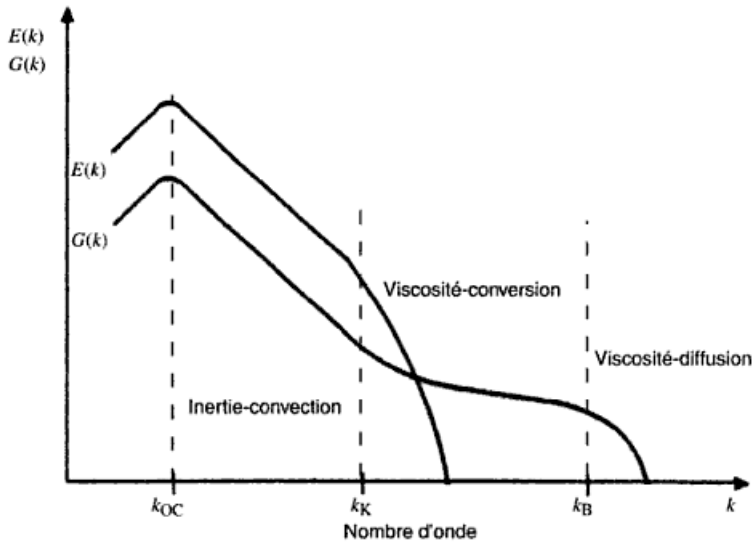


Figure 2.1 : Spectres de l'énergie cinétique turbulente $E(k)$ et des fluctuations de concentration $G(k)$. Les indices des nombres d'ondes représentés (*e.g.* OC, K et B) correspondent respectivement à l'échelle intégrale, de Kolmogorov et de Batchelor [31].

Dans le domaine inertie-convection, les éléments grossiers de fluide sont déformés et fragmentés sans effet notable sur le micro-mélange. Au contraire, dans le domaine de viscosité-conversion, les éléments fluides sont soumis à des étirements laminaires et la diffusion peut progressivement jouer un rôle qu'elle prend totalement dans le domaine de viscosité-diffusion où les gradients de concentration disparaissent. C'est à l'intérieur des deux derniers domaines que les modèles de micro-mélange sont applicables.

Dans les futures simulations numériques et afin de pouvoir utiliser le logiciel MIPPHASOLACIDO, la composition chimique sera considérée comme homogène dans le volume de travail. Cette hypothèse nécessite une faible intensité de ségrégation entre phases (*cf.* ligne du bas de la Figure 2.2).

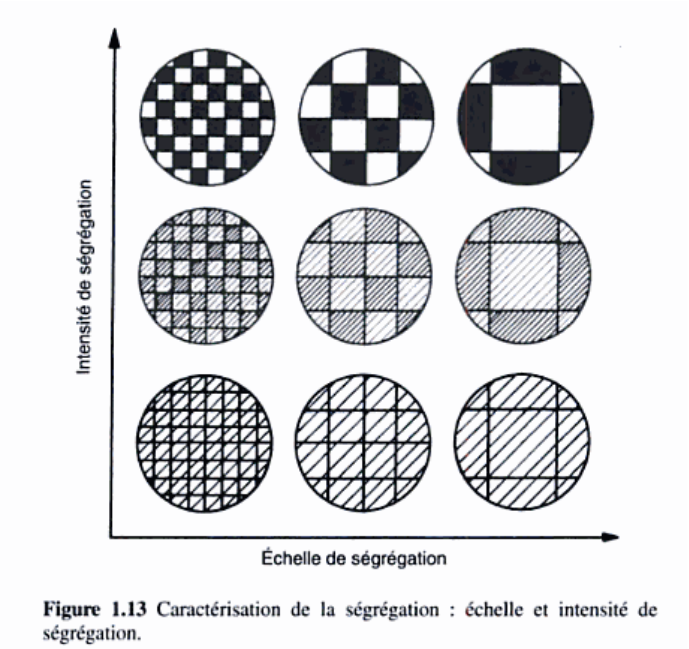


Figure 1.13 Caractérisation de la ségrégation : échelle et intensité de ségrégation.

Figure 2.2 : Représentation de la ségrégation en fonction de son échelle et de son intensité [31].

2.1.2 Germination

La théorie de précipitation présentée ci-après est tirée d'un papier réalisé par Lehmann *et al.* [20] et implantée dans MIPPHASOLACIDO. La germination d'inclusions se produit lorsque l'équilibre chimique n'est pas atteint. Il se crée alors une force motrice de précipitation I ayant pour forme :

$$I = -RT\ln(\mathrm{S}) \tag{2.4}$$

avec :

$$\mathrm{S} = \left(\frac{(a_{\underline{M}})^p (a_{\underline{O}})^q}{K_{M_pO_q} . a_{M_pO_q}} \right)^{\frac{1}{p+q}} \tag{2.5}$$

où R est la constante des gaz parfaits, T est la température absolue, S représente le coefficient de sursaturation [16,17,26,27]. $K_{M_pO_q}$ est le produit de solubilité de l'oxyde M_pO_q dans le métal liquide, $a_{\underline{M}}$ et $a_{\underline{O}}$ sont les activités respectives de l'élément M et de l'oxygène pour une solution diluée à 1%, $a_{M_pO_q}$ est l'activité de M_pO_q dans l'oxyde liquide.

Dans un milieu exempt d'impuretés, la théorie classique de la précipitation homogène [3] permet de calculer le taux de germination J^* de précipité sphérique qui est produit par le déséquilibre chimique :

$$J^* = Z\beta_n \mathrm{N_s} exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T} \right) \tag{2.6}$$

où Z est le facteur de Zeldovitch, β_n est un facteur de fréquence, $\mathrm{N_s}$ est le nombre de sites de germination par unité de volume, ΔG^* est l'énergie d'activation pour former le nucleus critique, k_B est la constante de Boltzmann. Pour la précipitation homogène d'un composé pur dans un liquide pur, le nombre de sites de germination est pris égal à $\mathrm{N_s} = \mathcal{N}_\mathrm{a} / V_{m,Fe}$ où $\mathcal{N}_\mathrm{a}$ est le nombre d'Avogadro et $V_{m,Fe}$ est le volume molaire du fer.

La taille critique de précipitation L^* est obtenue en remarquant que la fonction enthalpie libre ou énergie libre de Gibbs ΔG construite à partir du second principe de la thermodynamique :

$$\Delta G(L) = \underbrace{\sigma \pi L^2}_{Energie\ de\ surface} + \underbrace{\Delta G_v \frac{\pi}{6} L^3}_{Energie\ de\ volume} \tag{2.7}$$

admet une valeur maximale en L^* (*cf.* Figure 2.3). Sa dérivée première est alors nulle à cet endroit :

$$\frac{\Delta G(L^*)}{dL} = \sigma 2\pi L^* + \Delta G_v \frac{\pi}{2} (L^*)^2 = 0 \tag{2.8}$$

où σ est la tension de surface et ΔG_v est l'énergie libre volumique.

L'éq. (2.8) permet d'obtenir l'expression de la taille de précipitation L^* en fonction de la tension de surface σ et de l'énergie libre volumique ΔG_v :

$$L^* = -\frac{4\sigma}{\Delta G_v} \tag{2.9}$$

Remarque 2.1 :
Il y a précipitation uniquement lorsqu'il existe une solution positive à l'éq. (2.8), ce qui implique que ΔG_v soit négatif.

De la même manière, l'utilisation des éqs. (2.7) et (2.9) permet l'écriture de l'énergie d'activation ΔG^* en fonction de la tension de surface σ et de la variation d'énergie libre volumique ΔG_v :

$$\Delta G^* = \Delta G\left(L^*\right) = \frac{16\pi\sigma^3}{3\Delta G_v^2} \tag{2.10}$$

L'éq. (2.7) montre la compétition entre l'énergie nécessaire pour former la surface du cristal et celle pour former le nouveau volume sphérique. La formation d'un nucleus se fera si et seulement si l'énergie de volume devient plus grande en valeur absolue que celle nécessaire à la création de la surface. Ceci implique que la composition du nucleus critique sera celle qui minimisera la variation d'énergie libre volumique ΔG_v :

$$\Delta G_v = I\left(\sum_{i,j} C_{ji} X_i\right) / V_{m,i} \tag{2.11}$$

où pour un oxyde i, C_{ij} est le nombre d'atomes j dans cet oxyde, X_i est la fraction molaire et $V_{m,i}$ est le volume molaire.

Le facteur de Zeldovitch utilisé dans l'éq. (2.6) représente le nombre de monomères d'oxyde qui peuvent être ajoutés ou retirés du nucleus critique sans modifier l'énergie de plus d'un facteur $k_B T$ [40] :

$$Z = \frac{1}{\frac{\pi}{2}\left(L^*\right)^2} \cdot \frac{V_m}{\mathcal{N}_A} \cdot \sqrt{\frac{\sigma}{k_B T}} \tag{2.12}$$

Le facteur de fréquence β_n pour une composition non-stœchiométrique a l'expression suivante:

$$\beta_n = \pi\left(L^*\right)^2 \sum_i \Gamma_i \tag{2.13}$$

où Γ_i représente le nombre de monomères de l'oxyde i qui peuvent être ajoutés par unité de temps et de surface au nucleus. Il existe de nombreuses formulations pour Γ_i. Lehmann *et al.* [20] ont retenu la formulation développée par LeGoues et Aaronson [19] qui est compatible avec une croissance limitée par la diffusion. Elle a été étendue pour une composition stœchiométrique contenant plusieurs éléments :

$$\Gamma_i = \frac{1}{a_0^4}\left(\prod_i \left(D_j x_j\right)^{C_{ij}}\right)^{1/\sum_k C_{ki}} \tag{2.14}$$

où a_0 est la distance interatomique.

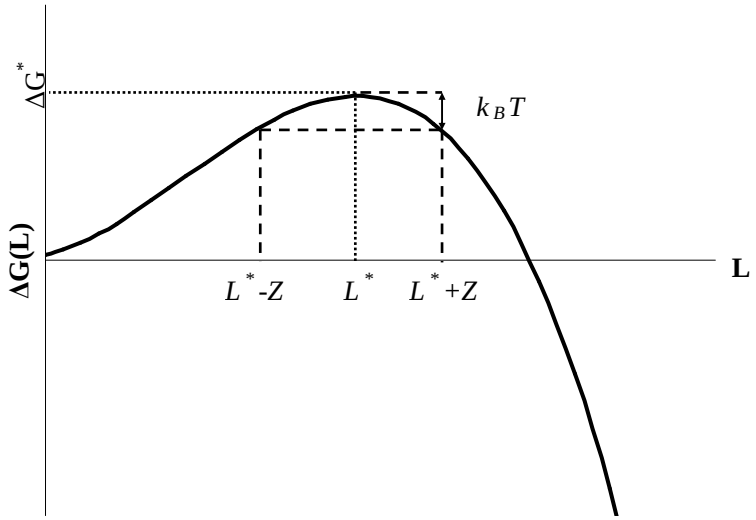


Figure 2.3 : Évolution de l'énergie libre de Gibbs $\Delta G(L)$ avec un maximum ΔG^* pour L^*. Le facteur de Zeldovitch Z rend compte d'une précipitation autour de la taille moyenne de précipitation L^*.

2.1.3 Croissance cristalline

Les théories sur la croissance d'un précipité supposent d'une part que la matière est déposée de façon continue sur les surfaces du cristal (*i.e.* l'état stationnaire diffusionnel est atteint) et d'autre part que les précipités croissent indépendamment les uns des autres (*i.e.* ils sont suffisamment éloignés pour que le gradient de concentration ne soit pas affecté par l'appauvrissement de matière). Le flux de matière par diffusion/transfert de la phase liquide au précipité peut alors être quantifié :

$$\Phi_i = k_i\left(C_i^{(l)} - C_i^{(i)}\right) \tag{2.15}$$

où k_i est le coefficient de transfert de masse et $C_i^{(l)}$ et $C_i^{(i)}$ sont respectivement les concentrations loin dans le liquide et à l'interface. Lorsque la croissance est limitée par la diffusion, le nombre de Sherwood $Sh = k_i L/D_i$ pour une sphère est égal à 2, ce qui revient à dire que le coefficient de transfert de masse est lui égal à $k_i = 2D_i/L$ où L est le diamètre de l'inclusion. Dans le cas d'une croissance limitée par la convection, un facteur correctif F est appliqué au coefficient de transfert de masse [26].

Remarque 2.2 :
Dans les futures études, il sera considéré que la croissance est uniquement limité par la diffusion F=1.

Remarque 2.3 :
La croissance par intégration en surface (*i.e.* incorporation d'atomes ou de molécules dans le réseau cristallin) n'est pas considérée ici.

2.2 Collisions entre particules

Le mécanisme de collision entre particules permet de faire croître rapidement les inclusions surtout en écoulement turbulent. Smoluchowski [25] a postulé qu'une population de particules primaires contient, après une période d'agrégation, n_i particules de taille i, n_j particules de taille j etc. La classification de la population par une caractéristique, ici la taille, a permis de construire les premiers modèles de suivi de particules.

Le calcul du nombre de collisions entre particules va rendre possible l'estimation du nombre de particules qui changent de classe de taille ($i \rightarrow j$). Par simplification, seules les collisions binaires sont considérées. Les collisions multiples sont supposées être une succession de collisions binaires. Le nombre de collisions entre deux classes de particules de tailles i et j par unité de temps est estimé de la manière suivante [8] :

$$\frac{dn_{i+j}}{dt} = \beta_{ij} n_i n_j \tag{2.16}$$

où n représente le taux de particules de la classe considérée (i ou j) et β_{ij} est une constante dépendant des deux classes considérées et de l'écoulement.

L'évolution temporelle du nombre de particules de la classe k avec comme condition $k = i + j$ vaut :

$$\frac{dn_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{i+j \rightarrow k \\ i=1}}^{i=k-1} \beta_{ij} n_i n_j - n_k \sum_{k=1}^{\infty} \beta_{ik} n_i \tag{2.17}$$

Pour un espace de temps donné, le premier terme de droite représente le nombre de particules entrant dans la classe k. Le facteur ½ permet de ne pas compter deux fois la même collision. Le second terme de droite représente le nombre de particules qui sortent de la classe k. Comme le phénomène de brisure des agrégats n'est pas considéré, une particule de la classe k ne peut plus aller dans une classe de taille inférieure. En conséquence, les particules ne peuvent que croître.

La rencontre entre particules est provoquée par une différence de vitesse entre les particules qui est déterminée par leur taille, le régime local d'écoulement ou la différence de densité des particules avec le milieu continu. Trois phénomènes majeurs provoquant les collisions sont alors définis suivant les paramètres cités précédemment :

- le mouvement brownien (agrégation péricinétique),
- l'écoulement laminaire ou turbulent (agrégation orthocinétique),
- et la séparation gravitaire.

Remarque 2.4 :
Il est important de bien distinguer le phénomène de coagulation et celui d'agrégation. La coagulation fait fusionner le volume des entités pour en produire une seule alors que l'agrégation est un phénomène d'assemblage issu de la collision de particules primaires (germes ayant grossi) qui gardent leur individualité. Enfin, l'agglomération est un phénomène d'agrégation où la liaison entre particules primaires est consolidée par la formation d'un col cristallin.

2.2.1 Collision brownienne

A une échelle inférieure à celle de Batchelor λ_B, les particules en suspension peuvent être vues en mouvement aléatoire continu ou déplacement brownien. La différence de vitesse produite par l'agitation thermique ou effet brownien produit un phénomène d'agrégation dit "péricinétique".

Le coefficient de diffusion D_i pour une particule sphérique est donné par l'équation de Stokes-Einstein :

$$D_i = \frac{k_B T}{6\pi R_{c,i} \mu} \tag{2.18}$$

où $R_{c,i}$ est le rayon de collision de la particule i et μ est la viscosité dynamique du fluide porteur.

Sous l'hypothèse que toutes les particules i sont capturées au contact des particules j, les particules i sont effectivement éliminées de la suspension. Un gradient de concentration est établi dans la direction radiale des sphères j fixes. Après un bref instant, le nombre de particules i en mouvement entrant en contact sur des particules j fixes obéit à l'équation suivante :

$$\frac{dn_i}{dt} = 4\pi R_{c,ij} D_i n_i \tag{2.19}$$

où $R_{c,ij}$ est le rayon de collision entre une particule i et une particule j, lequel correspond à la distance centre à centre des deux particules. Le rayon de collision est alors pris égal à la somme des rayons des particules i et j :

$$R_{c,ij} = R_{c,i} + R_{c,j} \tag{2.20}$$

Ce raisonnement serait juste si la sphère j n'était pas elle même en déplacement brownien. Pour corriger, il faut remplacer le coefficient de diffusion D_i par un coefficient de diffusion mutuelle D_{ij}.

$$D_{ij} = D_i + D_j = \frac{k_B T}{6\pi \mu_F} \left(\frac{1}{R_{c,i}} + \frac{1}{R_{c,j}} \right) \tag{2.21}$$

Le nombre de collisions par unité de temps entre deux particules i et j en mouvement obéit à:

$$\frac{dn_{i+j}}{dt} = 4\pi R_{c,ij} D_{ij} n_i n_j \tag{2.22}$$

Le noyau d'agrégation brownien de deux particules sphériques est obtenu en utilisant les éqs. (2.16), (2.20), (2.21) et (2.22) et en identifiant terme à terme :

$$\beta_{ij}^{Brownien} = \frac{2k_B T}{3\mu} \frac{\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^2}{R_{c,i} R_{c,j}} \tag{2.23}$$

Remarque 2.5 :
Si les particules ont le même rayon de collision ($R_{c,i} = R_{c,j}$) alors le noyau brownien se simplifie :

$$\beta_{ij}^{Brownien} = \frac{8k_B T}{3\mu} \tag{2.24}$$

2.2.2 Collisions laminaires et turbulentes

Pour des tailles comprises entre l'échelle de Batchelor λ_B et l'échelle de Kolmogorov η, les particules commencent à subir l'effet des gradients de vitesses au sein de la suspension agitée. Elles ont leurs propres vitesses, différentes de celle de l'écoulement, ce qui donne lieu à plus de collisions.

Pour un cisaillement laminaire uniforme où le gradient de vitesse est constant (*cf.* Figure 2.4), Smoluchowski a construit un noyau d'agrégation dit "orthocinétique" :

$$\frac{dn_{i+j}}{dt} = C'\dot{\gamma}\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^3 n_i n_j \tag{2.25}$$

où C' est une constante qui dépend de l'écoulement et $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement moyen ou gradient local de vitesse.

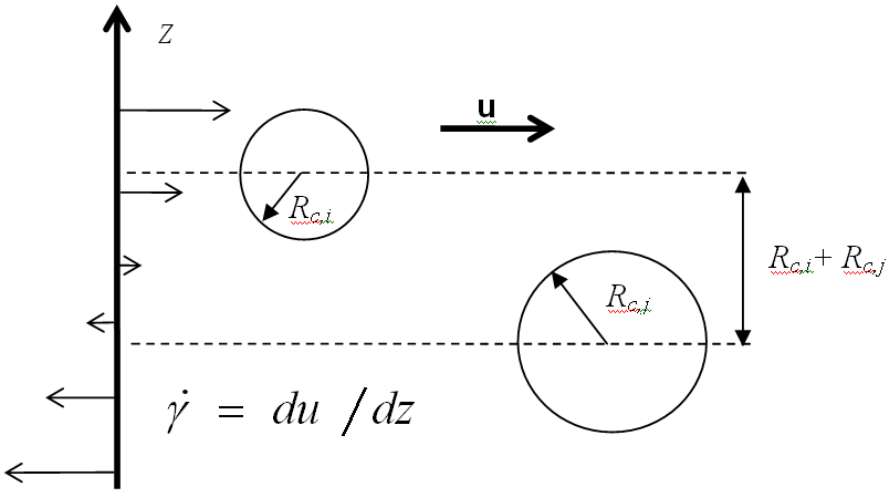


Figure 2.4 : Modèle de collisions orthocinétique de sphères avec un cisaillement uniforme $\dot{\gamma}$ qui provoquent la collision entre deux particules séparées d'une distance égale à leur rayon de collision ($R_{c,i} + R_{c,j}$) [7].

Le noyau d'agrégation orthocinétique prend alors la forme suivante :

$$\beta_{ij}^{\text{Laminaire}} = \frac{4}{3}\dot{\gamma}\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^3 \tag{2.26}$$

avec :

$$\dot{\gamma} = \frac{du}{dz} \tag{2.27}$$

Pour un écoulement turbulent, Saffman et Turner [23] proposent une formulation un peu différente :

$$\beta_{ij}^{\text{Turbulent}} = \sqrt{\frac{8\pi}{15}}\dot{\gamma}\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^3 \tag{2.28}$$

avec :

$$\dot{\gamma} = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\nu}} \tag{2.29}$$

où ε est le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente et ν est la viscosité cinématique du fluide.

Pour un écoulement turbulent, l'expression proposée par Saffman et Turner [23] est la mieux adaptée que l'éq. (2.26). Cependant ce modèle de collision est limité à des particules ayant un rayon de collision inférieur à l'échelle de Kolmogorov.

Pour s'affranchir de cette limite, Zaichik *et al.* [38] ont développé un modèle de collisions de particules inertielles bidispersées en turbulence homogène isotrope quelque soit la taille des particules :

$$\beta_{ij}^{Turbulent} = (8\pi)^{1/2} R_{c,ij}^2 u' \left[f_{u,1} + f_{u,2} - 2 f_{u,1} f_{u,2} \left(1 - \frac{\left(R_{c,ij}/\eta\right)^2}{60^{1/2} Re_\lambda} \right) \right]^{1/2} \tag{2.30}$$

où u' est la vitesse moyenne fluctuante du fluide et Re_λ est le nombre de Reynolds basé sur l'échelle de Taylor définis en §1.2.3.

$$u' \approx \sqrt{\frac{2}{3}k} \tag{2.31}$$

$f_{u,i}$ est le coefficient de réponse de la particule i aux fluctuations de vitesse du fluide. Il donne le degré de couplage entre le fluide et la phase dispersée. Ce coefficient est déterminé par une approximation d'une fonction d'auto-corrélation bi-exponentielle à deux échelles [24] :

$$f_{u,i} = \frac{2\Omega_i + \zeta^2}{2\Omega_i + 2\Omega_i^2 + \zeta^2}, \quad \Omega_i = \frac{\tau_{p,i}}{\tau_L}, \quad \zeta = \frac{\tau_{\lambda_f}}{T_{L_f}} \tag{2.32}$$

avec

$$\tau_{p,i} = \left(\frac{\rho_p}{\rho_F} + \frac{1}{2} \right) \frac{8}{3} \frac{R_{c,i}}{C_{D,i} V_{R,i}} \tag{2.33}$$

$$\overline{\tau}_L = \frac{\tau_{L_f}}{\tau_\eta} = \frac{2\left(\mathrm{Re}_\lambda + 32\right)}{15^{1/2} \cdot 7} \tag{2.34}$$

$$\overline{\tau}_\lambda = \frac{\tau_{\lambda_f}}{\tau_\eta} = \left(\frac{2\,\mathrm{Re}_\lambda}{15^{1/2} C_0} \right)^{1/2}, \quad C_0 = \frac{11 + 7\,\mathrm{Re}_\lambda}{205 + \mathrm{Re}_\lambda} \tag{2.35}$$

où $\tau_{p,i}$, τ_{L_f} τ_{λ_f} et τ_η sont respectivement le temps de réponse de la particule i à l'écoulement, l'échelle intégrale de temps longitudinale, l'échelle temporelle de Taylor longitudinale et l'échelle temporelle de Kolmogorov. Les échelles temporelles intégrale et de Taylor sont différentes des définitions données en §1.2.3 car elles ont été approchées [37]. L'expression de $\tau_{p,i}$ est quasi identique à celle donnée en §1.3.1. Le diamètre d est remplacé par le rayon de collision $2R_{c,i}$. ρ_p et ρ_F sont les densités respectives de la particule et du fluide. V_R représente la vitesse relative entre la particule et le fluide et C_D est le coefficient de trainée de la particule. Lorsque le nombre de Reynolds particulaire est inférieur à 1, la particule est dite en régime de Stokes. Le coefficient de trainée pour une particule sphérique est alors inversement proportionnel au nombre de Reynolds particulaire :

$$C_D = \frac{24}{\mathrm{Re}_p} \tag{2.36}$$

Le tracé du nombre de Galilée [21] :

$$Ga = \frac{8R_{c,i}^3 g\left|\rho_F - \rho_p\right|\rho_F}{\mu^2} \tag{2.37}$$

en fonction du nombre du nombre de Reynolds particulaire montre un changement de régime pour des valeurs de Ga > 10. Au-delà de cette valeur, la particule n'est plus en régime de Stokes et l'éq. (2.36) ne peut plus être utilisée pour calculer le coefficient de traînée. Pour que l'éq. (2.36) reste valable, il faut que le rayon de collision de la particule ne dépasse pas un rayon maximal :

$$R_{c,i}^{\max} = \sqrt[3]{\frac{10\mu^2}{8g\left|\rho_F - \rho_p\right|\rho_F}} \tag{2.38}$$

Au delà de ce rayon maximal, le coefficient de trainée doit être résolu de manière numérique.

Remarque 2.6 :
Pour une particule d'alumine dans l'acier liquide à 1600°C, le rayon de collision maximal est de l'ordre :

$$\left(R_{c,i}^{\max}\right)_{Al_2O_3} = \sqrt[3]{\frac{10\cdot(0.0062)^2}{8\cdot 9.81\cdot\left|7000-3990\right|\cdot 7000}} \cong 61\mu m$$

L'examen de l'éq. (2.30) montre que si les deux particules suivent parfaitement l'écoulement sans retard, les coefficients de réponse $f_{u,i}$ valent 1 et l'expression de Saffman et Turner [23] est retrouvée :

$$\beta_{ij}^{Turbulent} = \left(\frac{8\pi}{15}\right)^{1/2}\sqrt{\frac{\varepsilon}{\nu}}R_{c,ij}^3 \tag{2.39}$$

Au contraire, lorsque les particules se trouvent dans le domaine de la turbulence inertielle, il y a non corrélation entre l'écoulement et les collisions entre particules. Les coefficients de réponse $f_{u,i}$ tendent vers 0 et l'expression du noyau de collision d'Abrahamson [4] est obtenue :

$$\beta_{ij}^{Turbulent} = (8\pi)^{1/2} R_{c,ij}^2 \left(v_i'^2 + v_j'^2 \right)^{1/2} \tag{2.40}$$

où v' est la vitesse fluctuante des particules.

2.2.3 Collisions par séparation gravitaire

Lorsque les particules ou amas ont un diamètre différent et une densité différente de celui du fluide porteur, elles se déplacent à des vitesses différentes. C'est le phénomène de séparation gravitaire où les plus grosses particules vont sédimenter (ou flotter) plus rapidement que les petites. Lorsque la force de pesanteur est l'unique force extérieure, une particule sphérique vérifie l'équation (1.50) définie en §1.3 :

$$\frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = -\frac{\mathbf{u}_F - \mathbf{u}_p}{\tau_p} + \left(\frac{\rho_p - \rho_F}{\rho_p + \frac{\rho_F}{2}} \right) \mathbf{g} \tag{2.41}$$

La vitesse maximale ou vitesse terminale u_T vérifie l'équation suivante :

$$\frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = 0 \tag{2.42}$$

En se plaçant sur un axe vertical, la vitesse terminale de la particule est alors obtenue [21] :

$$u_T = \left| \mathbf{u}_F - \mathbf{u}_p \right| = \left(\frac{\rho_p - \rho_F}{\rho_p + \frac{\rho_F}{2}} \right) g \tau_p \tag{2.43}$$

Le taux de collisions par séparation gravitaire [10] est finalement proportionnel à la différence de vitesse entre les deux particules multiplié par la somme des surfaces de collisions :

$$\frac{dn_{i+j}}{dt} = \left(\frac{8\pi g}{3\rho_F} \right) \left| \rho_p - \rho_F \right| \left| \frac{R_{c,i}}{C_{D,i} V_{R,i}} - \frac{R_{c,j}}{C_{D,j} V_{R,j}} \right| \left(R_{c,i} + R_{c,j} \right)^2 n_i n_j \tag{2.44}$$

soit :

$$\beta_{ij}^{Stokes} = \left(\frac{8\pi g}{3\rho_F} \right) \left| \rho_p - \rho_F \right| \left| \frac{R_{c,i}}{C_{D,i} V_{R,i}} - \frac{R_{c,j}}{C_{D,j} V_{R,j}} \right| \left(R_{c,i} + R_{c,j} \right)^2 \tag{2.45}$$

2.2.4 Efficacité de collision

Une collision est considérée comme efficace quand il y a production d'un agrégat après la collision mais ce n'est pas toujours le cas. Higashitani [13] propose alors l'utilisation d'un coefficient d'efficacité de collisions $\alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right)$ qui prend en compte les forces attractives de Van der Waals-London et l'interaction hydrodynamique des particules lorsqu'elles sont suffisamment proches l'une de l'autre.

Placé devant le noyau de collision, ce coefficient prend une valeur comprise entre 0 (*i.e.* échec de la collision) et 1 (*i.e.* collision réussie). Des modèles développés sur le même principe se retrouvent chez de nombreux auteurs [6,12,15,18,28,29,33]. Ainsi, Van de Ven & Mason [32] utilise une expression faisant intervenir le gradient moyen de vitesse du fluide $\dot{\gamma}$ en écoulement turbulent :

$$\alpha_{ij} = f\,\mathrm{H}^{0.18}\left(36\pi\mu\dot{\gamma}\left(\frac{R_{c,i}+R_{c,j}}{2}\right)^3\right)^{-0.18} \tag{2.46}$$

où f est un paramètre dépendant du diamètre de la particule et H est la constante de Hamaker. Sa valeur n'est pas bien connue pour les oxydes mixtes mais une valeur de 2.3 10^{-20} J est obtenue pour l'alumine seule dans l'acier liquide à 1873 K [28].

L'éq. (2.46) a été initialement écrite pour décrire l'efficacité de collision entre deux particules identiques (*i.e.* ayant les mêmes propriétés) en prenant f égal à 0.79, 0.87 et 0.95 pour des particules de rayons 2, 1 et 0.5 μm. La valeur de f =0.80 sera prise pour les simulations. Gruy *et al.* [12] ont développé une expression plus complète mais son calcul nécessite la résolution d'une intégrale double. Même si l'éq. (2.46) est incomplète, elle permet une estimation rapide du résultat de la collision entre deux particules.

Remarque 2.7 :
Le coefficient d'efficacité, éq. (2.46), a été proposé en premier lieu pour être utilisé avec le noyau de collision turbulent de Saffman et Turner (2.28). Son utilisation est étendue ici au noyau de collision par séparation gravitaire (2.45). Le gradient moyen de vitesse est alors obtenu en utilisant la différence de vitesse terminale entre les deux particules :

$$\dot{\gamma} = \frac{8g}{3\rho_F}\frac{\left|\rho_F-\rho_p\right|}{\left(R_{c,i}+R_{c,j}\right)}\left|\frac{R_{c,i}}{C_{D,i}V_{R,i}}-\frac{R_{c,j}}{C_{D,j}V_{R,j}}\right| \tag{2.47}$$

Remarque 2.8 :
Il est possible de définir un coefficient d'efficacité pour le noyau Brownien. Il tiendrait compte des forces attractives de Van der Waals. Cependant, la concentration en particules est suffisamment grande pour que la concentration critique de coagulation soit atteinte et que sa valeur soit égale à l'unité. Des informations complémentaires peuvent être trouvées dans le livre d'Elimelech *et al.* [8].

2.2.5 Collision globale

Plusieurs phénomènes de collisions, tous reliés à un noyau de collision, ont été présentés précédemment. Ils n'agissent pas tous dans la même plage de taille. Les études numériques qui vont suivre en deuxième partie vont faire intervenir des distributions de particules dont les tailles s'étendent du nanomètre jusqu'au millimètre. De plus, ces particules évolueront dans un écoulement turbulent avec une différence de densité par rapport au fluide porteur. D'une manière générale, le noyau résultant de la contribution totale de ces différents mécanismes, β_{ij}^{Total}, est supposé s'obtenir par simple addition des noyaux cités ci-dessus, sans oublier les termes d'efficacité de collision :

$$\beta_{ij}^{Total} = \beta_{ij}^{Brownien} + \alpha_{ij}^{Turbulent}\beta_{ij}^{Turbulent} + \alpha_{ij}^{Stokes}\beta_{ij}^{Stokes} \tag{2.48}$$

L'utilisation de l'éq. (2.48) peut être justifiée car les trois noyaux d'agrégation ont des domaines de préférences distinctes et observables (*cf.* Figure 2.5).

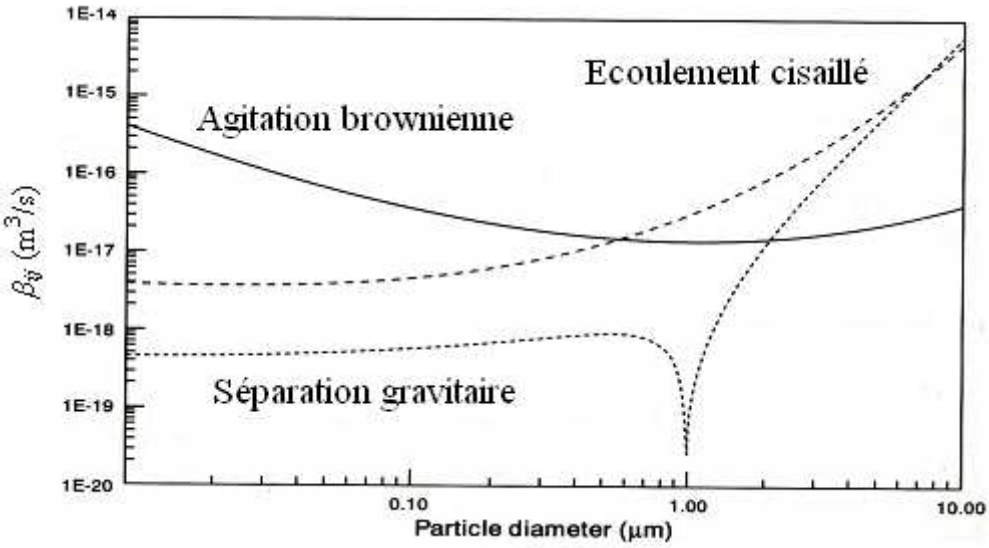


Figure 2.5 : Comparaison des différents mécanismes de collision pour une dispersion aqueuse à 25℃, avec $\dot{\gamma}$ = 50 s^{-1} et ρ_p = 2 kg/m^3. Cette dispersion aqueuse contient des particules dont l'un des diamètres est fixé à 1 μm tandis que le deuxième diamètre varie entre 0.01 et 10 μm [8].

Pour conclure, l'agitation brownienne est un phénomène d'agrégation dominant uniquement pour les collisions binaires dont le rayon de collision totale $R_{c,ij}$ est inférieur à l'échelle de Batchelor λ_B. Tandis que les collisions binaires de particules micrométriques sont plus sensibles à la turbulence et à la séparation gravitaire. Enfin, les fortes valeurs de fréquence de collisions (*e.g.* 10^{-15} m^3/s) doivent être multipliées par le coefficient d'efficacité α_{ij} qui les réduit d'un facteur 10 voire plus pour les très gros agrégats (*i.e.* $R_{c,ij}$ de l'ordre du millimètre).

2.3 Dimension fractale

Un objet fractal est un objet dont la forme est irrégulière et morcelée [8]. C'est un agrégat formé par une succession de collisions ayant conservées la forme initiale des particules élémentaires. Le volume V d'un tel objet obéit à une loi du type :

$$V \propto L^{D_f} \tag{2.49}$$

La taille L correspond à un diamètre caractéristique de l'agrégat et peut être définie de plusieurs façons (sans affecter la forme de la loi précédente) et D_f est appelé dimension fractale.

Durant la précipitation de l'alumine en poche RH (*cf.* Figure 2.6) des objets contenant des bras apparaissent. Le lecteur pourra aussi se référer à l'article de Wakoh et Sano [34] montrant des oxydes d'aluminium juste après leur formation ainsi que celui d'Ooi et *al.* [22] qui observe d'autres formes que l'alumine peut prendre.

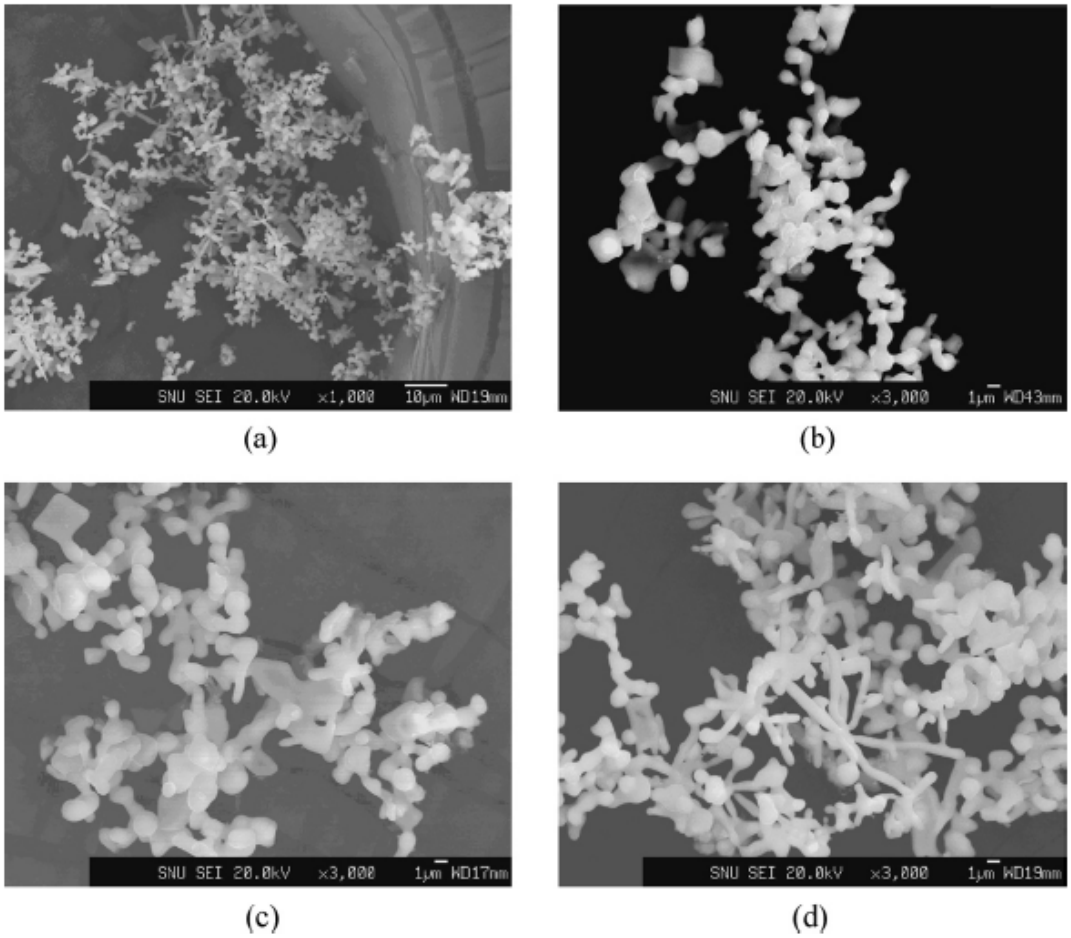


Figure 2.6 : Images d'amas d'alumine avec un microscope à balayage électronique [7].

L'amas est formé de N particules élémentaires ayant L_0 pour taille caractéristique. Lorsqu'il y a coagulation des particules (*cf.* Figure 2.7), l'amas ne contient pas de vide et son volume V_i est alors égal au volume total des particules élémentaire qui le composent :

$$V_i = k_v L_i^3 = N k_v L_0^3 \tag{2.50}$$

où k_v est un facteur de forme volumique et L_i est la taille de l'objet compact. La dimension fractale d'un tel objet est alors D_f = 3.



Figure 2.7 : Coagulation de deux particules sphériques qui entrent en collision.

Le nombre de particules élémentaires qui constitue l'amas s'obtient facilement :

$$N = \left(\frac{L_i}{L_0} \right)^3 \tag{2.51}$$

Lorsque les particules élémentaires ne coagulent pas ensemble, il y a formation d'un agrégat (*cf.* Figure 2.8). Le volume englobant l'agrégat possède un diamètre supérieur à celui qu'il aurait eu si les particules élémentaires avaient coalescé. Par analogie à l'éq. (2.49), le diamètre apparent L_f est défini en utilisant la dimension fractale :

$$L_{f,i} = L_0 N^{1/D_f} = L_0 \left(\frac{L_i}{L_0} \right)^{\frac{3}{D_f}} \tag{2.52}$$

Si D_f = 3, compression maximale de la matière, le diamètre apparent L_f et celui de l'objet compact L_i sont égaux. Si D_f < 3, un vide de matière solide apparait dans le volume englobant l'agrégat tout en gardant constant le volume de particules le constituant. Le diamètre apparent L_f est alors plus grand que celui de l'objet compact L_i augmentant le rayon de collision et l'éq. (2.52) est alors utilisée dans le calcul des noyaux de collisions (*cf.* §2.2).

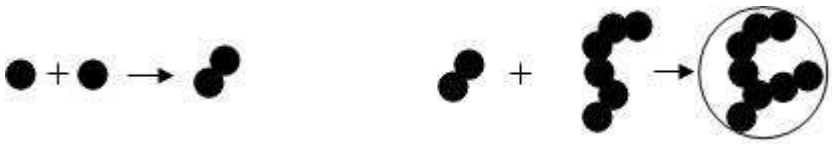


Figure 2.8 : Agrégation de deux particules sphériques et de deux agrégats qui entrent en collision.

La dimension fractale est un paramètre difficile à estimer. Hoekstra et *al.* [14] ont observé plusieurs régimes lors d'expériences de précipitation et d'agrégation de particules d'hydroxycarbonate de nickel en solution aqueuse.

A faible concentration en électrolyte (solution aqueuse de nitrate-nickel), l'agrégation est limitée par la précipitation et les amas croissent en fonction du temps de manière exponentielle (D_f = 2.0 – 2.1), alors qu'avec une forte concentration en électrolyte, l'agrégation prend une forme de loi de puissance (D_f = 1.7 – 1.8).

Dans un écoulement à faible concentration en électrolyte, la dimension fractale D_f est de 2.0 sans cisaillement et passe à 2.7 pour un taux de cisaillement égal à 200 s^{-1}. Cette transition de la dimension fractale est moins prononcée pour un écoulement à forte concentration en

électrolyte. Elle est de 1.7 pour un cisaillement nul et 2.2 pour un taux de cisaillement égal à 200 s^{-1}. L'augmentation de la dimension fractale montre que sous l'effet du cisaillement, les amas ont tendance à se restructurer et à diminuer leurs diamètres apparents L_f.

Par ses observations Hoekstra et *al.* [14] montre que la dimension fractale D_f dépend du cisaillement et de la concentration en particules. Artelt *et al.* [1] ont développé un nouveau modèle assez complet qui décrit l'évolution de la dimension de la manière suivante :

$$D_f = \begin{cases} D_{f,\min} + \left(D_{f,0} - D_{f,\min}\right)^{1/\tau^s} & \tau \le 1 \\ D_{f,\max} - \left(D_{f,\max} - D_{f,0}\right)^{\tau^s} & \tau > 1 \end{cases} \tag{2.53}$$

avec :

$$\tau = \frac{t_c}{t_r} \tag{2.54}$$

$$t_c = \left(\overline{\beta} n_i\right)^{-1} \tag{2.55}$$

$D_{f,\min}$ et $D_{f,\max}$ sont respectivement la valeur minimum et maximum de la dimension fractale correspondant aux deux cas limites t_c << t_{λ_f} et t_c >> t_{λ_f} . t_c est le temps caractéristique de collisions. $\overline{\beta}$ est la fréquence moyenne de collision. t_r est le temps de restructuration pris égale à l'échelle de Taylor de temps longitudinale t_{λ_f} . $D_{f,0}$ est la dimension fractale lorsque les temps caractéristiques des deux processus sont égaux. Elle est obtenue par moyenne arithmétique. s est un paramètre qui définit la pente de la variation de la dimension fractale.

Remarque 2.9 :
Dans un premier temps, la dimension fractale ne sera pas prise en compte dans les simulations numériques (D_f = 3). L'utilisation d'une dimension fractale constante (1.7<D_f <3) sera réalisée dans le chapitre 5.

2.4 Extraction des inclusions du bain d'acier

Les particules solides produites au cours des différents traitements de l'acier liquide vont être extraites par séparation gravitaire, déposition pariétale et par flottation. Le laitier en surface rend l'élimination des impuretés plus efficace car les oxydes y sont piégés.

2.4.1 Extraction aux parois et au laitier

Tian et Ahmadi [30] ont développé une formule, basée sur les travaux de Wood [36], qui permet d'évaluer la vitesse de déposition de particules sphériques solides transportées dans l'air dans une conduite (*cf.* Figure 2.9) :

$$u_{p,i} = u_d^+ u^* = \left(0.057 Sc_i^{-\frac{2}{3}} + 4.5\times10^{-4}\left(\tau_{p,i}^+\right)^2 \right) u^* + u_{T,i} \tag{2.56}$$

avec :

$$u^* = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho_F}} \tag{2.57}$$

$$\tau_{p,i}^+ = \tau_{p,i} \frac{\left(u^*\right)^2}{\nu} \tag{2.58}$$

où u^* est la vitesse de frottement de l'écoulement et τ_w est la contrainte de cisaillement à la paroi.

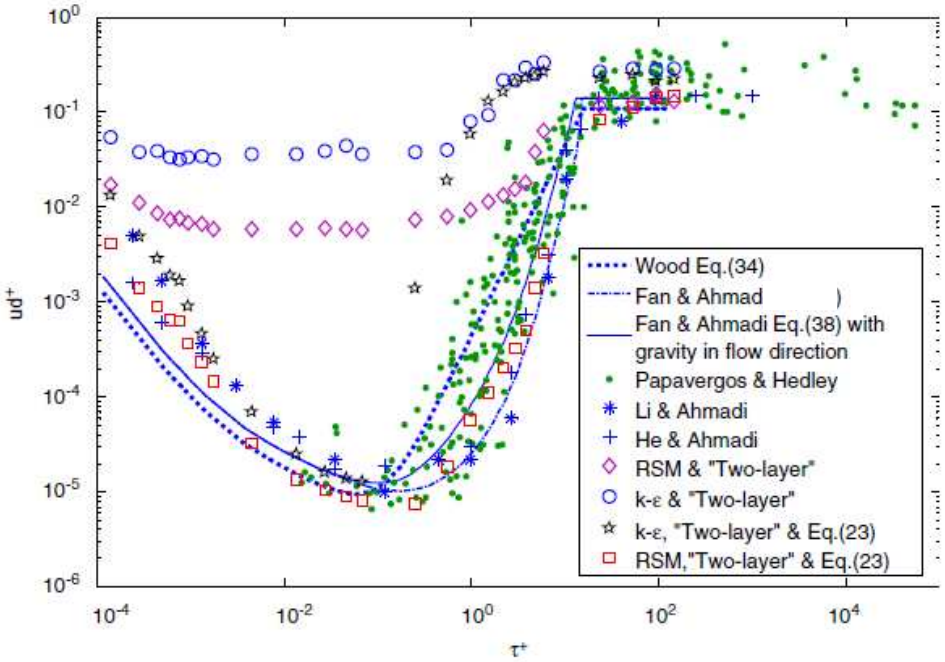


Figure 2.9 : Représentation adimensionnée de la vitesse de déposition en fonction du temps de relaxation de la particule. Plusieurs modèles numériques sont comparés notamment ceux pouvant être sélectionné dans des codes de mécanique des fluides comme Fluent® (*i.e.* les quatre derniers modèles) [30]. Tandis que les modèles RSM & "Two-layer" et $k-\varepsilon$ & "Two-layer" surestiment la vitesse de déposition des particules ayant un faible temps de relaxation, les autres modèles sont dans l'ensemble en assez bon accord.

La partie entre parenthèses du terme de droite de l'éq. (2.56) prend en compte la déposition brownienne (premier terme) et turbulente (second terme) tandis que le dernier terme de droite correspond à la vitesse terminale définie en §2.2.3. La vitesse terminale intervient uniquement sur des surfaces non verticales, la forme donnée par (2.56) correspondant à une surface horizontale.

En première approximation, l'interface acier/laitier est considérée comme une interface sans cisaillement. Par conséquent, la vitesse de cisaillement u^* dans l'éq. (2.56) est nulle et seul le phénomène de séparation gravitaire participe à l'extraction à travers cette interface. Cependant, l'interface réelle subit sur toute sa surface des perturbations produites par le brassage. L'ordre de grandeur de ces perturbations est environ égal à la vitesse turbulente des grandes échelles et donc la vitesse de cisaillement u^* peut être prise égal à la vitesse fluctuante u' définit en §1.2.3.

2.4.2 Extraction par les bulles

La flottation ou extraction par les bulles est réalisée par attachement des inclusions sur la surface des bulles (*cf.* Figure 2.10). La probabilité de collision et d'attachement entre les inclusions et les bulles peut être calculée. Les bulles de gaz ont une densité si faible par rapport à l'acier liquide qu'elles traversent l'interface acier/laitier où les inclusions sont finalement piégées. Le lecteur pourra retrouver deux méthodes pour calculer cette probabilité de collision dans les articles d'Aoki *et al.* [2] et de Wang *et al.* [35].

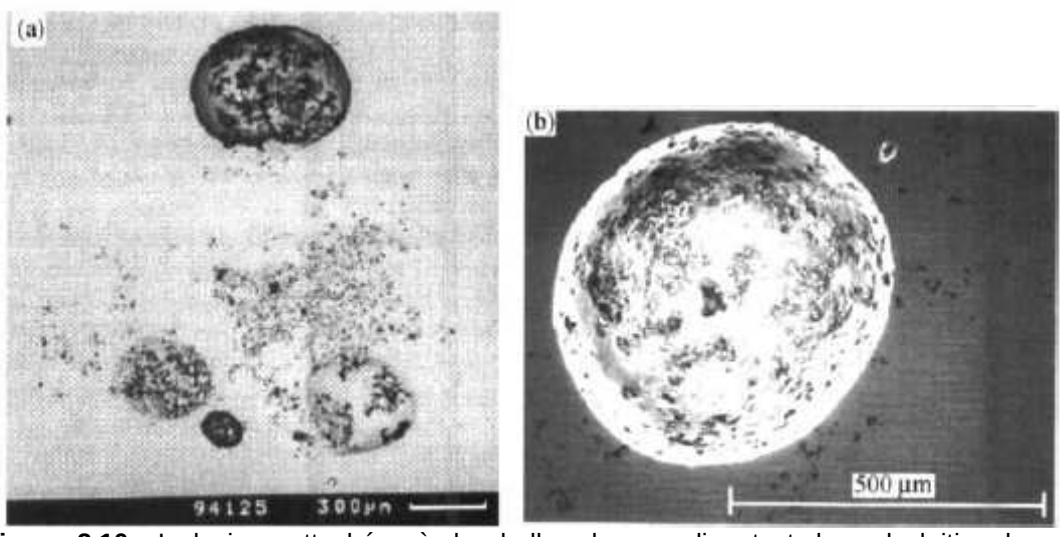


Figure 2.10 : Inclusions attachées à des bulles dans un lingot et dans du laitier de coulée continue [39]. Les inclusions ressortent en noire sur les bulles qui sont blanches.

Remarque 10 :
Pour accélérer les simulations numériques, l'écoulement est d'abord résolu puis arrêté lorsque l'état stationnaire est considéré comme atteint. Les bulles sont alors figées ainsi que les zones de collision entre bulles et particules. Pour cette raison, l'extraction des inclusions par les bulles ne sera pas prise en compte.

2.5 Conclusions

Alors que MIPPHASOLACIDO se concentre sur les phénomènes de précipitation, croissance par diffusion et remise en solution, les phénomène d'agrégation et d'extraction des précipités sont assurés par un bilan de population. Différentes méthodes de résolution de l'équation de bilan de population sont par ailleurs présentées dans les chapitres 4 et 5.

Le couplage de la thermodynamique avec la mécanique des fluides permet de faire évoluer la composition chimique du réacteur. Comme il a été montré, cela n'est pas suffisant pour décrire correctement la composition chimique. En effet, des phases transitionnelles existent et restent parfois jusqu'à la fin du traitement. L'ajout d'un bilan de population doit permettre de vérifier la présence et la persistance de ses dites phases.

Deux paramètres (*i.e.* dimension fractale et capture par les bulles) cités dans ce chapitre n'interviendront pas dans les simulations numériques. Cela ne gène en rien la qualité des résultats de ces simulations. Il faudra cependant en tenir compte lors de la lecture des résultats

concernant le temps de désoxydation de la poche. En effet, le temps de désoxydation aura certainement une valeur plus faible du fait qu'un mécanisme d'extraction n'est pas pris en compte et que la taille des particules intervient directement dans le calcul de la vitesse de déposition.

Bibliographie

[1]: Artelt C., Schmid H.J., Peukert W., (2003), "On the relevance of accounting for the evolution of the fractal dimension in aerosol process simulations", *Journal of Aerosol Science*, **34**, pp. 511-534.

[2]: Aoki J., Zhang L., Thomas B.G., (2005), "Modeling of inclusion removal in ladle refining", Internal report of Illinois University at Urbana-Champaign.

[3]: Aaronson H.I., Lee J.K., (1978), "Precipitation processes in solids", *editions K.C. Russel et H.I. Aaronson, Conference Proceeding of the Metallurgical Society of AIME, Warrendale, PA*, p. 31.

[4]: Abrahamson J., (1975), "Collision rates of small particles in a vigorously turbulent clouds", *Journal of Fluid Mechanics*, **1**, 16.

[5]:Baldyga J., Bourne J.R., (1984), "A fluid mechanical approach to turbulent mixing and chemical reaction part II: Micromixing in the light of turbulence theory. Part III: Computational and experimental results for the new micromixing model". *Chemical Engineering Communications*, **28**, pp. 231-281.

[6]: Cournil M., Gruy F., Gardin P., Saint-Raymond H., (2006), "Modelling of solid particle aggregation dynamics in non-wetting liquid medium", *Chemical Engineering Process*, **45**, pp. 586-597.

[7]: Doo W.C., Kim D.Y., Kang S.C., Yi K.W., (2007), "Measurement of the 2-dimensional fractal dimension of alumina clusters formed in an ultra low carbon steel melt during RH process", *ISIJ International*, **47**(7), pp. 1070-1072.

[8]: Elimelech M., Gregory J., Jia X., Williams R., (1995), "Particle deposition and aggregation", *Colloid and Surface Engineering Series*, *Butterworth-Heinemann Ltd*, USA.

[9]: Fox R.O., (2003), "*Computational models for turbulent reacting flows*", Cambridge University Press.

[10]: Friedlander S.K., (1977), "*Smoke, dust and haze*", John Wiley, New York.

[11]: Grosch R., Briesen H., Marquardt W., (2007), "Generalization and numerical investigation of QMOM", *AIChE Journal*, **53**, 1.

[12]: Gruy F., Cournil M., Cugniet P., (2005), "Influence of nonwetting on the aggregation dynamics of micronic solid particles in a turbulent medium", *Journal of Colloid and Interface Science*, **284**, pp. 548-559.

[13]: Higashitani K., Yamauchi K., Matsuno Y., Hosokawa G., (1983), "Turbulent coagulation of particles dispersed in a viscous fluid", *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **16**, pp. 299-304.

[14]: Hoekstra L.L., Vreeker R., Agterof W.G.M., (1992), "Aggregation of colloidal nickel hydroxycarbonate studied by light scattering", *Journal of Colloid and Interface Science*, **151**(1), pp. 17-25.

[15]: Johansen S.T., Taniguchi S., (1998), "Prediction of agglomeration and break-up of inclusions during metal refining", *The Minerals, Metals & Materials Society*, pp. 855-861.

[16]: Kashchiev D., (2000), "*Nucleation : basic theory and applications*", Butterworth-Heinemann Ltd, London.

[17]: Klein J.P., Boistelle R., Dugua J., (2003) "*Cristallisation : aspects théoriques*", Techniques de l'ingénieur, **J1 500**, pp. 1-21.

[18]: Kusters K., Wijers J.G., Thoenes D., (1997), “Aggregation kinetics of small particles in agitated vessels”, *Chemical Engineering Science*, **52**(1), pp. 107-121.

[19]: LeGoues F.K., Aaronson H.I., (1984), “Influence of crystallography upon critical nucleus shapes and kinetics of homogeneous FCC-FCC nucleation – IV. Comparisons between theory and experiment in Cu-Co alloys”, *Acta Metallurgica*, **32**(10), pp. 1855-1864.

[20]: Lehmann J., Rocabois P., Gaye H., (2001), “Kinetic model of non metallic inclusions precipitation during steel solidification”, *Journal of Non-Crystalline Solids*, **282**, pp. 61-71.

[21]: Oesterlé B., (2006), “*Ecoulements multiphasiques : des fondements aux méthodes d’ingénierie*”, Hermes Sciences – Lavoisier, Paris.

[22]: Ooi H., Sekine T., Kasai G., (1975), “On the mechanisms of alumina cluster formation in molten iron”, *Transactions ISIJ*, **15**, pp. 371-379.

[23]: Saffman P.G., Turner J.S., (1956), “On the collision of drops in turbulent clouds”, *Journal of Fluids Mechanics*, **1**, pp. 16-30.

[24]: Sawford B.L., (1991), “Reynolds number effects in Lagrangian stochastic models of turbulent dispersion”, *Physics of Fluids A*, **3**, 1577.

[25]: Smoluchowski M., (1917), “Versuch einer mathematischen theorie der Koagulationskinetic kolloider lösungen”, *Zeitschrift für Physicalische Chemie*, **92**, pp. 129-168.

[26]: Söhnel O., Gardside J., (1992), “*Precipitation: basic principles and industrial applications*”, Butterworth-Heinemann Ltd, London.

[27]: Sommer de Gélicourt Y., (2004), “Précipitation turbulente d’oxalate d’uranium en réacteur vortex : etude expérimentale et modélisation”, *Thèse INPL, CEA Valrhô*.

[28]: Taniguchi S., Kikuchi A., Ise T., Shoji N., (1996), “Model experiment on the coagulation of inclusion particles in liquid steel”, *ISIJ International*, **36**, Supplement, pp. S117-S120.

[29]: Taniguchi S., Nakaoka T., Matsumoto K., (2003), “Turbulent agglomeration of inclusion particles in liquid metal”, *Japan-Korean Iron & Steelmaking Work Shop,* 3/30-31/2003.

[30]: Tian L., Ahmadi G., (2007), “Particle deposition in turbulent duct flows-comparisons of different model predictions”, *Journal of Aerosol Science*, **38**, pp. 377-397.

[31]: Trambouze P., Euzen J.P., (2002), “*Les réacteurs chimiques : de la conception à la mise en œuvre”*, Institut Français du Pétrole aux éditions TECHNIP.

[32]:Van de Ven T.G.M., Mason S.G.,(1977), “The microrheology of colloidal suspensions. VII. Orthokinetic doublet formation of spheres”, *Colloid and Polymer Science*, **255**, pp. 468-479.

[33]: Vanni M., Baldi G., (2002), “Coagulation efficiency of colloidal particles in shear flow”, *Advances in Colloid and Interface Sciences,* **97**, pp. 151-177.

[34]: Wakoh M., Sano N., (2007), “Behavior of alumina inclusions just after deoxidation”, *ISIJ International*, **47**(5), pp. 627-632.

[35]: Wang L.T., Zhang Q.Y., Peng S.H., Li Z.B., (2005), “Mathematical model for growth and removal of inclusion in a multi-tuyere ladle during gas-stirring”, *ISIJ International*, **45**(3), pp. 331-337.

[36]: Wood N.B., (1981), “A simple method for the calculation of turbulent deposition to smooth and rough surfaces”, *Journal of Aerosol Sciences*, **12**(3), pp. 275-290.

[37]: Zaichik L.I., Simonin O., Alipchenkov V.M., (2003), “Two statistical models for predicting collision rates of inertial particles in homogeneous isotropic turbulence”, *Physic of Fluids*, **15**, pp. 2995-3005.

[38]: Zaichik L.I., Simonin O., Alipchenkov V.M., (2006), “Collision rates of bidisperse inertial particles in isotropic turbulence”, *Physic of Fluids*, **18**, pp. 1-13.

[39]: Zhang L., Thomas B.G., (2006), “Numerical simulation on inclusion transport in continuous casting mold”, *Journal of University of Science and Technology Beijing*, **13**(4), pp. 293-300.

[40]: Zeldovitch J.B., (1948), *Acta Physicochim.*, **18**, p. 17.

Chapitre 3

Suivi de la population d'inclusions d'oxydes

Le traitement de l'acier en poche contribue à l'extraction de l'oxygène dissous. La grande affinité de certains éléments avec l'oxygène (*e.g.* aluminium, calcium, manganèse, silicium et titane) permet sa précipitation en oxyde solide (*e.g.* alumine) ou liquide (*e.g.* aluminate de calcium sous certaines conditions).

Le réacteur étudié contient une phase continue (acier liquide) et de une à plusieurs phases dispersées qui sont formées par les différentes inclusions. Ces précipités ont des tailles et des compositions assez mal connues rendant nécessaire leurs suivis par l'utilisation d'un bilan de population.

3.1 Le bilan de population

Un bilan de population (PB) est une manière de décrire l'évolution au cours du temps et dans l'espace d'une population d'entités dénombrables qui possèdent un certain nombre de propriétés. Il existe différents modèles de bilan de population mais ils sont tous appropriés pour décrire les processus de transport et de cinétique réactionnelle des systèmes de phase dispersée.

L'équation du bilan de population (PBE) fait alors le lien entre la cinétique réactionnelle, l'hydrodynamique du réacteur et le vecteur propriété des particules. La PBE est basée sur la fonction de densité en nombre qui possède de nombreuses définitions [8,17] suivant les propriétés étudiées de la population. Ainsi, à chaque particule correspondent des coordonnées du vecteur propriété $\boldsymbol{\xi} \equiv (\xi_1,...,\xi_p)$ qui caractérisent son état interne (*e.g.* longueur, surface, volume). La fonction densité en nombre est alors définie comme une fonction du vecteur propriété :

$$n(\xi_1,...,\xi_p;\mathbf{x},t)d\xi_1,...,d\xi_p = n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)d\boldsymbol{\xi} \tag{3.1}$$

où n représente le nombre de particules à l'instant t en $\mathbf{x}$ ayant une valeur du vecteur propriété comprise entre $\boldsymbol{\xi}$ et $\boldsymbol{\xi}+d\boldsymbol{\xi}$ par unité de volume. Pour un système particulaire obtenu dans un réacteur idéal (*i.e.* homogène), l'équation de conservation de la fonction de densité en nombre s'écrit :

$$\frac{\partial n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \xi_j}\left[n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)\zeta_j\right] = h(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t) \tag{3.2}$$

où $h(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)$ est le taux net d'introduction de nouvelles particules dans le système [8] et ζ_j le flux de ξ_i tel que :

$$\zeta_j \equiv \frac{d\xi_i}{dt} \quad (i \in [\![1; p]\!]) \tag{3.3}$$

Ce qui donne pour un système particulaire hétérogène [18] la PBE suivante :

$$\frac{\partial n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)}{\partial t} + \overline{u_i}\frac{\partial n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left[(\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)}{\partial x_i}\right] = -\frac{\partial}{\partial \xi_j}\left[n(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t)\zeta_j\right] + h(\boldsymbol{\xi};\mathbf{x},t) \tag{3.4}$$

où $\overline{u_i}$ est la vitesse moyenne et Γ_s et Γ_t sont respectivement la diffusivité moléculaire et turbulente du fluide définies en §1.2.2. Les termes de gauche de l'éq. (3.4) correspondent au transport des particules alors que les termes de droite décrivent l'évolution du vecteur propriété de ces particules.

3.2 Résolution de l'équation de bilan de population

La résolution de la PBE permet de suivre une ou plusieurs des propriétés caractéristiques de la phase dispersée (*e.g.* taille, surface, volume, composition chimique). L'équation du bilan de population d'un système homogène où se déroulent simultanément précipitation, croissance cristalline et agrégation, en prenant la taille des particules L comme unique coordonnée interne, donne l'expression suivante :

$$\frac{\partial n(L;\mathbf{x},t)}{\partial t} + \overline{u_i}\frac{\partial n(L;\mathbf{x},t)}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left[(\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial n(L;\mathbf{x},t)}{\partial x_i}\right] = -\frac{\partial}{\partial L}\left[G(L;\mathbf{x},t)n(L;\mathbf{x},t)\right] + h(L;\mathbf{x},t) \tag{3.5}$$

avec

$$h(L;\mathbf{x},t) = J^*(\mathbf{x},t)\delta\left(L - L^*\right) + B(L;\mathbf{x},t) - D(L;\mathbf{x},t) \tag{3.6}$$

où $G(L;\mathbf{x},t)$ est la vitesse de croissance, $J^*(\mathbf{x},t)$ est la vitesse de germination, $\delta\left(L - L^*\right)$ est la fonction Dirac, et $B(L;\mathbf{x},t)$ et $D(L;\mathbf{x},t)$ sont respectivement les vitesses d'apparition et de disparition dans la classe [L ;L+dL] dues à l'agrégation des particules.

Les taux de germination et de croissance sont donnés par la thermodynamique (*cf.* §2.1) alors que l'agrégation dépend de la taille des particules et de l'écoulement (*cf.* §2.2).

Smoluchowski (1917) a débuté les travaux sur l'étude du phénomène d'agrégation pour un système discret d'interactions entre monomères [21]. Ces résultats ont depuis été repris et les formulations trouvées peuvent être réécrites pour un système continu et pour une particule de volume v_1 comme suit [12,13] :

$$B'(v_1;\mathbf{x},t) = \frac{1}{2}\int_0^v \beta'(v_1 - v_2, v_2)n'(v_1 - v_2;\mathbf{x},t)n'(v_2;\mathbf{x},t)dv_2 \tag{3.7}$$

$$D'(v_1;\mathbf{x},t) = n'(v_1;\mathbf{x},t)\int_0^\infty \beta'(v_1, v_2)n'(v_2;\mathbf{x},t)dv_2 \tag{3.8}$$

où $n'(v_1;\mathbf{x},t)$ est la fonction densité en nombre avec le volume de la particule comme coordonnée interne, $B'(v;\mathbf{x},t)$ et $D'(v;\mathbf{x},t)$ sont respectivement les vitesses d'apparition et de

disparition dans la classe [*v ; v+dv*] dues à l'agrégation des particules et $\beta'(v_1, v_2)$ le noyau de collision entre les particules de volume v_1 et v_2.

L'éq. (3.7) calcule le nombre de particules qui ont le volume v_1 après collision, alors que l'éq. (3.8) calcule le nombre de particules qui n'ont plus le volume v_1 après collision. Le coefficient ½ de l'éq. (3.7) permet de ne pas compter deux fois la même collision,

Afin d'introduire ces deux formulations dans l'éq. (3.5), il est nécessaire de réaliser un changement de variable. Dans l'hypothèse que le volume et la longueur sont reliés ($v \sim L^3$), il vient alors que :

$$B(L_1;\mathbf{x},t) = \frac{L_1^2}{2}\int_0^L \frac{\beta[(L_1^3 - L_2^3)^{1/3}, L_2]}{(L_1^3 - L_1^3)^{2/3}} n[(L_1^3 - L_1^3)^{1/3};\mathbf{x},t)]n(L_2;\mathbf{x},t)dL_2 \tag{3.9}$$

$$D(L_1;\mathbf{x},t) = n(L_1;\mathbf{x},t)\int_0^\infty \beta(L_1, L_2)n(L_2;\mathbf{x},t)dL_2 \tag{3.10}$$

où L_1 et L_2 sont les tailles des particules de volumes respectifs v_1 et v_2.

La méthode des classes (DPB), la méthode standard des moments (SMM), la méthode de quadrature des moments (QMOM) et la méthode directe de quadrature des moments (DQMOM) sont des méthodes qui résolvent l'éq. (3.5). Elles vont être présentées ici succinctement. Le lecteur pourra trouver d'autres méthodes dans l'ouvrage de Ramkrishna [17] (*e.g.* méthode de Monte-Carlo, méthode des approximations successives).

Dans la suite de l'ouvrage, afin d'alléger l'écriture et la lecture des équations, les coordonnées externes (*i.e.* $\mathbf{x}$ et t) ne seront plus apparentes. De plus, seul le diamètre des particules L sera considéré comme coordonnée interne.

3.2.1 Méthode des classes

La méthode des classes discrétise le domaine d'étude soit d'une manière linéaire (*e.g.* série arithmétique) ou soit de manière non linéaire (*e.g.* série géométrique). Lorsque les phénomènes physiques étudiés font croitre lentement la coordonnée interne, ici le diamètre de particule L, alors l'utilisation d'une suite arithmétique est plus appropriée avec la raison r calculée de la manière suivante :

$$r = \frac{L_{\max} - L_{\min}}{N_c} \tag{3.11}$$

où N_c est le nombre de classes prises sur l'intervalle [L_{max} ; L_{min}].

Cette discrétisation permet une étude fine de l'évolution de la distribution en taille des particules (PSD). Cependant, si le domaine d'étude est trop étendu, ce qui est le cas pour le phénomène d'agrégation, il est nécessaire d'utiliser une série de type géométrique de raison r égale à :

$$r = \frac{L_{i+1}}{L_i} = 2^{1/3} \tag{3.12}$$

Dans sa formulation initiale [7], la méthode des classes est appliquée uniquement à une croissance cristalline avec agrégation. Le modèle définit quatre mécanismes d'interaction binaire produisant deux flux de particules entrantes et deux flux de particules sortantes pour l'agrégation [11] :

1) apparition d'une nouvelle particule dans la classe i par agrégation entre une particule de la classe (i-1) avec une particule de la classe (i-2),
2) apparition d'une nouvelle particule dans la classe i par agrégation entre deux particules de la classe (i-1),
3) disparition d'une particule de la classe i par agrégation d'une particule de la classe i avec une particule de classe inférieure,
4) disparition d'une particule de la classe i par agrégation d'une particule de la classe i avec une particule de classe égale ou supérieure.

Ce modèle nécessite de poser l'hypothèse que toutes les particules soient constituées de 2^{i-1} monomères (*i.e.* seul les amas ayant 1, 2, 4, 8, etc. particules élémentaires existent).

Le modèle final consiste à la résolution de l'équation de bilan de population suivante :

$$\frac{\partial n(L_i)}{\partial t} + \overline{u}_i \frac{\partial n(L_i)}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left[(\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial n(L_i)}{\partial x_i}\right] = S(L_i) \tag{3.13}$$

avec :

$$\begin{aligned} S(L_i) = {} & \frac{2G(L_i)}{(1+r)L_i}\left(\frac{r}{r^2-1}n(L_{i-1}) + n(L_i) - \frac{r}{r^2-1}n(L_{i+1})\right) \\ & + \underbrace{n(L_{i-1})\sum_{j=1}^{i-2} 2^{j-i+1}\beta(L_{i-1}, L_j)n(L_j)}_{1} + \underbrace{\frac{1}{2}\beta(L_{i-1}, L_{i-1})n(L_{i-1})^2}_{2} \\ & - \underbrace{n(L_i)\sum_{j=1}^{i-1} 2^{j-i}\beta(L_i, L_j)n(L_j)}_{3} - \underbrace{n(L_i)\sum_{j=i}^{N_C}\beta(L_i, L_j)n(L_j)}_{4} \end{aligned} \tag{3.14}$$

où les numéros en dessous des quatre termes d'agrégation correspondent à la description précédente.

Cette méthode de résolution est intéressante lorsque peu de classes sont utilisées (20 à 30). Plus le nombre de classes est important, plus son utilisation est coûteuse en temps de calcul car chaque classe est transportée indépendamment des autres.

3.2.2 Méthode standard des moments

La méthode standard des moments (SMM) diffère de la méthode des classes discrétisées (DPB) car elle résout les équations des moments de bas-ordre qui sont associés à la fonction densité n. Ces moments sont construits de la manière suivante :

$$m_k = \int_0^\infty n(L) L^k dL \tag{3.15}$$

où k est l'ordre du moment. m_0 est le nombre de particules et $d_{10} = m_0/m_1$, $d_{32} = m_3/m_2$ et $d_{43} = m_4/m_3$ sont respectivement le diamètre moyen, le diamètre de Sauter et le diamètre de De Broucker (*cf.* Annexe 2).

L'équation de transport de la fonction de densité en nombre ou éq. (3.5) se transforme alors en une équation de transport de moments :

$$\frac{\partial m_k}{\partial t} + \overline{u_i}\frac{\partial m_k}{\partial x_i} - \frac{\partial}{\partial x_i}\left[\Gamma_t \frac{\partial m_k}{\partial x_i}\right] = \int_0^\infty k L^{k-1} G(L) n(L) dL + (0)^k J^* + B_k(L) - D_k(L) \tag{3.16}$$

Les termes de droite représentent respectivement la convection le long de la coordonnée interne L, la germination et les taux de naissance et de disparition par agrégation. Ces deux derniers termes sont déterminés en posant $L_2^3 = L^3 - L_1^3$ et en inversant l'ordre de l'intégration [9] :

$$B_k(L) = \frac{1}{2}\int_0^\infty n(L_1)\int_0^\infty \beta(L_1, L_2)\left(L_1^3 + L_2^3\right)^{k/3} n(L_2) dL dL_2 \tag{3.17}$$

$$D_k(L) = \int_0^\infty L^k n(L)\int_0^\infty \beta(L, L_1) n(L_1) dL_1 dL \tag{3.18}$$

Cependant, l'éq. (3.16) n'a de solution analytique qu'en présence d'une croissance en surface de type $G(L) = a + bL$ et sans agglomération. Dans tous les autres cas, la méthode standard des moments n'est pas fermée en partie à cause de l'exposant $k/3$ de l'éq. (3.17). Ce problème de fermeture soulevé par Hulburt & Katz [8] limite l'utilisation de SMM à des cas simples de précipitation-croissance.

Remarque 3.1 :
Marchisio *et al.* [10] ont tout de même démontré qu'il était possible de résoudre l'éq. (3.16) dans le cas d'une précipitation-croissance avec une agrégation constante β_0. Le problème de fermeture, qui provient de l'exposant $k/3$ de l'éq. (3.17) et qui empêche la résolution analytique des moments dont l'ordre est différent de $3n$ $(n \in \mathrm{N})$, est résolu par l'utilisation d'un développement limité de Taylor du terme $\left(v^3 + L_2^3\right)^{k/3}$. Tous les moments sont alors accessibles à partir des trois seuls moments résolus :

$$m_k = m_0^{\frac{1}{2}\left(\frac{k}{3}-1\right)\left(\frac{k}{3}-2\right)} m_3^{\frac{k}{3}\left(2-\frac{k}{3}\right)} m_6^{\frac{k}{6}\left(\frac{k}{3}-1\right)} \tag{3.19}$$

Remarque 3.2 :
Dans les cas d'agrégation et de brisure pures, le problème de fermeture disparait quand le volume de la population est utilisé à la place du diamètre [1] (*i.e.* l'exposant k/3 de l'éq. (3.17) n'apparait plus).

3.2.3 Méthode de quadrature des moments

La méthode de quadrature des moments (QMOM) a d'abord été développée en physique statistique par Gordon [5] afin de remplacer la méthode d'expansion des hautes températures dont les approximations des séries convergeaient lentement ou parfois ne convergeaient pas du tout à faible température. De plus, il était impossible de donner une précision aux résultats si les séries étaient extrapolées.

QMOM fut utilisée pour la première fois en 1997 par McGraw [15] pour simuler l'évolution d'une population de particules d'un aérosol. La méthode utilisée et validée par McGraw résolvait l'équation de bilan de population en utilisant cette méthode avec un modèle de croissance diffusionnelle du type :

$$G(L) \propto \frac{1}{L} \tag{3.20}$$

QMOM fut ensuite appliquée et validée dans de nombreux cas (*e.g.* précipitations en réacteur idéal fermé en 2002 par Marchisio *et al.* [11]), puis couplée à un code de mécanique des fluides (CFD) en présence d'agglomération seule dans un réacteur de type Couette [12] et ensuite dans un réacteur tubulaire [13]. Enfin, QMOM fut comparé à la méthode des classes [11].

L'un des points fort de la méthode QMOM est qu'elle parvient à surmonter le problème de fermeture. QMOM simplifie les intégrales en utilisant une formule de quadrature de Gauss à N_q points. Les moments ne sont plus calculés par intégration de la fonction densité en nombre qui est continue mais par sommation des nœuds de la quadrature de Gauss :

$$m_k = \int_0^\infty n(L) L^k dL \approx \sum_{i=1}^{N_q} w_i L_i^k \tag{3.21}$$

où les w_i et les L_i sont respectivement les poids et les abscisses de la quadrature exprimée à partir des premiers moments de la distribution. Lorsque la fonction de densité en nombre $n(L)$ a une forme polynomiale, cette approximation est exacte pour les N_q -1 premiers moments.

Le problème de fermeture est alors résolu en connaissant uniquement les abscisses et les poids de chaque moment et l'Éq. (3.16) devient :

$$\frac{Dm_k}{Dt} = k\sum_{j=1}^{N_q} L_j^{k-1} G(L_j) w_j + J^*\left(L^*\right)^k + \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q} w_i \sum_{j=1}^{N_q} w_j \left(L_i^3 + L_j^3\right)^{k/3} \beta_{ij} - \sum_{i=1}^{N_q} w_i L_i^k \sum_{j=1}^{N_q} w_j \beta_{ij} \tag{3.22}$$

Les abscisses L_i et les poids w_i sont alors déterminés par un algorithme de produit-différence (PD) (*cf.* Annexe 1) à partir des moments (*cf.* 3.2.5). Cette méthode n'est plus limitée par la forme des fonctions de germination J^*, de cinétique de croissance $G(L)$ ou d'agrégation β_{ij}. Il

est cependant nécessaire qu'il y ait deux fois plus de moments que de poids ou d'abscisses, Ce qui limite la méthode à un nombre précis de moments.

Enfin, la fonction de densité en nombre $n(L)$ peut être retrouvée avec l'équation suivante :

$$n(L) \approx \sum_{i=1}^{N_q} w_i \delta(L - L_i) \tag{3.23}$$

Les études numériques qui suivront dans les chapitres 5 et 6 utiliseront la méthode de quadrature des moments (QMOM), qui a l'avantage de nécessiter peu de classes mobiles (N_q =3) pour une erreur inférieure à 5% sur le suivi du vecteur de moments [13].

Pour des informations complémentaires sur la méthode QMOM le lecteur pourra se référer à l'article de Grosch et *al.* [6] ainsi qu'aux articles de Wang et *al.* [23,24]. Ces derniers utilisent QMOM pour simuler le processus d'agrégation et de brisure en écoulement de Taylor-Couette laminaire et turbulent.

Remarque 3 :
Bien que l'utilisation de la méthode QMOM soit présentée ici avec une seule coordonnée interne, il existe des exemples de son utilisation avec deux coordonnées internes [16,19,25].

3.2.4 Méthode de quadrature directe des moments

La méthode QMOM est un outil efficace pour suivre l'évolution d'une coordonnée interne d'une population. Cependant, elle devient lourde et inefficace dans le cas du suivi d'une distribution à plusieurs coordonnées internes (*i.e.* distribution multi-variable). De plus, le seul suivi des moments de la distribution ne permet pas une représentation réaliste lorsque les particules ont des dimensions très différentes (*i.e.* système poly-dispersé). Ce problème est d'autant plus important lorsqu'il existe un fort couplage entre le transport de la coordonnée interne et la vitesse de la phase fluide.

Afin de contourner ces problèmes, Marchisio et Fox [14] ont développé la méthode de quadrature directe des moments (DQMOM) qui suit le transport des variables de la méthode QMOM directement au lieu du vecteur des moments. Dans le cas du suivi d'une seule coordonnée interne, DQMOM et QMOM donnent les mêmes résultats et les équations de transport de DQMOM sont les suivantes :

$$\frac{\partial w_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\overline{u_i}_\alpha w_\alpha\right) - \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\left(\Gamma_s + \Gamma_t\right)\frac{\partial w_\alpha}{\partial x_i}\right) = a_\alpha \tag{3.24}$$

$$\frac{\partial w_\alpha L_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\overline{u_i}_\alpha w_\alpha L_\alpha\right) - \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\left(\Gamma_s + \Gamma_t\right)\frac{\partial w_\alpha L_\alpha}{\partial x_i}\right) = b_\alpha \tag{3.25}$$

où α est un entier compris entre 1 et N_q. Dans la littérature, α est utilisé à la place de l'indice i du paragraphe précédent pour ne pas confondre le numéro du nœud et la coordonnée position x_i. a et b sont des termes sources déterminés en résolvant le système algébrique suivant :

$$(1-k)\sum_{\alpha=1}^{N_q} L_\alpha^k a_\alpha + k\sum_{\alpha=1}^{N_q} L_\alpha^{k-1} b_\alpha = \overline{S}_k^{(N)} + \overline{C}_k \tag{3.26}$$

avec :

$$\overline{S}_k^{(N)} = k\sum_{\alpha=1}^{N_q} w_\alpha L_\alpha^{k-1} G(L_\alpha) + J^*\left(L^*\right)^k + \frac{1}{2}\sum_{\alpha=1}^{N_q} w_\alpha \sum_{\gamma=1}^{N_q} \left(L_\alpha^3 + L_\gamma^3\right)^{k/3} w_\gamma \beta_{\alpha\gamma} - \sum_{\alpha=1}^{N_q} w_\alpha L_\alpha^k \sum_{\gamma=1}^{N_q} w_\gamma \beta_{\alpha\gamma} \tag{3.27}$$

$$\overline{C}_k = k(k-1)\sum_{\alpha=1}^{N_q} L_\alpha^{k-2} w_\alpha (\Gamma_s + \Gamma_t) \frac{\partial L_\alpha}{\partial x_i} \frac{\partial L_\alpha}{\partial x_i} \tag{3.28}$$

Les termes de droite de l'éq. (3.27) correspondent respectivement aux phénomènes de croissance homogène, précipitation et agrégation. L'éq. (3.27) est identique à l'éq. (3.22). En effet, dans le cas du suivi d'une PBE à une coordonnée interne, seul le transport de l'information entre QMOM et DQMOM est différent (*i.e.* poids-abscisses / moments), qui n'affecte pas les termes sources liés à la phénoménologie.

Le terme $\overline{C}_k$ de l'éq. (3.26) permet de prendre en compte l'inhomogénéité de l'écoulement et de forcer les poids et les abscisses à correspondre exactement à un vecteur de moment. Il devient nul pour un écoulement homogène où la coordonnée interne est uniquement dépendante du temps.

L'éq. (3.26) peut aussi se mettre sous forme matricielle [3,4,14] :

$$\mathbf{A}.\mathbf{a} = \mathbf{d} \tag{3.29}$$

Pour deux nœuds (*i.e.* N_q = 2) cela donne le système suivant :

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 \\ -L_1^2 & -L_2^2 & 2L_1 & 2L_2 \\ -2L_1^3 & -2L_2^3 & 3L_1^2 & 3L_2^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \\ b_1 \\ b_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \overline{S_0} \\ \overline{S_1} \\ \overline{S_2} + \overline{C_2} \\ \overline{S_3} + \overline{C_3} \end{pmatrix} \tag{3.30}$$

Les termes sources a_α et b_α des éqs. (3.24) et (3.25) sont obtenus par résolution du système matriciel (3.29). Il existe cependant des cas où la matrice **A** est singulière et que l'éq. (3.29) n'admet pas de solution. C'est notamment le cas lorsque les poids et les abscisses sont initialement nuls ou lorsque deux abscisses sont proches en valeur l'une de l'autre.

L'intérêt de passer de QMOM à DQMOM pour le suivi d'un bilan de population comportant une seule coordonnée interne n'est pas évident. Cela permet par exemple d'avoir des vitesses de convections différentes, pour des classes de tailles différentes mais au prix d'une certaine instabilité numérique. Mais lorsque le suivi de plusieurs coordonnées internes est nécessaire, le choix de DQMOM devient intéressant. Lorsque deux coordonnées internes $L_{1\alpha}$ et $L_{2\alpha}$ sont utilisées, les équations de transport de DQMOM prennent la forme suivante :

$$\frac{\partial w_\alpha}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\overline{u_i}_\alpha w_\alpha\right) - \frac{\partial}{\partial x_i}\left((\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial w_\alpha}{\partial x_i}\right) = a_\alpha \tag{3.31}$$

$$\frac{\partial w_\alpha L_{1\alpha}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i}\left(\overline{u_i}_\alpha w_\alpha L_{1\alpha}\right) - \frac{\partial}{\partial x_i}\left((\Gamma_s + \Gamma_t)\frac{\partial w_\alpha L_{1\alpha}}{\partial x_i}\right) = b_{1\alpha} \tag{3.32}$$

$$\frac{\partial w_\alpha L_{2\alpha}}{\partial t}+\frac{\partial}{\partial x_i}\left(\overline{u}_{i\,\alpha} w_\alpha L_{2\alpha}\right)-\frac{\partial}{\partial x_i}\left(\left(\Gamma_s+\Gamma_t\right)\frac{\partial w_\alpha L_{2\alpha}}{\partial x_i}\right)=b_{2\alpha} \tag{3.33}$$

Les coefficients $a_\alpha, b_{1\alpha}$ et $b_{2\alpha}$ sont alors obtenus par résolution du système linéaire :

$$\begin{aligned}&\sum_{\alpha=1}^{N_q}\left[\left(1-k-l\right)L_{1\alpha}^k L_{2\alpha}^l a_\alpha + kL_{1\alpha}^{k-1}L_{2\alpha}^l b_{1\alpha} + lL_{1\alpha}^k L_{2\alpha}^{l-1} b_{2\alpha}\right]\\ &\quad=\sum_{\alpha=1}^{N_q}\left[k\left(k-1\right)L_{1\alpha}^{k-2}L_{2\alpha}^l C_{11\alpha} + 2klL_{1\alpha}^{k-1}L_{2\alpha}^{l-1}C_{12\alpha} + l\left(l-1\right)L_{1\alpha}^k L_{2\alpha}^{l-2}C_{22\alpha}\right]+\overline{S}_{kl}^{(N)}\end{aligned} \tag{3.34}$$

avec :

$$C_{\beta\gamma\alpha}=\left(\Gamma_s+\Gamma_t\right)\frac{\partial L_{\beta\alpha}}{\partial x_i}\frac{\partial L_{\gamma\alpha}}{\partial x_i}w_\alpha \tag{3.35}$$

et où l est l'ordre des moments de la seconde coordonnée interne.

Les moments mixtes m_{kl} s'obtiennent alors en intégrant sur une coordonnée supplémentaire l'éq. (3.21) :

$$m_{kl}=\int_0^\infty\int_0^\infty n(L_1,L_2)L_1^k L_2^l dL_1 dL_2 \approx \sum_{\alpha=1}^{N_q} w_\alpha L_{1\alpha}^k L_{2\alpha}^l \tag{3.36}$$

Le terme source $\overline{S}_{kl}^{(N)}$ de l'éq. (3.34) pour de la germination homogène, de la croissance et de l'agrégation est donné par :

$$\begin{aligned}\overline{S}_{kl}^{(N)} &= J_{L_1L_2}^*\left(L_1^*\right)^k\left(L_2^*\right)^l+\sum_{\alpha=1}^{N_q} w_\alpha\left[kL_1^{k-1}L_2^l G_1\left(L_{1\alpha},L_{2\alpha}\right)+lL_1^k L_2^{l-1}G_2\left(L_{1\alpha},L_{2\alpha}\right)\right]\\ &\quad+\frac{1}{2}\sum_{\alpha=1}^{N_q}\sum_{\gamma=1}^{N_q} w_\alpha w_\gamma\left[\left(L_{1\alpha}^3+L_{1\gamma}^3\right)^{k/3}\left(L_{2\alpha}^3+L_{2\gamma}^3\right)^{l/3}-L_{1\alpha}^k L_{2\alpha}^l-L_{1\gamma}^k L_{2\gamma}^l\right]\beta_{\alpha\gamma}\end{aligned} \tag{3.37}$$

où $\beta_{\alpha\gamma}=\beta\left(L_{1\alpha},L_{1\gamma},L_{2\alpha},L_{2\gamma}\right)$ est le noyau d'agrégation supposé connu.

La plus grande difficulté de cette méthode repose sur le choix des couples k et l qui doivent être au nombre de N_q (N_s + 1) où N_s est le nombre de coordonnées internes. Une façon d'opérer ces choix est de prendre les moments mixtes qui ont un intérêt pour le phénomène étudié (*i.e.* m_{00}, m_{0l}, m_{k0}) et de compléter ce choix par des moments utilisés dans la construction de diamètres spécifiques (*i.e.* diamètre de Sauter d_{32} ou de De Brouckere d_{43}). Les moments d'ordre 0, 1, 2 et 3 permettent aussi de contrôler la précision de la méthode.

Il existe alors un grand nombre de couples k et l pouvant être choisis. Il arrive cependant que l'éq. (3.34) ne conduise pas à un système matriciel soluble [14]. Il en est ainsi, si trois des moments d'ordre 3 suivants sont choisis {k,l} = {3,0}, {2,1}, {1,2} et {0,3}. Il faut alors prendre des moments d'ordre supérieur {k,l} = {4,0}, {3,1}, {2,2}, {1,3} ou {0,4}.

Dans le cas d'un suivi multiple de coordonnées internes, l'utilisation de DQMOM à la place de QMOM rend le temps d'exécution plus rapide [14] et dès l'obtention des poids et des abscisses, les moments ne sont plus utiles. Pour finir, si les couples k et l sont correctement choisis, le système matriciel (3.34) est toujours soluble à moins que deux abscisses soient trop proches l'une de l'autre.

3.3 Conclusions

CM, SMM, QMOM et DQMOM sont quatre méthodes qui permettent de résoudre l'équation de bilan de population. Cependant, aucune de ces méthodes n'est satisfaisantes dans l'immédiat pour décrite l'évolution en taille et en composition de la poche sidérurgique. Les deux dernières méthodes QMOM et DQMOM sont intéressantes car elles permettent de prendre en compte tous les phénomènes physiques avec un minimum de « classes » qui sont ici mobiles.

Dans le chapitre 4, la méthode Multi-QMOM, méthode de résolution du bilan de population développée pour ce projet, sera présentée. Cette méthode utilise plusieurs QMOM reliées les unes aux autres par un certains nombres d'hypothèses. Elle permet en autre le suivi de plusieurs coordonnées internes qui couplée à la mécanique des fluides et à la thermodynamique renseigne sur l'évolution en taille et en composition de la poche, objectif majeur de cette thèse.

Bibliographie

[1]: Alexiadis A., Vanni M., Gardin P., (2004), "Extension of the method of moments for population balances involving fractional moments and application to a typical agglomeration problem", *Journal of Colloid and interface Science*, **276**, pp. 106-112.

[2]: Alopaeus V., Laakonen M., Aittamaa J., (2006), "Numerical solution of moment-transformed population balance equation with fixed quadrature points", *Chemical Engineering Science*, **61**, pp. 4919-1929.

[3]: Fan R., Marchisio D.L., Fox R.O., (2004), "Application of the direct quadrature method of moments to polydisperse gas-solid fluidized bed", *Powder Technology*, **139**, pp. 7-20.

[4]: Fox R.O., (2003), "*Computational models for turbulent reacting flows*", Cambridge University Press.

[5]: Gordon R.G., (1968), "Error bounds in equilibrium statistical mechanics", *Journal of Mathematical physics*, **9**(5), pp. 655-663.

[6]: Grosch R., Briesen H., Marquardt W., (2007), "Generalization and numerical investigation of QMOM", *AIChE Journal*, **53**(1), pp. 207-227.

[7]: Hounslow M.J., Ryall R.L., Marshall V.R., (1988), "A discretized population balance for nucleation, growth and aggregation", *AIChE Journal*, **34**, pp. 1821-1832.

[8]: Hulburt H.M., Katz S., (1964), "Some problems in particle technology: a statistical mechanical formulation", *Chemical Engineering Science*, **19**, pp. 555-574.

[9]: Lister J.D., Smit D.J., Hounslow M.J., (1995), "Adjustable discretized population balance for growth and aggregation", *AIChE Journal*, **41**, pp. 591-603.

[10]: Marchisio D.L., Fox R.O., Barresi A.A., Baldi G., (2000), "A CFD approach to study the local importance of aggregation in precipitation", *Proceedings of the 7t^h International conference on multiphase flow in industrial plants,* Bologna, Italy, 13-15 September.

[11]: Marchisio D.L., Barresi A.A., Baldi G., Fox R.O., (2002), "Comparison between the classes method and the quadrature method of moments for multiphase flow", *Proceedings of the 8th conference Multiphase flow in industrial plants*, Alba, Italy, 18-20 September.

[12]: Marchisio D.L., Pikturna J.T., Fox R.O., Vigil R.D., Barresi A.A., (2003), "Quadrature method of moments for population-balance equations", *AIChE Journal,* **49**(5). pp. 1266-1276.

[13]: Marchisio D.L., Vigil R.D., Fox R.O., (2003), "Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes", *Journal of Colloid and Interface Science*, **258**(2), pp. 322-334.

[14]: Marchisio D.L., Fox R.O., (2005), "Solution of population balance equations using the direct quadrature method of moments", *Aerosol Science*, **36**, pp. 43-73.

[15]: McGraw R., (1997), "Description of aerosol dynamics by the quadrature method of moments", *Aerosol Science and Technology*, **27**(2), pp. 255-265.

[16]: McGraw R., Wright D.L., (2003), "Chemically resolved dynamics for internal mixtures by the quadrature method of moments", *Aerosol Science*, **34**, pp. 189-209.

[17]: Ramkrishna D., (2000), "*Population balances*", London Academic Press.

[18]: Randolph A.D., Larson M.A., (1988), "*Theory of particulate processes, Second edition*", New York Academic Press.

[19]: Rosner D.E., Pyykonen J.J., (2002), "Bivariate moment simulation of coagulation and sintering nanoparticles in flames", *AIChE Journal*, **48**, pp. 476-491.

[20]: Scott W.T., (1968), "Analytic studies of cloud droplet coalescence", *Journal of the Atmospheric Sciences*, **25**, pp. 54-65.

[21]: Smoluchowski M., (1917), "Versuch einer matimatischen Theorie der Koagulationskinetic kolloider Lösungen", Zeitschrift für Physikalische Chemie, **92**, pp. 129-168.

[22]: Sommer de Gélicourt Y., (2004), "Précipitation turbulente d'oxalate d'uranium en réacteur vortex : etude expérimentale et modélisation", *Thèse INPL, CEA Valrhô*.

[23]: Wang L., Marchisio D.L., Vigil R.D., Fox R.O., (2005), "CFD simulation of aggregation and breakage processes in laminar Taylor-Couette flow", *Journal of Colloid and Interface Science,* **282**, pp. 380-396.

[24]: Wang L., Vigil R.D., Fox R.O., (2005), "CFD simulation of shear-induced aggregation and breackage in turbulent Taylor-Couette flow", *Journal of Colloid and Interface Science,* **285**, pp. 167-178.

[25]: Wright D.L., McGraw R., Rosner D.E., (2001), "Bivariate extension of the quadrature method of moments for modeling simultaneous coagulation and sintering of particle populations", *Journal of Colloid & Interface Science*, **236**, pp. 242-251.

Chapitre 4

Description de l'outil numérique / Modèle Multi-QMOM

La désoxydation et la mise à nuance de l'acier sont des procédés industriels faisant appel à plusieurs domaines de la physique. La mécanique des fluides (*cf.* Chapitre 1) permet la modélisation du brassage de l'acier liquide à haute température par l'argon et le transport des espèces chimiques en milieu turbulent. Vient ensuite la thermodynamique (*cf.* Chapitre 2) qui calcule les phases qui précipitent et leurs vitesses d'apparition. Et enfin, le bilan de population qui permet de suivre une ou plusieurs caractéristiques de la population inclusionnaire (*cf.* Chapitre 3).

Ces différents domaines de la physique sont regroupés dans l'outil numérique Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM.

Ce chapitre présente l'état de l'art avant la thèse ainsi que nouveau modèle de bilan de population Multi-QMOM développé pour ce projet. Il sera validé ensuite dans des cas analytiques 0D et 1D [5,7,11,14].

4.1 État de l'art : Fluent®/CEQCSI

Durant le projet « Zéro-Clogging » réalisé par Arcelor [2], le logiciel de mécanique des fluides Fluent® [4] a été couplé au logiciel thermodynamique CEQCSI [8]. Ce projet avait pour objectif d'éliminer la présence d'inclusions nocives lors de la production d'acier bas carbone désoxydé par l'ajout d'aluminium et de titane.

Bien que ce modèle numérique soit une grande avancée dans la modélisation de la poche sidérurgique et ait permis de réaliser des économies non négligeables, il demande à être amélioré. En effet, Fluent®/CEQCSI ne suit pas l'évolution en taille des particules précipités (*e.g.* le nombre d'inclusions produites et l'évolution en taille des amas ne sont pas connus) et considère l'état d'équilibre thermodynamique comme toujours atteint (*e.g.* les temps d'apparition et de remise en solution des espèces ne sont pas pris en compte). Ces deux aspects sont d'autant plus important que des études [3,16,17,18] ont par ailleurs montré que la taille typique des inclusions se situait entre le nanomètre (*e.g.* taille de précipitation) et une centaine de micromètre (*e.g.* croissance par diffusion et par agrégation). Enfin, le couplage Fluent®/CEQCSI n'a pas de modèle d'extraction pouvant éliminer les oxydes du bain. Afin de prendre en compte ces trois aspects, un nouvel outil numérique a été réalisé.

4.2 Nouveau couplage : Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM

Le suivi de la distribution en taille et en composition des inclusions est une donnée fondamentale pour la caractérisation de la propreté inclusionnaire de la poche sidérurgique. Un nouveau projet nommé « Cleanliness Route » a été lancé durant l'année 2007. Un outil numérique capable de suivre simultanément le transport des espèces en milieu turbulent (*i.e.* Fluent®), la cinétique de précipitation et de dissolution des inclusions (*i.e.* MIPPHASOLACIDO dont la présentation implicite des modèles a été réalisée au §2.1), le suivi de la distribution en tailles des particules ainsi que leurs extractions par le laitier et les parois (*i.e.* Multi-QMOM) a été développé au cours de ce projet.

Les paragraphes suivants présentent la partie la plus innovante du nouvel outil numérique. Il concerne le suivi de la population inclusionnaire par le modèle Multi-QMOM (*i.e.* précipitation, croissance en surface, collision et extraction).

4.2.1 Formulation du modèle Multi-QMOM

Le Chapitre 3 décrit différentes méthodes de résolution de l'équation de bilan de population (PBE). Cependant, la majorité des méthodes sont utilisées avec une seule coordonnée interne (*e.g.* la taille des inclusions). Il existe de plus des limitations à ces modèles venant par exemple du problème de fermeture des équations (SMM), du choix de l'ordre des moments (DQMOM) ou encore plus simplement une limitation provenant du temps de calcul.

Une quantité significative d'inclusions de nature différente (*e.g.* Al_2O_3, TiO_2), dont certaines nocives pour les aciers (*e.g.* $AlTiO_x$), sont produites pendant le traitement de l'acier (*i.e.* désoxydation et mise à nuance). L'utilisation d'un bilan de population à plusieurs coordonnées internes est alors nécessaire. Dans cette optique, un modèle alternatif aux modèles présentés en Chapitre 3 résolvant une PBE à plusieurs coordonnées internes a été développé.

Le modèle Multi-QMOM est composé de (N_p+1) systèmes PBE/QMOM où N_p représente le nombre de phases différentes (*i.e.* Al_2O_3, TiO_2, etc). Les N_p premiers systèmes PBE/QMOM sont attribués au suivi des tailles des particules élémentaires de chaque espèce précipitée :

$$\frac{Dm_{k,p}}{Dt} = \underbrace{J_p^*\left(L_p^*\right)^k}_{a} + \underbrace{k\sum_{i=1}^{N_q} G_p\left(L_{i,p}\right)L_{i,p}^{k-1}w_{i,p}}_{b}, \tag{4.1}$$

alors que le dernier système PBE/QMOM est quant à lui dédié au suivi de l'évolution en taille des amas :

$$\frac{Dm_{k,c}}{Dt} = \underbrace{\sum_{p=1}^{N_p} J_p^*\left(L_p^*\right)^k}_{c} + \underbrace{k\sum_{i=1}^{N_q} G_c\left(L_{i,c}\right)L_{i,c}^{k-1}w_{i,c}}_{d} + \underbrace{\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c}\sum_{j=1}^{N_q} w_{j,c}\left[\left(L_{i,c}^3 + L_{j,c}^3\right)^{k/3} - L_{i,c}^k - L_{j,c}^k\right]\beta_{ij}}_{e} \tag{4.2}$$

Les indices p et c correspondent respectivement à une phase précipitée et à l'amas. L'indice c correspond à l'abréviation du mot « cluster » signifiant amas en anglais. J^* est la vitesse de

précipitation, L^* est la taille des nucleii, G est la vitesse de croissance par diffusion, β_{ij} est la vitesse de collision entre deux particules i et j, D/Dt est la dérivée particulaire, m_k est le moment d'ordre k, N_q est le nombre de nœuds de QMOM, w_i et L_i sont respectivement les poids et les abscisses de QMOM.

Il existe trois grandes différences entre les éqs. (4.1) et (4.2). Premièrement, seules les collisions entre amas sont considérées (*e*), les distributions en taille des particules élémentaires ne pouvant évoluer que par précipitation et croissance par diffusion. Ensuite, les particules élémentaires sont considérées comme des phases simples mais aussi comme des amas contenant une seule particule (*a*) et (*c*). Cette remarque permet d'écrire l'égalité entre le volume total des amas $V_{T,c}$ et la somme des volumes des particules élémentaires $V_{T,p}$:

$$V_{T,c} = k_v m_{3,c} = \sum_{p=1}^{Np} k_v m_{3,p} = \sum_{p=1}^{Np} V_{T,p} \tag{4.3}$$

où k_v est un facteur de forme volumique ($\pi/6$ pour une sphère), m_3 correspond au moment d'ordre 3 (le volume lorsque la taille est la coordonnée interne).

Enfin, la croissance par diffusion des particules élémentaires (*b*) est calculée pour chaque nœud par le logiciel MIPPHASOLACIDO alors que la croissance par diffusion des amas (*d*) est obtenue afin de toujours vérifier l'éq. (4.3). Cette partie du modèle sera développée au §4.2.3.

Dans les cellules du maillage généré pour modéliser la poche sidérurgique, les fractions volumiques des espèces précipitées $\phi_{v,p}$ sont connues avec précision. De plus, le nombre de particules élémentaires et la distribution en taille des différentes phases précipitées sont obtenus avec l'éq. (4.1). Cependant la répartition de ses précipités au sein de l'amas n'est pas connue.

Une manière élégante de résoudre ce problème est de décorréler la composition chimique de la taille des amas. Cette hypothèse n'est pas une limitation dans l'interprétation des résultats industriels et elle est d'autant plus justifiée que les densités des oxydes sont du même ordre de grandeur (*i.e.* $\rho_{Al_2O_3} = 3990\ \mathrm{kg/m^3}$, $\rho_{TiO_2} = 4250\ \mathrm{kg/m^3}$ et $\rho_{Al_2TiO_5} = 3700\ \mathrm{kg/m^3}$) et que les collisions ne sont pas affectées par la nature des oxydes. La fraction volumique de chaque phase dans un amas est alors répartie de manière homogène sur toute la distribution en taille (*cf.* Figure 4.1). Cela permet d'écrire une relation de la fraction volumique de la phase p dans l'amas c :

$$\phi_{v,p} = \frac{m_{3,p}}{m_{3,c}} \tag{4.4}$$

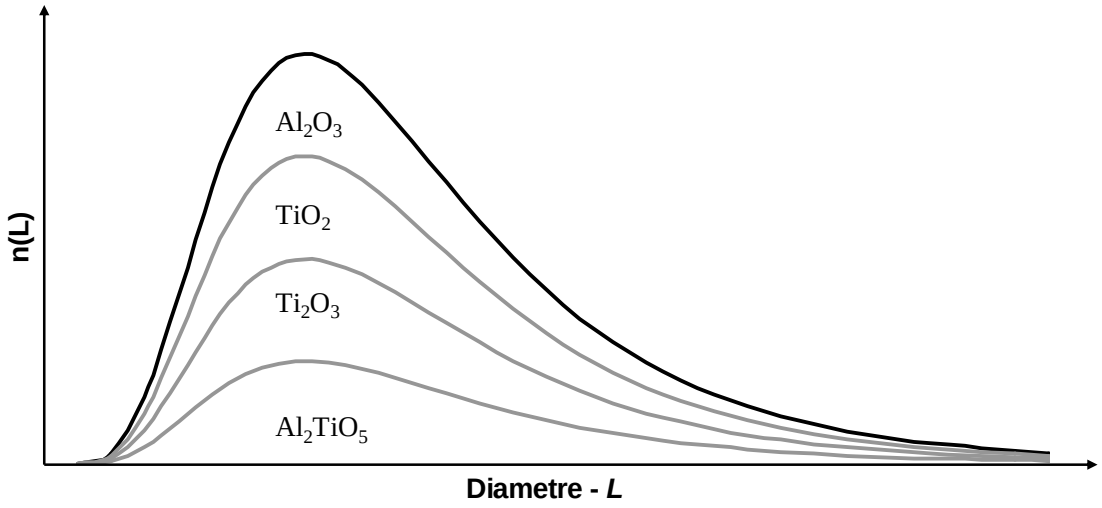


Figure 4.1 : Exemple de distribution en taille d'une population comportant quatre oxydes différents. La courbe noire correspond à la distribution totale alors que les courbes grises séparent les différentes populations. En sommant les distributions des différents oxydes, la courbe noire est obtenue.

Ce modèle allie la rapidité de résolution de QMOM sans être limité à l'utilisation d'une seule coordonnée interne. Cela nécessite de poser l'hypothèse d'une répartition homogène des différentes phases précipitées sur toute la distribution en taille de l'amas mais il donne l'avantage de rendre possible de différencier les particules élémentaires des amas. Cette distinction est nécessaire pour l'utilisation des modèles de croissance par diffusion, par collision et par extraction qui sont ciblés soit les distributions des particules élémentaires, soit la distribution des amas.

Afin de mieux comprendre la pertinence du modèle Multi-QMOM, une représentation symbolique de la forme et de la composition des inclusions est représentée sur la Figure 4.2.

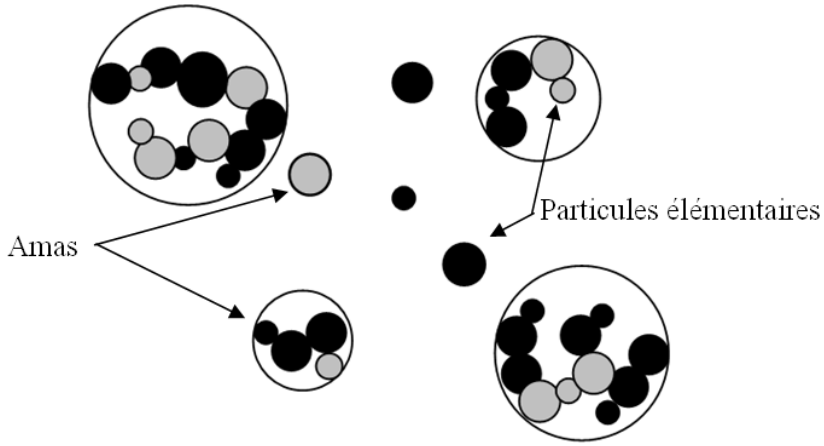


Figure 4.2 : Représentation symbolique de la forme et de la composition des amas. Dans cette représentation deux systèmes PBE/QMOM suivent l'évolution en taille des deux espèces précipitées (disques pleins noirs et gris) et un système PBE/QMOM supplémentaire suit l'évolution en taille des amas (cercles noirs). La composition moyenne des amas est reconstruite en post-traitement (*cf.* §4.2.4).

4.2.2 Modèle de croissance

Le logiciel MIPPHASOLACIDO a été programmé pour calculer la variation du nombre de moles d'oxydes simples (*e.g.* Al_2O_3, TiO_2, etc.). Les précipités composés d'un ou plusieurs oxydes et qui n'interagissent pas ensemble ne sont pas pris en compte. De ce fait, MIPPHASOLACIDO calcule uniquement la vitesse de croissance de ces oxydes simples et la variation de volume des amas est obtenue par respect de l'éq. (4.3). Ces deux modèles de croissances sont développés dans les deux paragraphes suivants.

4.2.2.1 Modèle de croissance des particules élémentaires

Il a été remarqué lors de la programmation de QMOM sous Fluent® que la stabilité de QMOM pouvait être mise à défaut lorsque chaque nœud avait une vitesse de croissance par diffusion différente. Ainsi, au lieu de faire évoluer le vecteur des moments m_k en utilisant le modèle de croissance des éqs. (4.1) et (4.2), une méthode basée sur la modification directe des abscisses L_i a été développée.

Pour chaque nœud de chaque distribution des particules élémentaires utilisé pour QMOM, une classe est initialisée dans le logiciel MIPPHASOLACIDO. Le logiciel de cinétique de précipitation utilise en effet la méthode des classes (DPB) pour calculer l'évolution en nombre de moles de toutes les phases suivies (*i.e.* Al_2O_3, TiO_2, etc.). Ainsi, au cours d'un pas de temps Δt de Fluent®, la variation du nombre de mole ΔX pour chaque précipité est traduite en variation de volume ΔV par l'expression suivante :

$$\Delta V_{i,p} = V_{m,p} \Delta X_{i,p} \tag{4.5}$$

où $V_{m,p}$ est le volume molaire du précipité p.

L'éq. (4.3) relie le volume total d'amas $V_{T,c}$ à la somme des volumes de tous les précipités. De la même manière, le volume total d'une phase précipitée $V_{T,p}$ peut être relié à la somme des volumes de chaque nœud $V_{i,p}$ ainsi qu'au moment $m_{3,p}$:

$$V_{T,p} = \sum_{i=1}^{N_q} V_{i,p} = k_v \sum_{i=1}^{N_q} w_{i,p} L_{i,p}^3 = k_v m_{3,p} \tag{4.6}$$

En partant de l'éq. (4.6) pour un seul nœud i et en supposant que la variation de volume d'un nœud se calcule entre deux pas de temps t et $t+\Delta t$ et ne fait pas varier le nombre de particules (*i.e.* $\Delta\left(w_{i,p} L_{i,p}^3\right) = w_{i,p} \Delta\left(L_{i,p}^3\right)$) alors la variation de volume d'un nœud de QMOM $\Delta V_{i,p}$ s'obtient facilement :

$$\Delta V_{i,p} = k_v \Delta\left(w_{i,p} L_{i,p}^3\right) = k_v w_{i,p} \Delta\left(L_{i,p}^3\right) = k_v w_{i,p} \left(L_{i,p}^3(t+\Delta t) - L_{i,p}^3(t)\right) \tag{4.7}$$

Et finalement, la nouvelle abscisse $L_{i,p}$ est obtenue à partir de l'éq. (4.7) :

$$L_{i,p}(t+\Delta t) = L_{i,p}(t) h_{g,i,p} \tag{4.8}$$

avec :

$$h_{g,i,p} = \left[1 + \frac{\Delta V_{i,p}}{k_v w_{i,p} L_{i,p}^3(t)} \right]^{1/3} \tag{4.9}$$

En conséquence, le vecteur de moments est modifié indirectement par variation des abscisses. Cette méthode de calcul de la croissance par diffusion s'avère payante car elle stabilise le vecteur des moments et elle est plus rapide (*i.e.* elle n'utilise pas l'algorithme Produit-Différence). De plus, elle est bien adaptée au couplage réalisé avec le logiciel de cinétique de précipitation MIPPHASOLACIDO.

Remarque 4.1 :
Le vecteur des moments s'obtient facilement après calcul du coefficient $h_{g,i,p}$:

$$m_{k,p}(t) = \sum_{i=1}^{N_q} w_{i,p} \left(h_{g,i,p} L_{i,p}^k(t) \right) \tag{4.10}$$

4.2.2.2 Modèle de croissance des amas

Comme il a été décrit précédemment en introduction, le problème de modélisation de la poche sidérurgique a été simplifié en découplant, la taille, de la composition des amas :

$$n_{AMAS}\left(L, X_p; p = 1, N_p; \mathbf{x}, t\right) \approx n_{AMAS}\left(L; \mathbf{x}, t\right) \tag{4.11}$$

L'éq. (4.2) suit uniquement l'évolution en taille des amas sans se soucier de la composition de l'amas qui est moyennée sur toute la distribution (*cf.* Figure 4.1). Lorsqu'une particule élémentaire croit ou décroit par diffusion, cette variation de volume est répartie sur toute la distribution de l'amas.

La variation totale de volume du système PBE/QMOM de l'amas $\Delta V_{T,c}$ est calculée comme étant la somme de toutes les variations sur tous les nœuds de toutes les phases précipitées $\Delta V_{i,p}$, donnant l'équation suivante :

$$\Delta V_{T,c} = k_v \Delta m_{3,c} = k_v \Delta \left(\sum_{p=1}^{N_p} w_{i,c} L_{i,c}^3 \right) = k_v \sum_{p=1}^{N_p} \Delta m_{3,p} = \sum_{p=1}^{N_p} \Delta V_{T,p} = \sum_{p=1}^{N_p} \sum_{i=1}^{N_q} \Delta V_{i,p} \tag{4.12}$$

La variation totale du volume du système PBE/QMOM de l'amas $\Delta V_{T,c}$ sur son volume total $V_{T,c}$ permet d'écrire la relation suivante :

$$\frac{\Delta V_{T,c}}{V_{T,c}} = \frac{k_v \Delta m_{3,c}}{k_v m_{3,c}} = \frac{\Delta \left(\sum_{i=1}^{N_p} w_{i,c} L_{i,c}^3 \right)}{\sum_{i=1}^{N_p} w_{i,c} L_{i,c}^3} \tag{4.13}$$

Par réécriture et en remarquant encore une fois que la croissance par diffusion fait varier uniquement les abscisses (*i.e.* $\Delta\left(w_{i,p}L_{i,p}^3\right)=\Delta\left(w_{i,p}\right)L_{i,p}^3$), l'éq. (4.13) prend la forme qui suit :

$$\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c}\left(\Delta L_{i,c}^3\right)=\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c}\left(\frac{\Delta V_{T,c}}{k_v m_{3,c}} L_{i,c}^3\right) \tag{4.14}$$

En identifiant terme à terme, les variations des abscisses du système PBE/QMOM de l'amas sont obtenues :

$$\Delta L_{i,c}=\left(\frac{\Delta V_{T,c}}{k_v m_{3,c}}\right)^{1/3} L_{i,c} \tag{4.15}$$

L'éq. (4.15) permet enfin de calculer les nouvelles abscisses à l'instant $t+\Delta t$:

$$L_{i,c}\left(t+\Delta t\right)=L_{i,c}\left(t\right)+\Delta L_{i,c}\left(t\right)=L_{i,c}\left(t\right)h_{g,c} \tag{4.16}$$

avec :

$$h_{g,c}=\left(1+\frac{\Delta V_{T,c}}{k_v m_{3,c}}\right)^{1/3} \tag{4.17}$$

Remarque 4.2 :
Les coefficients $h_{g,c}$ ne dépendent pas de l'abscisse sur laquelle ils sont appliqués. Toutes les abscisses dédiées à la distribution de l'amas sont donc déplacées du même coefficient (éq. (4.17)).

En conclusion, les deux modèles de croissance par diffusion développé pour le modèle Multi-QMOM sont similaires en formulation (éqs. (4.8) et (4.16)). L'évolution des abscisses des particules élémentaires est suivie nœuds à nœuds par MIPPHASOLACIDO, alors que l'évolution des abscisses de l'amas agit sur toute la distribution afin que le volume de précipité soit conservé. Cette méthode réclame toutefois que le phénomène de croissance par diffusion soit traité en priorité et indépendamment des autres phénomènes. Enfin, en cas de remise en solution, celle-ci doit être partielle pour que ce module fonctionne convenablement car si une abscisse devait être mise à zéro cela pourrait provoquer l'échec de l'utilisation de l'algorithme Produit-Différence.

4.2.3 Modèle d'extraction

Les modèles d'extractions des inclusions développés pour ce couplage (*cf.* §2.4) comprennent trois conditions limites :

- la capture par le laitier,
- l'adhérence sur les parois de la poche,
- la flottation provoquée par l'injection de gaz argon (non étudiée ici).

Les lois d'extraction du laitier et des parois sont caractérisées par le calcul d'une vitesse de déposition u_p dépendant des abscisses du système PBE/QMOM de l'amas. Cette vitesse est utilisée pour calculer la quantité de particules extraites du bain par unité de temps :

$$\frac{dw_{i,c}}{dt} = -u_p\left(L_{i,c}\right)w_{i,c}\,\frac{S_e}{V} \tag{4.18}$$

où u_p est la vitesse de déposition définie en §2.4.1, S_e est la surface de déposition et V le volume d'échange. Le rapport S_e / V définit l'inverse d'une distance d'échange entre l'acier liquide et la condition limite (*i.e.* le laitier ou la paroi).

4.2.3.1 Modèle d'extraction des amas

Le flux de particules (éq. (4.18)) est calculé uniquement pour le système PBE/QMOM de l'amas. La variation de volume de ce système est ensuite répercutée sur les N_p systèmes PBE/QMOM concernant les particules élémentaires en respectant l'éq. (4.3).

L'utilisation d'un schéma temporel de type Euler-explicite permet de calculer les poids $w_{i,c}$ à l'instant $t+\Delta t$:

$$w_{i,c}\left(t+\Delta t\right) = w_{i,c}\left(t\right) + \frac{dw_{i,c}\left(t\right)}{dt}\Delta t \tag{4.19}$$

En combinant les éqs. (4.18) et (4.19), les nouveaux poids $w_{i,c}$ du système PBE/QMOM de l'amas sont obtenus :

$$w_{i,c}\left(t+\Delta t\right) = w_{i,c}\left(t\right) - u_p\left(L_{i,c}\right)w_{i,c}\left(t\right)\frac{S}{V}\Delta t = w_{i,c}\left(t\right)h_{e,i,c} \tag{4.20}$$

avec :

$$h_{e,i,c} = \left(1 - u_p\left(L_{i,c}\right)\frac{S}{V}\Delta t\right) \tag{4.21}$$

Le nouveau vecteur de moments peut alors être reconstruit :

$$m_{k,c}\left(t+\Delta t\right) = \sum_{k=1}^{N_q} w_{i,c}\left(t+\Delta t\right)L_{i,c}^{k}\left(t\right) \tag{4.22}$$

4.2.3.2 Modèle d'extraction des particules élémentaires

La variation de volume totale d'un précipité $dV_{T,p}$ peut être reliée à celle de l'amas $dV_{T,c}$ en utilisant l'éq. (4.4) pour un instant t quelconque :

$$\frac{m_{3,p}}{m_{3,c}} = \frac{\Delta m_{3,p}}{\Delta m_{3,c}} = \frac{\Delta V_{T,p}}{\Delta V_{T,c}} = \phi_{v,p} \tag{4.23}$$

L'éq. (4.23) peut être réécrite d'une manière à faire apparaître la variation du nombre de particules (*e.g.* poids) des systèmes PBE/QMOM dédiés aux particules élémentaires :

$$\Delta\left(\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,p} L_{i,p}^3\right) = \frac{\Delta m_{3,c}}{m_{3,c}} \sum_{i=1}^{N_q} w_{i,p} L_{i,p}^3 \tag{4.24}$$

L'extraction ne faisant varier que le nombre de particules, l'éq. (4.24) peut encore être modifiée :

$$\sum_{i=1}^{N_q} \left(\Delta w_{i,p}\right) L_{i,p}^3 = \sum_{i=1}^{N_q} \left(\frac{\Delta m_{3,c}}{m_{3,c}} w_{i,p}\right) L_{i,p}^3 \tag{4.25}$$

Par identification membre à membre, les variations des poids des systèmes PBE/QMOM dédiés aux particules élémentaires sont calculées :

$$\Delta w_{i,p} = w_{i,p} \frac{\Delta m_{3,c}}{m_{3,c}} \tag{4.26}$$

L'éq. (4.26) permet alors d'obtenir l'expression finale de la variation de tous les nouveaux poids w_i des systèmes PBE/QMOM dédiés aux particules élémentaires :

$$w_{i,p}(t+\Delta t) = w_{i,p}(t) + \Delta w_{i,p}(t) = w_{i,p}(t) h_{g,i,p} \tag{4.27}$$

avec :

$$h_{g,i,p} = \left(1 + \frac{\Delta m_{3,c}(t)}{m_{3,c}(t)}\right) \tag{4.28}$$

Pour conclure, les modèles d'extraction et de croissance par diffusion sont basés sur les deux grandes hypothèses décrites par les éqs. (4.3) et (4.4). C'est une raison de leur ressemblance.

4.3 Validation du modèle Multi-QMOM

Afin de vérifier le bon fonctionnement du modèle Multi-QMOM, des cas test 0D et un test de transport du vecteur de moment ont été choisis. Ils vont successivement valider les modules de germination, de croissance en surface, d'agrégation et de transport du vecteur de moments. Le module d'extraction, quant à lui, fera l'objet d'une étude particulière dans le chapitre 5.

4.3.1 Validation du module de précipitation

La précipitation seule dans le modèle Multi-QMOM est représentée par l'utilisation de ces deux équations :

$$\frac{dm_{k,p}}{dt} = \underbrace{J_p^*\left(L_p^*\right)^k}_{a} \tag{4.29}$$

$$\frac{dm_{k,c}}{dt} = \underbrace{\sum_{p=1}^{N_p} J_p^*\left(L_p^*\right)^k}_{c} \tag{4.30}$$

La théorie classique de précipitation homogène [1] permet de calculer la taille critique L^* à laquelle une inclusion précipite. Cependant, l'algorithme Produit-Différence (*cf.* Annexe 1) ne peut pas être initialisé avec une fonction Dirac (taille unique de précipitation).

Le facteur de Zeldovitch (*cf.* §2.1.2) introduit l'idée d'une précipitation qui aurait lieu autour de la taille critique de précipitation L^*. La fonction Dirac peut alors être remplacée par une fonction gaussienne (*cf.* Annexe 3). En introduisant un écart-type σ_{L^*}, cela permet de séparer les abscisses les unes des autres et rend possible l'utilisation de l'algorithme Produit-Différence (*cf.* Figure 4.3).

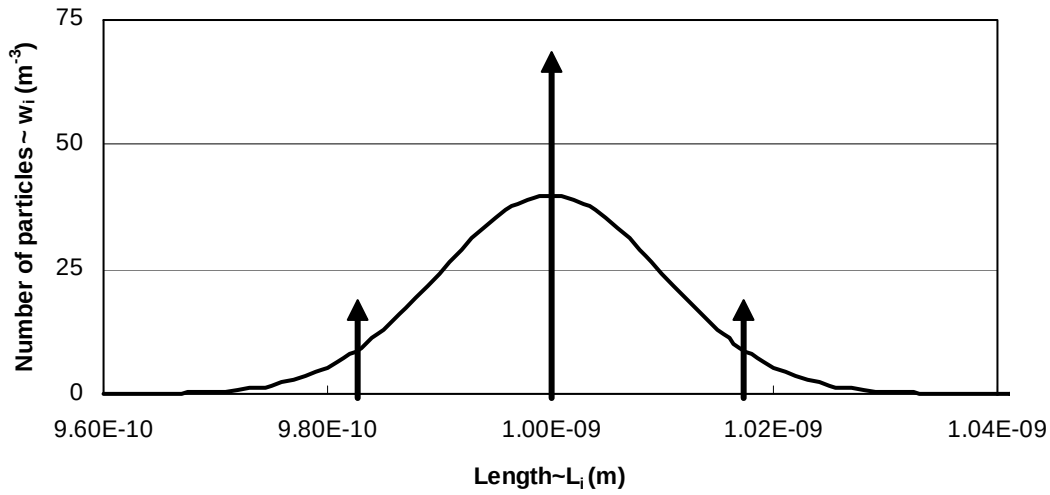


Figure 4.3 : Précipitation de 100 particules autour de la taille 10^{-9} m représentée par la fonction gaussienne (trait continu) et par QMOM (3 nœuds ou flèches).

Remarque 4.3 :
L'écart type σ_{L^*} représente la dispersion du vecteur de moments autour de L^*. Il est fixé égal à 1% de la taille de précipitation :

$$\sigma_{L^*} = L^* / 100 \tag{4.31}$$

L'utilisation de 3 nœuds dans QMOM est un bon compromis. Il permet d'avoir moins de 5% d'erreur dans le suivi du vecteur de moment [12] avec une bonne représentation de la fonction gaussienne. Cependant, lorsque plusieurs précipités sont présents, le choix du nombre de nœuds peut être capital afin de ne pas perdre d'informations. Par exemple, en l'absence d'une quelconque croissance (*i.e.* diffusion ou agrégation), l'utilisation de 3 nœuds pour décrire la précipitation de 4 inclusions de taille de précipitation différente est maladroite (*cf.* Figure 4.4). Pour un meilleur suivi de chaque type d'oxyde, un nombre de nœuds égal au nombre de précipités est nécessaire (*cf.* Figure 4.5).

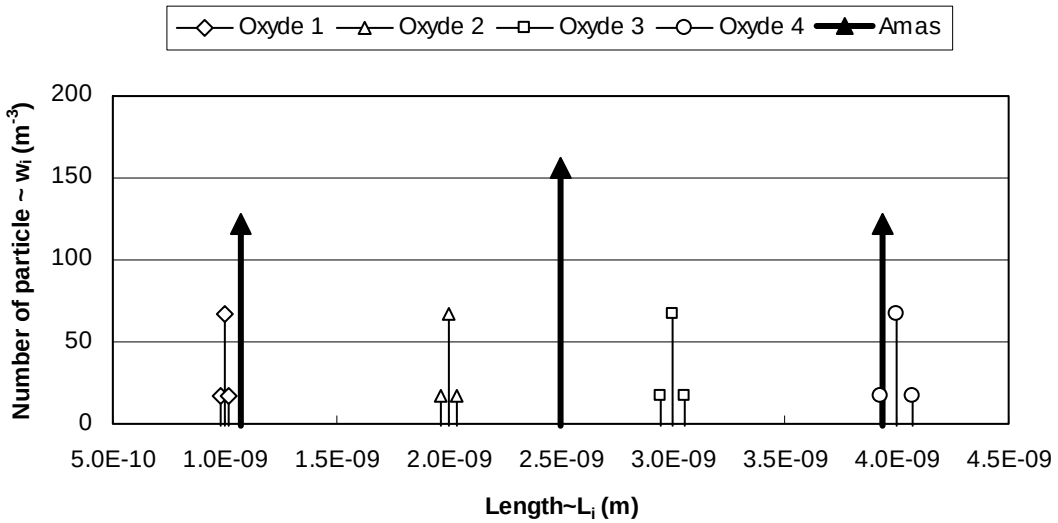


Figure 4.4 : Représentation de la précipitation de 4 oxydes chacun représenté par 3 nœuds. La représentation de l'amas prend en compte toutes les particules élémentaires. La distribution de l'amas est moyennée lorsque 3 nœuds pour l'amas sont utilisés pour le suivi de 4 oxydes.

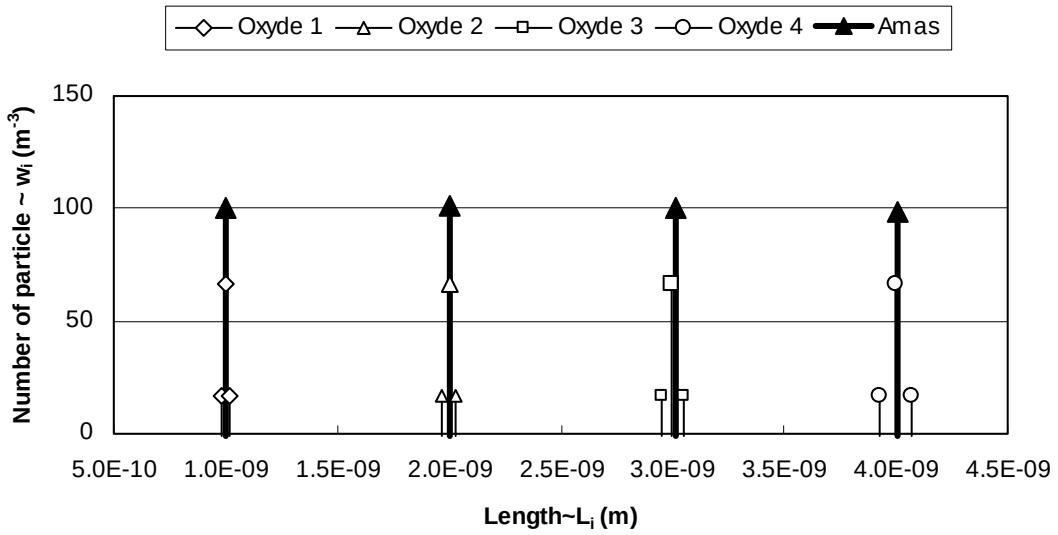


Figure 4.5 : Ici, tous les oxydes sont suivis par un nœud du système PBE/QMOM dédié à l'amas.

En conclusion, le module de précipitation du modèle Multi-QMOM gère correctement l'introduction des différentes phases précipitées tout en respectant les hypothèses décrites au §4.1. Cela permet de suivre la taille moyenne globale des précipités $d_{32,c}$ ainsi que celle de chaque précipité $d_{32,p}$.

4.3.2 Validation du module de la croissance par diffusion

Classiquement, l'approximation QMOM du terme de croissance de la PBE (éq. (3.5)) utilise l'expression suivante :

$$k\int_0^{+\infty} L^{k-1}G(L)n(L)dL \approx k\sum_{i=1}^{Nq} L_i^{k-1}G(L_i)w_i \tag{4.32}$$

Cependant, pour des raisons de stabilité du code de calcul, l'éq. (4.30) n'est pas utilisée. Nous lui préférons une méthode qui déplace les abscisses sans modification des poids (*cf.* §4.2.2) :

$$L_i(t+\Delta t) = L_i(t)h_{g,i} \tag{4.33}$$

avec :

$$h_{g,i} = \left[1+\frac{\Delta V_i}{V_i}\right]^{1/3} \tag{4.34}$$

Les abscisses de QMOM sont alors déplacées en utilisant le coefficient $h_{g,i}$.

Pour valider cette méthode de gestion du phénomène de croissance, deux tests vont être réalisés. Le premier vérifiera qu'une distribution gaussienne de volume initial V_i est doublée lorsqu'il lui est appliqué les paramètres suivants $\Delta V_i = V_i \rightarrow h_{g,i} = \sqrt[3]{2} \approx 1.259$ ou soit divisé par deux avec ces nouveaux paramètres $\Delta V_i = -V_i/2 \rightarrow h_{g,i} = (2)^{-1/3} \approx 0.794$ (*cf.* Figure 4.6).

Remarque 4.4 :
Dans l'exemple ci-dessus, 4 nœuds sont utilisés pour représenter la distribution de particules. L'accroissement de volume fait s'éloigner les nœuds les uns des autres, alors qu'au contraire la réduction du volume les fait se resserrer. Si la croissance en taille de la distribution ne pose pas de problème, la remise en solution peut amener les abscisses à être trop proches les unes des autres et peut rendre l'algorithme Produit-Différence inutilisable.

Le problème de remise en solution total a par ailleurs été mis en avant par Grosch *et al.* [6] qui recommandent de ne pas utiliser l'éq. (4.32). Ils préfèrent l'expression proposée par Motz *et al.* [13] qui calcule un flux d'extraction en particules évitant que l'approximation quadratique de l'intégrale devienne incorrecte lorsque la taille des particules est proche de zéro. Dans notre cas la remise en solution est toujours partielle rendant l'utilisation de l'éq. (4.33) adéquate.

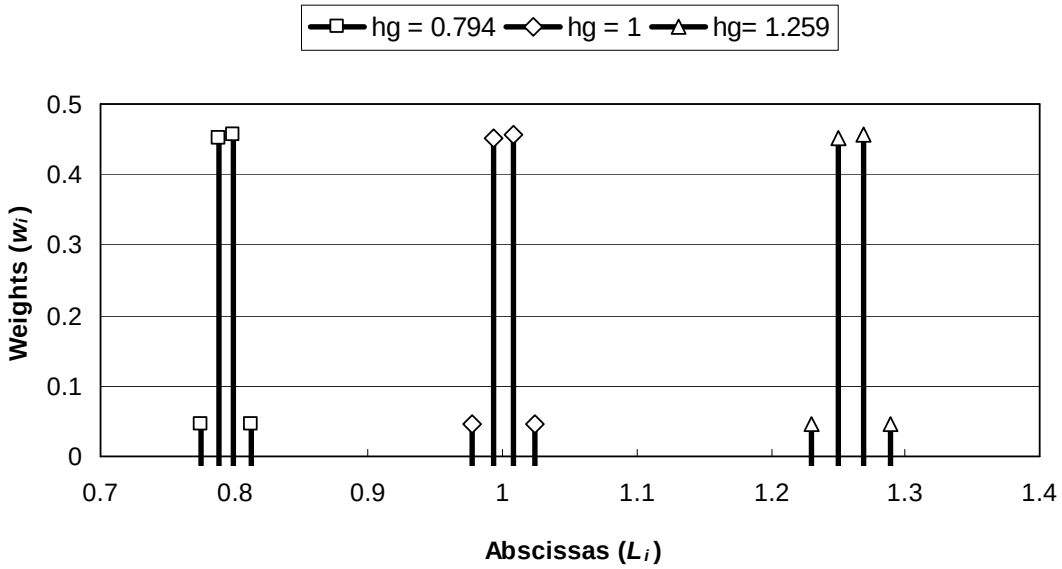


Figure 4.6 : Vérification du comportement du nouveau module de croissance réalisé pour le modèle Multi-QMOM. Une population initiale (h_g = 1) voit son volume soit doublé (h_g = 1.259), soit divisé par deux (h_g = 0.794). Les nouvelles distributions évoluent comme prévu et les nouveaux volumes sont obtenus.

Le second test de validation du module de croissance Multi-QMOM utilise une solution analytique obtenue par Hulburt *et al.* [7] et reprise par Marchisio *et al.* [11] pour QMOM. Elle nécessite une distribution initiale monovariable de forme exponentielle (*cf.* Annexe 3) avec une croissance du type :

$$G(L_i) = G_0 / L_i \tag{4.35}$$

Le vecteur de moment solution d'une telle vitesse de croissance est obtenu de la manière suivante :

$$m_k(t) = m_k(0) + k\, G_0 m_{k-2} \Delta t \tag{4.36}$$

avec :

$$m_{-1} = \frac{m_0^2 m_1}{2m_1^2 - m_0 m_2} \tag{4.37}$$

Les résultats de la simulation numérique sont en très bon accord avec la solution analytique (*cf.* Figure 4.7). L'erreur maximale est commise sur le dernier moment du vecteur (*i.e.* m_5) et ne dépasse pas 0.15%.

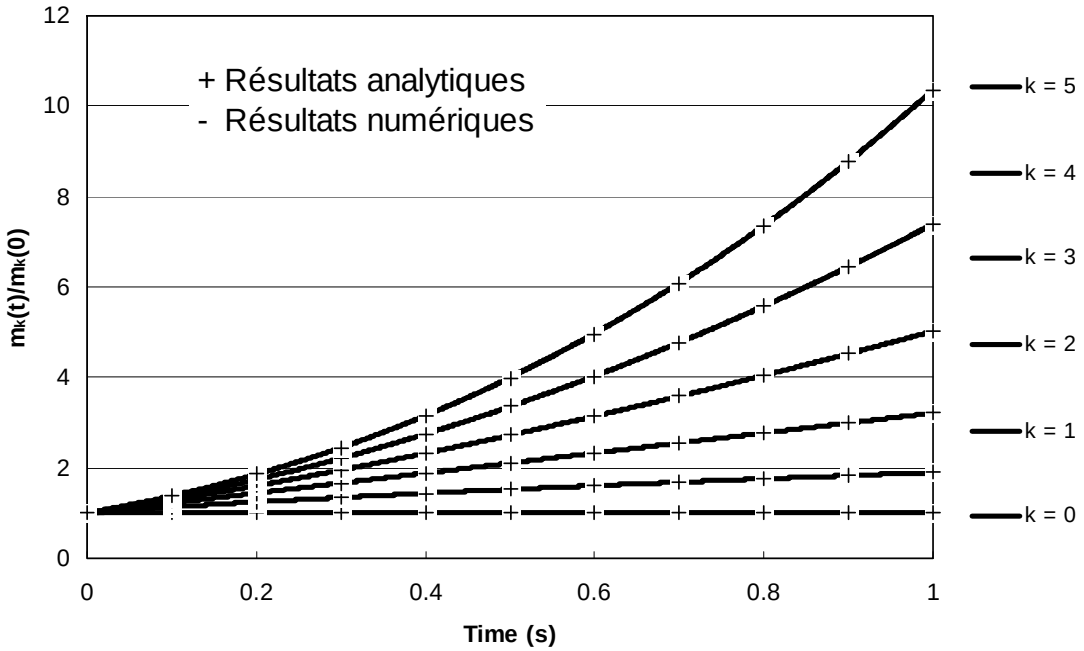


Figure 4.7 : Résultats adimensionnés de la validation du modèle de croissance pour une initialisation exponentielle (*cf.* Annexe 3) avec une croissance du type $G(L_i) = G_0 / L_i$ où $G_0 = 1\,\mathrm{m/s}$ et un pas de temps $\Delta t = 0.01\,\mathrm{s}$.

4.3.3 Validation du module d'agrégation

Les collisions entre particules sont dues à plusieurs causes (*i.e.* agitation brownienne, laminaire, turbulente ou séparation gravitaire) nécessitant l'utilisation de plusieurs formes de noyaux d'agrégation (*cf.* §2.2). Des solutions analytiques [5] existent pour différentes formes de noyaux :

- constant : $\beta_{ij} = \beta_0$,
- somme : $\beta_{ij} = \beta_0 \left(L_i^3 + L_j^3 \right)$,
- brownien : $\beta_{ij} = \beta_0 \left(L_i + L_j \right)^2 / \left(L_i L_j \right)$,
- et hydrodynamique : $\beta_{ij} = \beta_0 \left(L_i + L_j \right)^3$.

La solution analytique d'un problème d'agrégation constante β_0 initialisée avec une distribution de forme exponentielle [11] se met sous la forme suivante :

$$m_k(t) = m_k(t=0) \left(\frac{2}{2 + N_0 \beta_0 t} \right)^{1-k/3} \tag{4.38}$$

où N_0 est le nombre de particules initiales.

Pour un problème d'agrégation seule, Multi-QMOM met à jour uniquement la distribution des amas en utilisant l'expression suivante :

$$\frac{dm_{k,c}}{dt} = \underbrace{\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c} \sum_{j=1}^{N_q} w_{j,c} \left[\left(L_{i,c}^3 + L_{j,c}^3 \right)^{k/3} - L_{i,c}^k - L_{j,c}^k \right] \beta_0}_{e} \tag{4.39}$$

Les résultats de la simulation numérique montrent une erreur inférieure à 1% (*cf.* Figure 4.8).

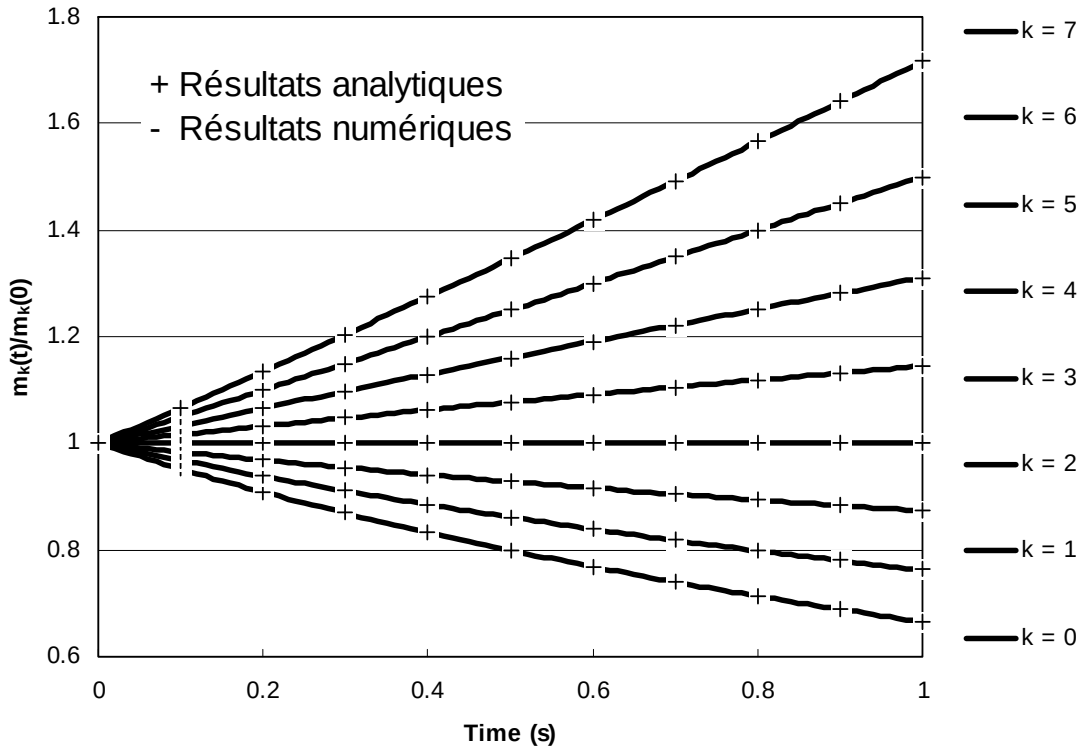


Figure 4.8 : Résultats adimensionnés de la validation du module d'agrégation pour un noyau agrégation constante $\beta_0 = 1\mathrm{m}^3/\mathrm{s}$, une distribution initiale de forme exponentielle et un pas de temps de $\Delta t = 0.01\mathrm{s}$.

Remarque 4.5 :
Pour aller plus loin, le lecteur pourra se référer aux travaux de Silva *et al.* [14,15] qui ont développé des solutions analytiques pour QMOM lorsqu'il y a simultanément agrégation et brisure.

4.3.4 Vérification du transport du vecteur de moments

Les modules de précipitation, de croissance par diffusion et d'agrégation viennent d'être validés pour une configuration 0D (*i.e.* sans transport). Le couplage final devant être utilisé dans une poche sidérurgique brassée par l'argon, le transport des vecteurs de moments est primordial pour établir une cartographie correcte de l'évolution en taille et en composition des précipités. Silva *et al.* [14] propose une solution analytique pour vérifier le transport du vecteur de moments. Pour cela, il suffit de remarquer que dans un écoulement à vitesse constante, le temps t peut être remplacé par x/v_x. Ce terme est ensuite injecté dans l'éq. (4.36) et permet d'écrire une nouvelle expression dépendant de l'abscisse longitudinale x et de la vitesse v_x dans cette direction :

$$m_k\left(\frac{x}{v_x}\right) = m_k\left(\frac{x}{v_x}=0\right)\left(\frac{2}{2+N_0\beta_0\dfrac{x}{v_x}}\right)^{1-k/3} \tag{4.40}$$

Pour un écoulement uniforme 1D à vitesse constante $v_x = 1\text{m/s}$, l'évolution du vecteur de moments s'obtient au fil des cellules. Pour cette simulation, le maillage de la conduite d'une longueur 1 mètre est constitué de 100 cellules (*i.e.* $\Delta x = 0.01\text{m}$). Tous les moments sont initialement nuls. La première cellule en amont de l'écoulement est initialisée à chaque pas de temps Δt avec la forme exponentielle (*cf.* Annexe 3). Comme, la cellule est initialisée à la place de la surface, l'abscisse x = 0 se situe au centre de la première cellule. L'entrée et la sortie du fluide sont respectivement représentées par des conditions limites « velocity inlet » et « outflow », avec une condition de flux nul pour les scalaires. Les diffusivités laminaire et turbulente des scalaires sont nulles et le schéma « First Order Upwind » [4] est utilisé pour transporter le vecteur de moments. Enfin, la vitesse d'agrégation est prise égale à $\beta_0 = 1\text{m/s}$ (*cf.* Figure 4.9).

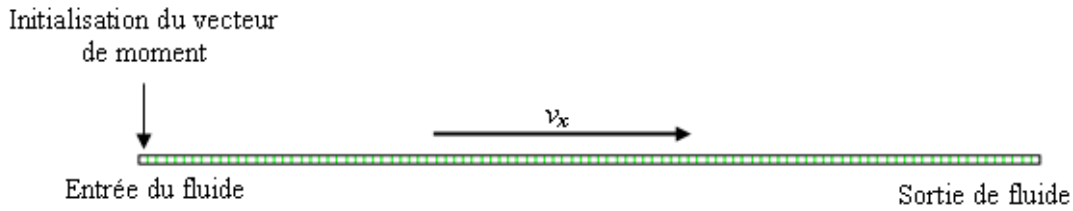


Figure 4.9 : Schéma explicatif de la mise en place de la simulation numérique.

Après 5 s de simulation, les valeurs du vecteur de moments dans les cellules n'évoluent plus et les résultats numériques présentés figure 4.10 sont encore en très bon accord avec la solution analytique. L'erreur maximale de 0.11% est obtenue sur le moment m_5. Ce test valide le transport du vecteur de moments dans un écoulement uniforme et unidirectionnel.

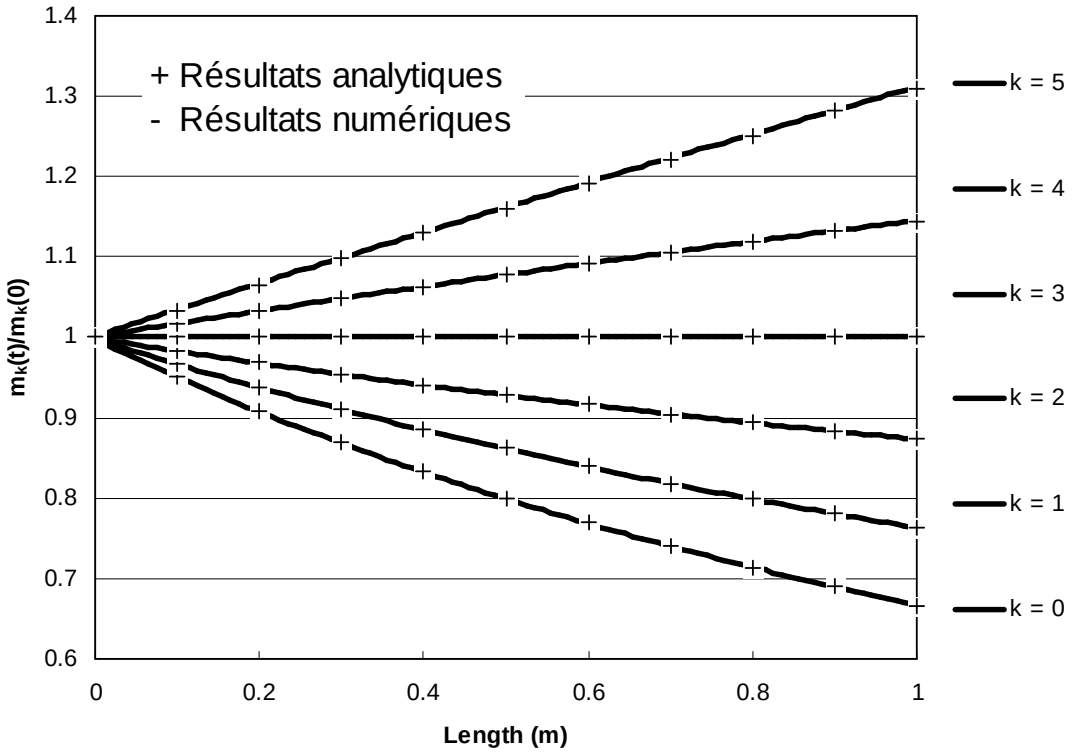


Figure 4.10 : Résultats adimensionnés de la validation du couplage Fluent®/Multi-QMOM pour un écoulement uniforme $v_x = 1\text{m/s}$ en conduite avec une vitesse d'agrégation constante $\beta_0 = 1\text{m}^3/\text{s}$, un pas de temps de $\Delta t = 0.05\,\text{s}$ sur une distance d'1 mètre découpée par 100 cellules identiques.

Remarque 4.6 :
Durant les tests préliminaires, il a été remarqué que les schémas supérieurs en ordre au schéma de transport « First Order Upwind » (*i.e.* Second Order Upwind, QUICK, Third-Order MUSCL) ne conservaient pas toujours le vecteur de moments. Le schéma de premier ordre est plus diffusif numériquement qu'un schéma d'ordre supérieur mais il conserve correctement le vecteur de moments surtout en présence de précipitation.

Remarque 4.7 :
Dans cet exemple, la nature du fluide n'a pas d'importance car la vitesse d'écoulement est fixée et les propriétés du fluide n'interviennent pas dans les équations de transport des scalaires.

4.4 Traitement des résultats de l'outil numérique

L'outil numérique Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM a été développé dans le but d'obtenir rapidement la taille et la composition des amas précipitant dans la poche. Ainsi, les diamètres de Sauter des amas $d_{32,c}$ et des particules élémentaires $d_{32,p}$ (*cf.* Annexe 2) sont calculés soit localement pour une cellule :

$$d_{32,l} = m_{3,l} \big/ m_{2,l} \tag{4.41}$$

soit pour la poche entière :

$$d_{32,g} = \sum_{l=1}^{N_l} m_{3,l} \Bigg/ \sum_{l=1}^{N_l} m_{2,l} \tag{4.42}$$

où l et g sont les indices respectifs de la cellule et pour la poche complète. N_l est le nombre de cellule du maillage.

Ensuite, à partir des deux hypothèses des éqs. (4.3) et (4.4), la masse moyenne d'un amas M_{amas} est calculée avec l'expression suivante :

$$M_{amas} = \sum_{p=1}^{N_p} k_v \rho_p \phi_{v,p} \left(d_{30,c}\right)^3 \tag{4.43}$$

où $d_{30,c}$ est le diamètre volumique moyen de l'amas (*cf.* Annexe 2).

Ensuite à partir des fichiers résultats, il est possible de tracer plusieurs courbes :

- fractions massiques des éléments simples (Figure 4.11),
- fractions massiques des précipités (Figure 4.12),
- diamètre moyen de Sauter de l'amas (Figure 4.13) avec l'éq. (4.39),
- masse moyenne d'un amas (Figure 4.14) avec l'éq. (4.40),
- fraction massique dans un amas de chaque type de précipité (Figure 4.15),
- fraction massique des masses extraites par les conditions limites (Figure 4.16),
- et distribution en taille des amas à un instant donné (Figure 4.17).

Ces résultats peuvent tous être calculés localement ou pour la poche complète.

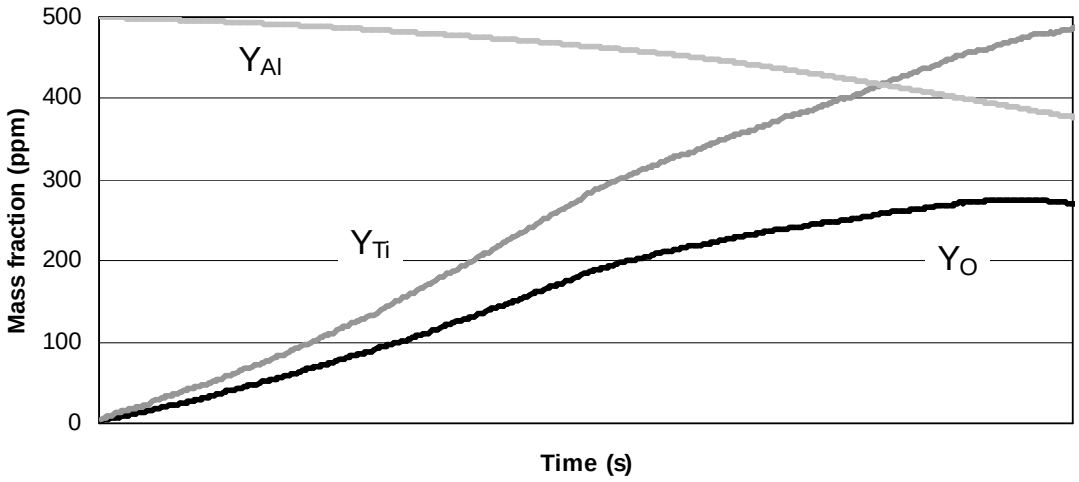


Figure 4.11 : Suivi des fractions massiques des éléments pures à l'exception du fer dans la poche.

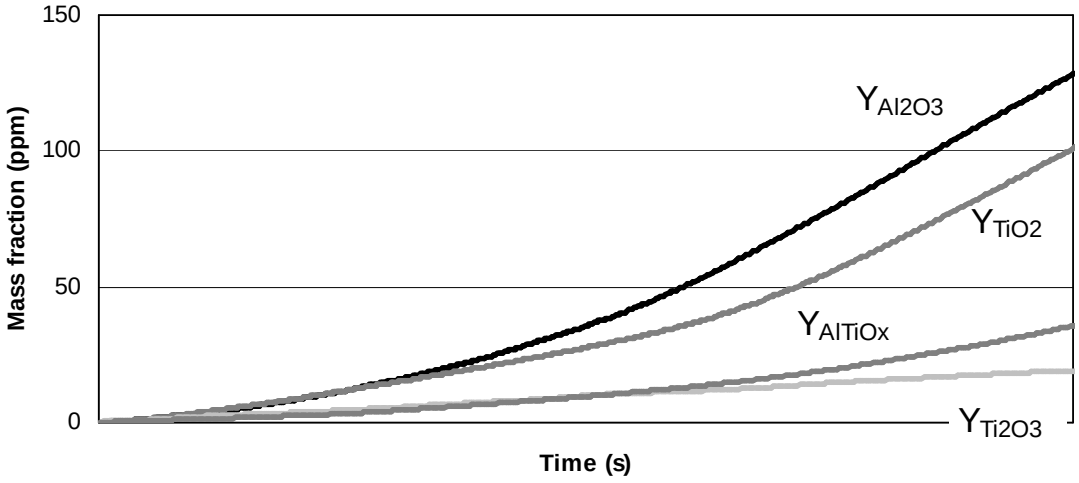


Figure 4.12 : Suivi des fractions massiques des précipités dans la poche.

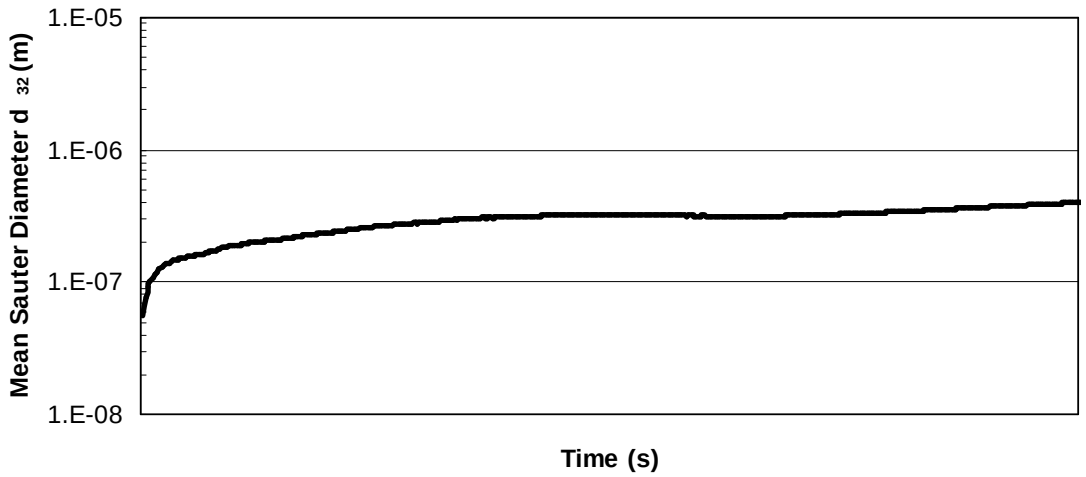


Figure 4.13 : Évolution du diamètre moyen de Sauter $d_{32,c,g}$ pour la poche complète calculée avec l'éq. (4.39).

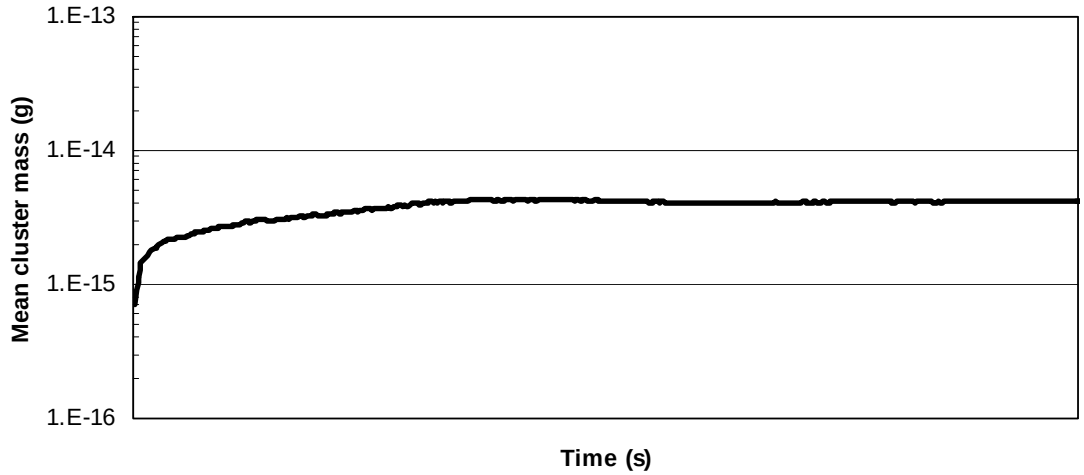


Figure 4.14 : Évolution de la masse moyenne d'un amas M_{amas} pour la poche complète calculée avec l'éq. (4.40).

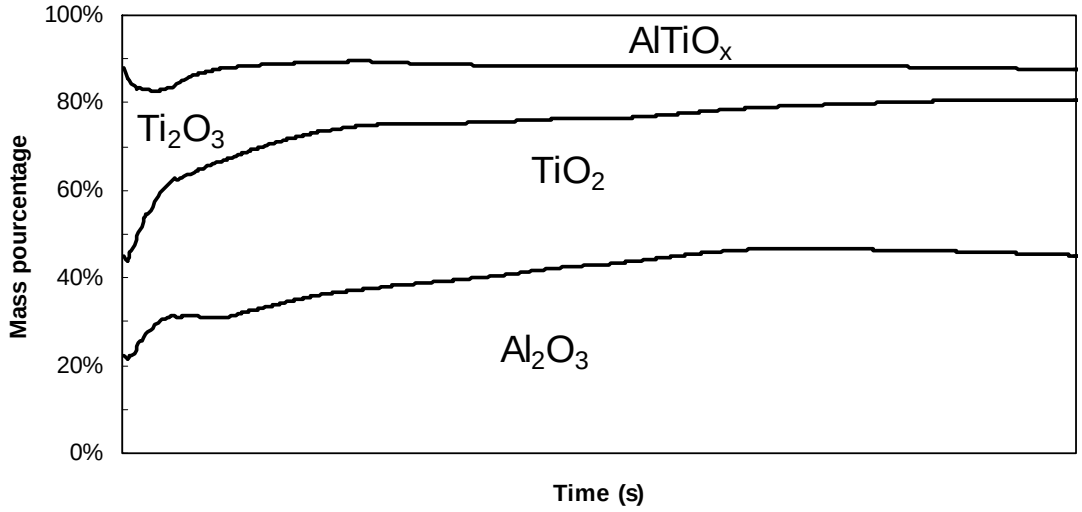


Figure 4.15 : Suivi des fractions massiques de chaque type de précipité dans un amas.

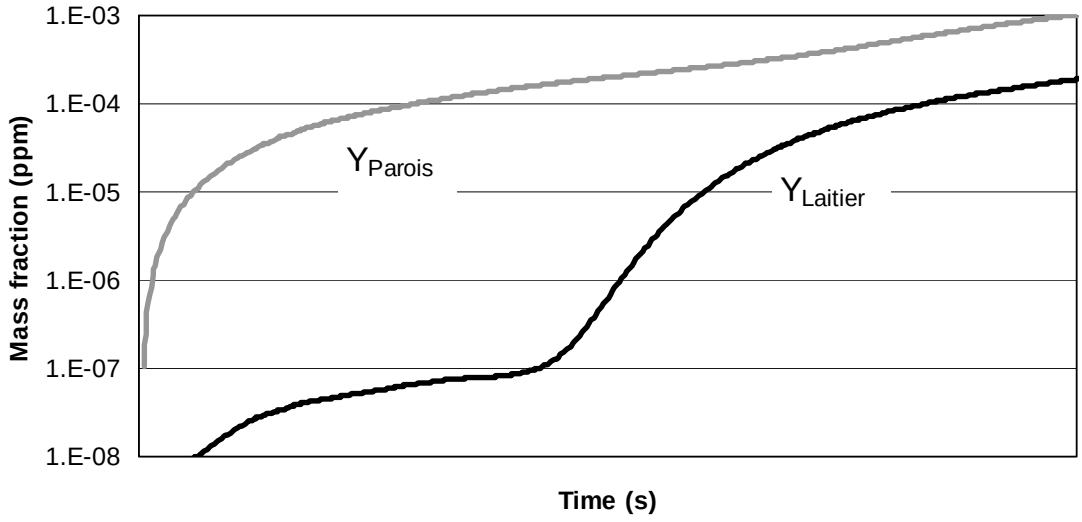


Figure 4.16 : Évolution de la masse capturée par les conditions limites.

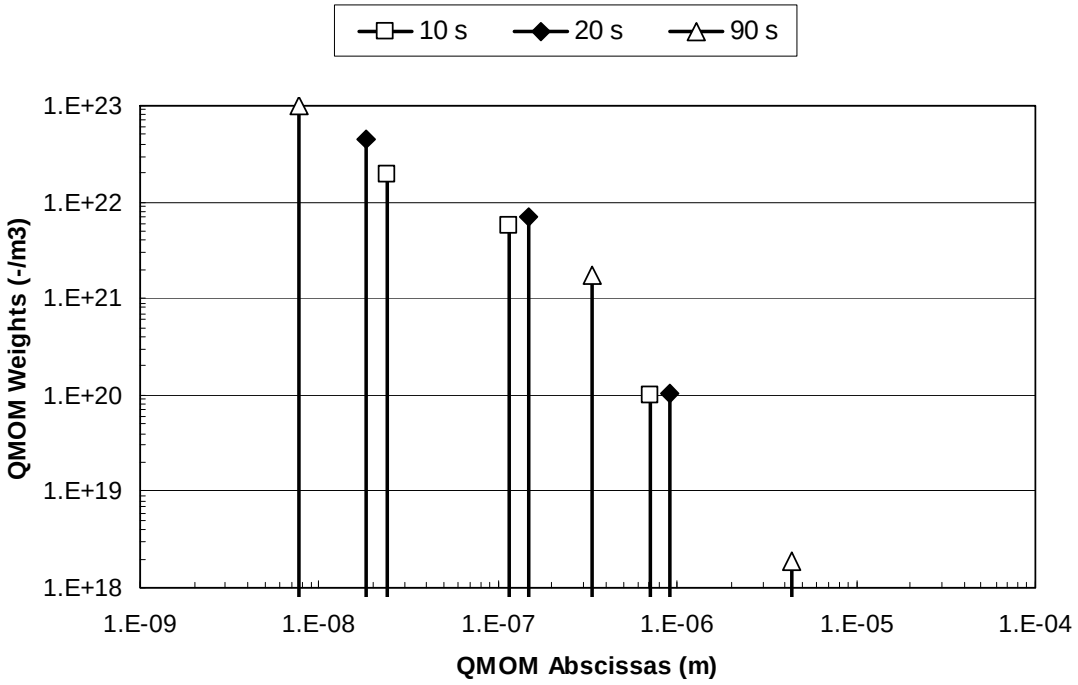


Figure 4.17 : Évolution de la distribution en taille des amas pour la poche complète.

4.5 Conclusions

Le bilan de population Multi-QMOM est en soit une avancée majeure d'un point de vue scientifique car il permet le suivi d'une population multi-variable. Son couplage aux logiciels Fluent® et MIPPHASOLACIDO le rend de plus utilisable quelle que soit la forme du réacteur et quels que soient les précipités recherchés.

Les modules de Multi-QMOM, à l'exception du module d'extraction, ont été validés par des cas analytiques. Les résultats montrent la robustesse de ce nouvel outil et le §4.4 présente la méthode de traitement des résultats obtenus par ce couplage.

En combinant la mécanique des fluides (Fluent®), la cinétique de précipitation (MIPPHASOLACIDO [9,10]) et le bilan de population multi-variable (Multi-QMOM), le nouveau couplage constitue un outil numérique efficace dans la détection d'inclusions nocives ou d'inclusions de taille suffisante pour rendre défectueux le produit final. L'analyse des fichiers résultats permettra de remonter aux sources des problèmes de précipitation d'inclusions nocives et nous serons capables de mettre en avant les actionneurs qui permettront la production d'acier de qualité en minimisant les problèmes de propreté inclusionnaire.

Bibliographie

[1]: Aaronson H.I., Lee J.K., (1978), "Precipitation processes in solids", *editions K.C. Russel et H.I. Aaronson, Conference Proceeding of the Metallurgical Society of AIME, Warrendale, PA*, p. 31.

[2]: Burty M., Peeters L., (2007), "Zero clogging", *Rapport interne Arcelor*, IRD/OI/2007/5484.

[3]: Doo W.C., Kim D.Y., Kang S.C., Yi K.W., (2007), "Measurement of the two-dimensional fractal dimensions of alumina clusters formed in an ultra low carbon steel during RH process", *ISIJ International*, **47**, pp. 1070-1072.

[4]: Fluent 6.3 user guide, (2006), Fluent Inc., Lebanon, NH, USA.

[5]: Gelbard F., Seinfeld J.H., (1978), "Numerical solution of the dynamic equation for particulate systems", *Journal of Computational Physics*, **28**, pp. 357-375.

[6]: Grosch R., Briesen H., Marquardt W., (2007), "Generalization and numerical investigation of QMOM", *AIChE Journal*, **53**(1), pp. 207-227.

[7]: Hulburt H.M., Katz S., (1964), "Some problems in particle technology: a statistical mechanical formulation", *Chemical Engineering Science*, **19**, pp. 555-574.

[8]: Lehmann J., Gaye H., (1994), "Calcul d'équilibres polyphasés : Description des algorithmes de calcul utilisés dans le logiciel CEQCSI", *Rapport interne Arcelor*, RI94053.

[9]: Lehmann J., Rocabois P., Gaye H., (2001), "Kinetic model of non metallic inclusions precipitation during steel solidification", *Journal of Non-Crystalline Solids*, **282**, pp. 61-71.

[10]: Lehmann J., Rocabois P., Gaye H., (2002), "Modèle cinétique de germination-croissance des inclusions non métalliques lors de la solidification de l'acier", *Rapport interne Arcelor*, PC&S/02/R/040/ TPP.

[11]: Marchisio D.L., Pikturna J.T., Fox R.O., Vigil R.D., Barresi A.A., (2003), "Quadrature method of moments for population-balance equations", *AIChE Journal*, **49**(5), pp. 1266-1276.

[12]: Marchisio D.L., Vigil R.D., Fox R.O., (2003), "Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes", *Journal of Colloid and Interface Science*, **258**(2), pp. 322-334.

[13]: Motz S., Mannal S., Gilles E.D., (2004), "Integral approximation – an approach to reduced models for particulate processes", *Chemical Engineering Science*, **59**, pp. 987-1000.

[14]: Silva L.F.L.R., Damian R.B., Lage P.L.C., (2007) "Implementation and analysis of numerical solution of the population balance equation in CFD packages", *Proceedings of ICMF 2007 at Leipzig 9-13 July*, S3_Wed_D_44.

[15]: Silva L.F.L.R., Rodrigues R.C., Mitre J.F., Lage P.L.C., (2009), "Comparison of the accuracy and performance of quadrature-based methods for population balance problems with simultaneous breakage and aggregation", *Computers and Chemical Engineering*, Article in press.

[16]: Thuman M., Sichen D., (2007), "Origins of non-metallic inclusions and their chemical development during ladle treatment", *Steel Research International*, **79**, pp. 124-131.

[17]: Wakoh M., Sano N., (2007), "Behavior of alumina inclusions just after deoxidation", *ISIJ International*, **47**, pp. 627-632.

[18]: Zhang L., Thomas B.G., (2003), "State of the art in evaluation and control of steel cleanliness", *ISIJ International*, **43**, pp. 271-291.

« Simulation »

Chapitre 5

Simulation de cas industriels

Le développement de l'outil numérique Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM permet la prédiction de l'évolution en taille et en composition des précipités de la poche sidérurgique. Pour vérifier la pertinence de l'outil, la confrontation des résultats numériques à des résultats expérimentaux ou industriels est essentielle. Cependant, les expériences en sidérurgie sont difficiles à réaliser. D'une part, il faut travailler à haute température (1600℃) et en second lieu, la non transparence de l'acier liquide à la lumière visible rend difficile l'observation directe des phénomènes de désoxydation et de mise à nuance.

Ce dernier chapitre présente les résultats de différentes simulations numériques choisies parmi des cas tests trouvés dans la littérature. L'étude des résultats numériques commencera par un cas expérimental de précipitation d'alumine dans un four Tammann, et sera suivi par l'étude de la constante de temps de désoxydation K_o d'une poche sidérurgique. La discussion se poursuivra par un cas d'école de précipitation multiple d'alumine et de rutile pour se terminer sur une problématique industrielle de précipitation d'aluminate de titane.

5.1 Expérience de Wakoh & Sano

5.1.1 Introduction

L'expérience menée par Wakoh *et al.* [12] consiste à faire fondre 2 kg d'acier de composition connue dans un four Tammann à 1600℃ (Figure 5.1), d'y introduire une quantité précise d'aluminium et d'en extraire un échantillon pour étudier la distribution en taille des inclusions d'alumine. Ce four a la particularité de ne produire aucun écoulement au sein de l'acier qu'il chauffe. Les précipités sont alors uniquement soumis à l'agitation brownienne et à la séparation gravitaire.

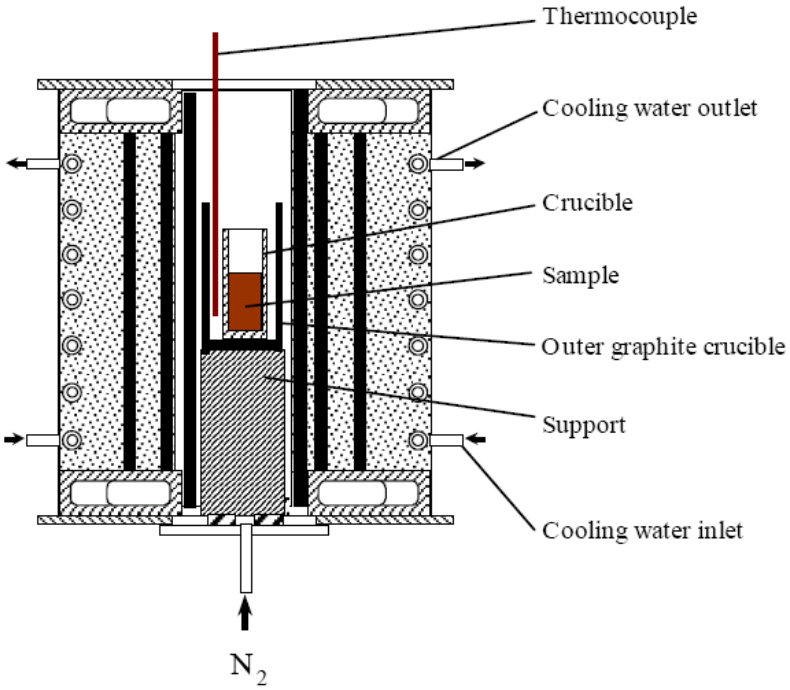


Figure 5.1 : Schéma d'un four Tammann.

L'ajout d'aluminium solide et la récupération d'un échantillon sont réalisés en utilisant un mécanisme détaillé sur la figure 5.2. Après 1 s de réaction chimique, du métal liquide est aspiré dans le tube en quartz avec un système de pompe à vide. L'acier liquide se refroidit au contact d'un morceau de cuivre rapidement plongé dans l'eau pour bloquer les réactions chimiques. Il est pratiqué 25 coupes de 20 x 20 μm dans l'échantillon ayant une masse estimée à 4.4 g. Enfin, les inclusions d'alumine formées sont mesurées grâce à un canon à électrons avec un filament au lanthanum boride LaB6.

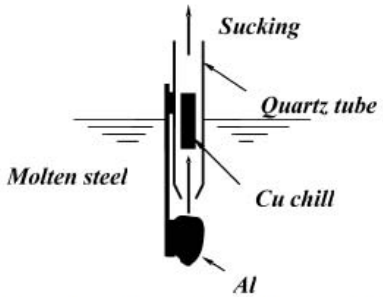


Figure 5.2 : Procédure d'introduction de l'aluminium et de récupération d'un échantillon d'acier liquide après 1 s de désoxydation [12].

5.1.2 Ensemble des cas tests considérés

2 kg de fer pur sont fondus dans un creuset en magnésie sous atmosphère d'argon. Puis les teneurs en carbone et en oxygène sont ajustées. L'aluminium solide est enfin ajouté en même temps que le système d'aspiration. 12 cas tests ont été réalisés avec les concentrations massiques répertoriées dans le tableau 5.1.

Cas	1	**2**	3	4	5	6	7	8	**9**	10	11	12
Y_{Al}	100	**200**	400	100	200	400	600	100	**200**	400	400	600
Y_O	30	**30**	42	46	79	100	148	92	**179**	215	326	444

Tableau 5.1 : Fractions massique d'aluminium Y_{Al} et d'oxygène total dissout Y_O pour les 12 expériences. Pour toutes les expériences, la fraction massique en carbone Y_C est identique (*i.e.* Y_C = 400 ppm). Les fractions massiques sont exprimées en « parts par million » ou ppm. Les distributions en taille des expériences 2 et 9 sont détaillées plus loin dans le mémoire.

Les fractions massiques d'aluminium Y_{Al} sont calculées en considérant que l'aluminium introduit fond complètement dans le creuset d'une manière homogène. Cependant, les expérimentateurs ont mesuré une fraction massique très importante d'aluminium dans l'échantillon du cas 2. L'aluminium fondu a principalement été aspiré dans l'échantillon. Pour 200 ppm d'aluminium introduit, l'échantillon prélevé en contenait en réalité 90 909 ppm. Pour tenir compte de cet aspect, les fractions massiques d'aluminium du tableau 5.1 ont été réévaluées (Tableau 5.2). Ce sont ces nouvelles fractions massiques qui seront utilisées dans les simulations numériques présentée ici.

Al estimée pour la poche complète (ppm)	100	200	400	600
Al estimée dans l'échantillon (ppm)	45 455	90 909	181 818	272 727

Tableau 5.2 : Concordance entre les fractions massiques d'aluminium voulues et les fractions massiques réelles dans les échantillons des expériences de Wakoh *et al.* [12].

Les nouvelles fractions massiques d'aluminium sont supérieures à 1% en masse, ce qui rend l'oxygène l'élément limitant de la réaction d'oxydo-réduction.

5.1.3 Résultats d'expérience

Les résultats d'expérience montrent une dépendance de la taille moyenne des inclusions en fonction de la fraction massique d'oxygène (Figure 5.3). Les distributions en taille des cas expérimentaux 2 et 9 présentées en figure 5.4 ne permettent pas une comparaison directe avec les résultats numériques car les résultats expérimentaux sont réalisés par observations de coupes surfaciques alors que les simulations numériques sont tridimensionnelles. Les distributions surfaciques doivent être transformées en distributions volumiques.

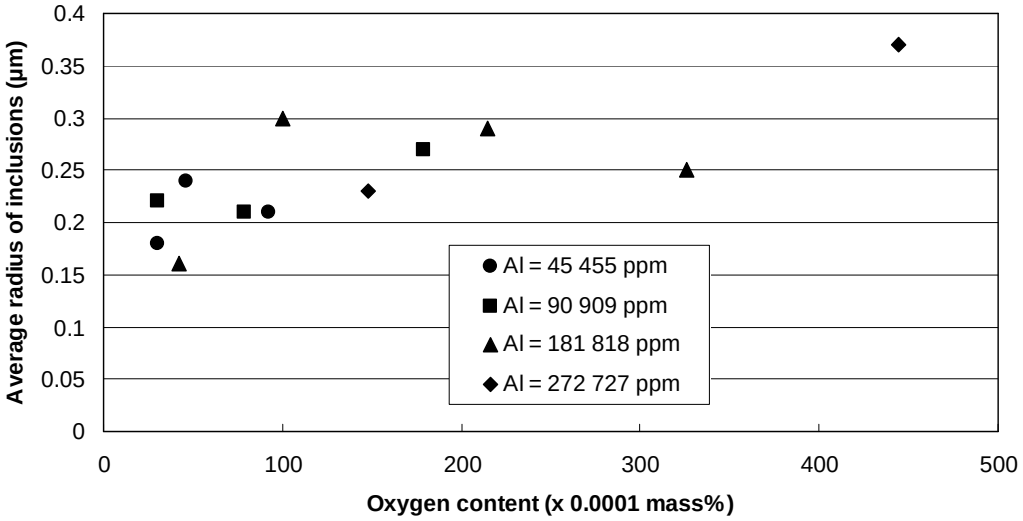


Figure 5.3 : Rayons moyens des 12 expériences en fonction de la fraction massique en oxygène [12].

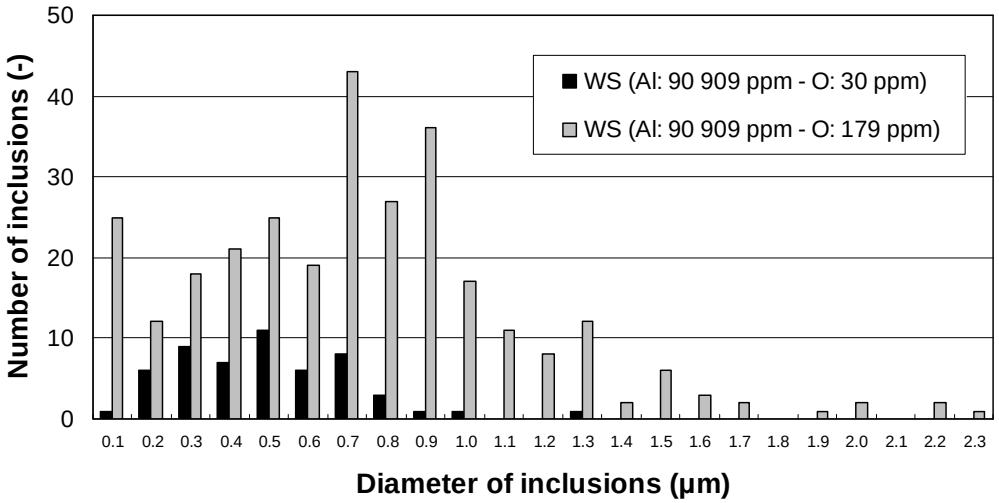


Figure 5.4 : Distribution en taille des expériences 2 et 9 [12].

5.1.4 Transformation des distributions : de surface en volume

Le passage des distributions expérimentales observées en coupe aux distributions volumiques a été réalisé en utilisant un logiciel qui estime la taille tridimensionnelle d'une inclusion dans une épaisseur donnée avec la méthode de Monte-Carlo. A l'aide de certaines hypothèses, non développées ici, l'estimation d'une population de particules sphériques va être modélisée sur une surface puis développée dans une épaisseur définie. Pour une meilleure lecture des distributions avant et après transformation des résultats de Wakoh & Sano, les nœuds QMOM des distributions sont reliés (Figures 5.5 et 5.6).

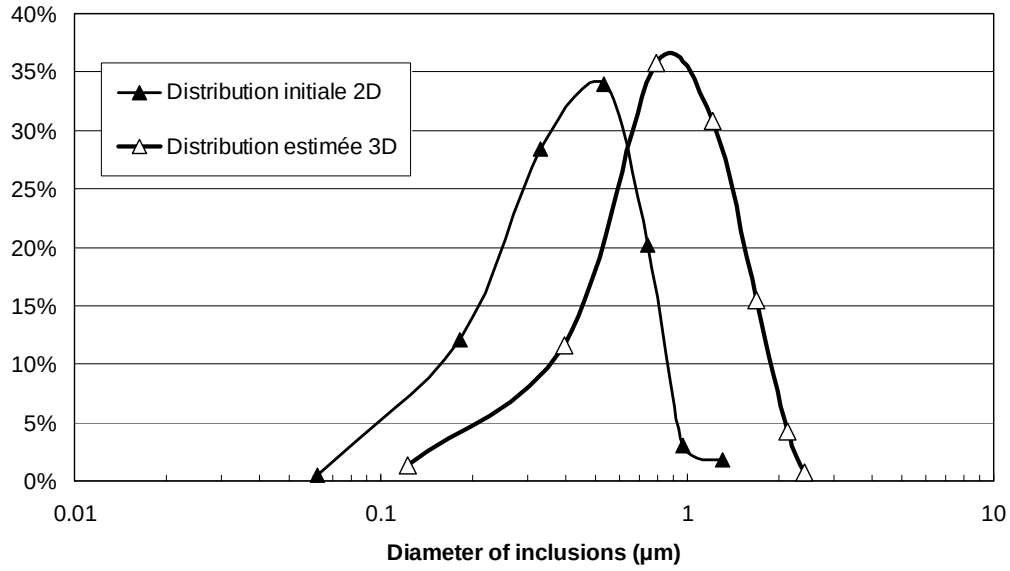


Figure 5.5 : Passage de la distribution en surface à la distribution en volume du cas d'expérience 2 (Al: 200 ppm – O: 30 ppm).

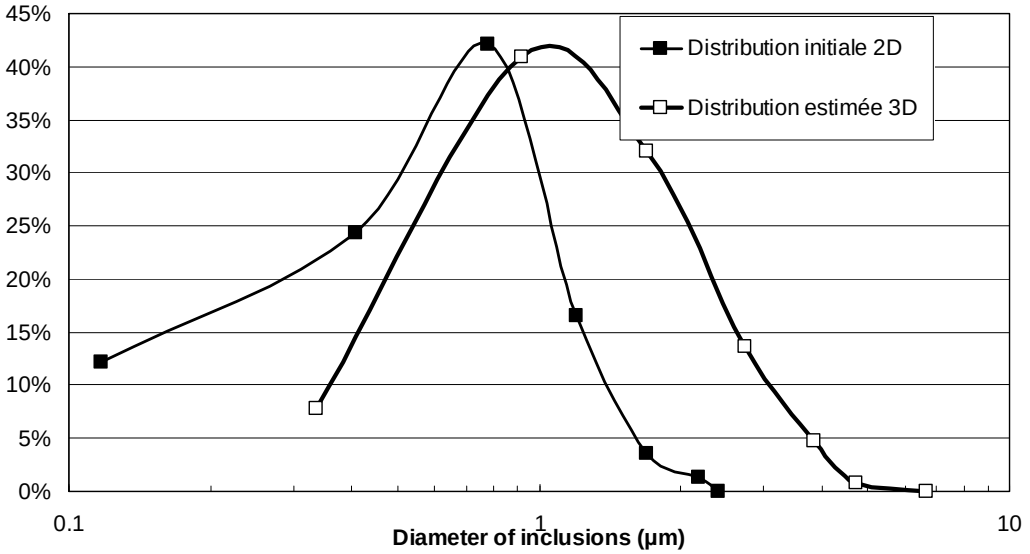


Figure 5.6 : Passage de la distribution en surface à la distribution en volume du cas d'expérience 9 (Al: 200 ppm – O: 179 ppm).

Les distributions sont lissées et décalées vers les diamètres de particules plus grandes. Le lissage des distributions est produit par le passage de l'utilisation de la méthode des classes à QMOM. En effet, QMOM utilise moins de « classes » donc certaines informations locales sont perdues. Ensuite, les distributions sont décalées vers des particules de plus grands diamètres car le logiciel de transformation des distributions tient compte de la faible probabilité de couper une particule par son équateur.

Remarque 5.1 :
Les distributions de l'expérience sont initialement données par une méthode des classes. Il a d'abord fallu construire tous les moments des distributions avec ces classes avant d'utiliser l'algorithme Produit-Différence pour retrouver les poids et les abscisses correspondantes à ce système.

Remarque 5.2 :
Les inclusions inférieures à 0.1µm ne peuvent être observées avec le canon à électron. Les distributions présentées dans l'article sont tronquées en-dessous de cette valeur. Les petites particules sont alors mal représentées par les résultats de l'expérience.

5.1.5 Simulations numériques

Ces expériences, difficiles à mettre en place, sont l'objet d'une étude comparative avec le couplage MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM. Deux séries de simulations numériques représentant les 12 cas d'expériences sont réalisées pour différentes valeurs de tension de surface et de dimension fractale (*cf.* Tableau 5.3).

	Al_2O_3
ΔG^0 (J)	-1 199 869 + 393.2118859*T
V_m (m^3 mol^{-1})	2.555413*10^{-5}
σ (N m^{-1})	0.1 à 0.8

T (K)	1 873
Δt (s)	1
D_f	3 et 2.2
Modules Multi-QMOM activés	Germination
	Croissance par diffusion
	Agrégation brownienne
	Agrégation par séparation gravitaire

Tableau 5.3 : Propriétés thermodynamiques de l'alumine et paramètres de simulation.

Ces simulations numériques permettent de vérifier l'influence de la dimension fractale D_f et de la tension de surface σ sur la distribution des amas. Alors que la dimension fractale dépend de l'agitation et de la concentration en particules §2.3, la tension de surface dépend quant à elle de la concentration des autres éléments présents (Figure 5.7). De plus, ce dernier paramètre intervient non seulement dans le calcul de l'énergie libre de Gibbs ΔG mais aussi dans le calcul du diamètre des nucleii L^* (éqs. (2.7) et (2.9)). Ces deux paramètres difficiles à obtenir

(dimension fractale et tension de surface) jouent alors un rôle capital sur la forme des distributions des agrégats.

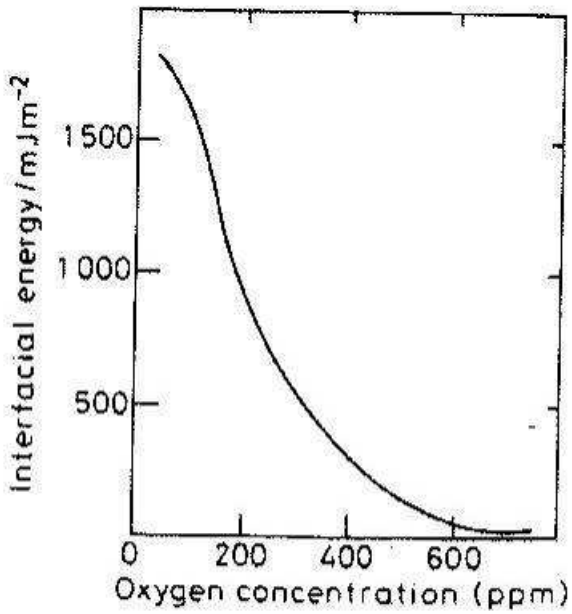


Figure 5.7 : Effet de la concentration en oxygène dans un acier liquide sur la tension de surface de l'alumine à 1600℃ [11].

La tension de surface peut être vue comme un paramètre ajustant la compétition entre la précipitation et la croissance en surface. Si la valeur est trop grande la précipitation n'apparait plus et au contraire si cette valeur est faible, la précipitation est facilité au détriment de la croissance en surface. Par exemple, une valeur de $\sigma = 0.1$ est bien adaptée pour des concentrations élevées en oxygène. Une valeur supérieure ou égale à $\sigma = 0.8$ ne permet plus de faire précipiter l'alumine dans toutes les configurations du tableau 5.1.

Pour observer l'impact de la tension de surface et de la dimension fractale sur la précipitation d'alumine, deux séries de simulations numériques ont été réalisées (Tableaux 5.4 et 5.5). Les autres paramètres de la simulation sont résumés dans le tableau 5.3.

$\sigma\left(\mathrm{Nm}^{-1}\right)$	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8

Tableau 5.4 : Présentation de la première série de simulations. Seule la tension de surface est testée.

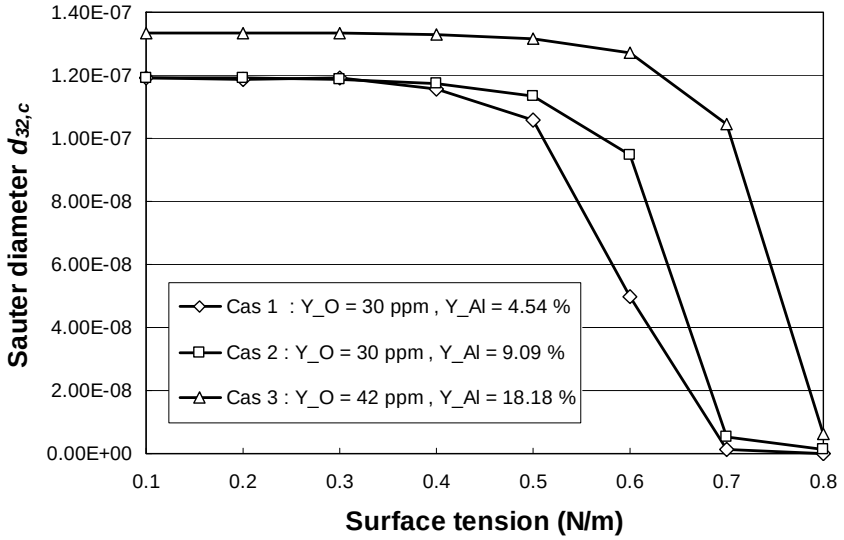
	D_f	
$\sigma = 0.1$	3.0	2.2
$\sigma = 0.5$	3.0	2.2

Tableau 5.5 : Présentation de la seconde série de simulations. La tension de surface est testée en fonction de deux valeurs de dimension fractale.

5.1.6 Résultats des simulations

Les résultats de la première série de simulations (Figures 5.8 à 5.9) montrent que le diamètre de Sauter des amas $d_{32,c}$ et le nombre d'amas n'évoluent quasiment plus lorsque la tension de surface est inférieure à $\sigma = 0.5$. De plus, pour les cas 1 et 4 avec une tension de surface de $\sigma = 0.8$, les simulations ne prédisent plus la précipitation alors qu'elle existe dans les expériences.

D_f = 3.0



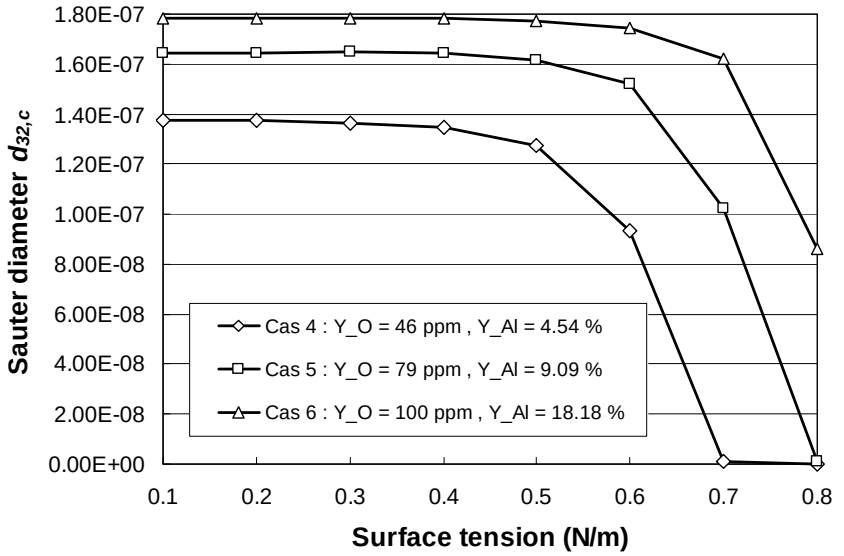
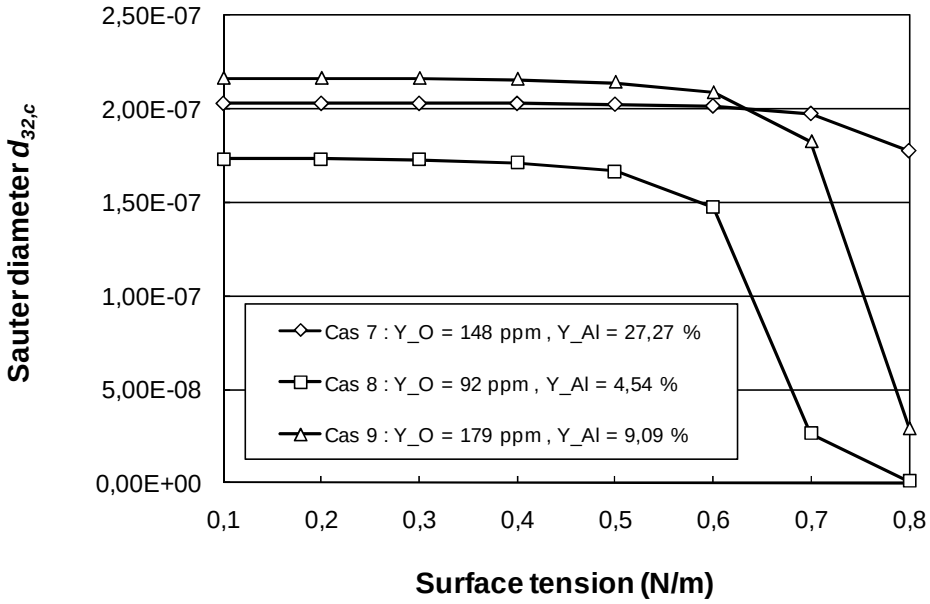


Figure 5.8 : Évolution du diamètre de Sauter des amas d'alumine au bout d'1 seconde de réaction chimique en fonction de la tension de surface pour $D_f = 3.0$ des 6 premiers cas d'expériences du tableau 5.1.

D_f = 3.0



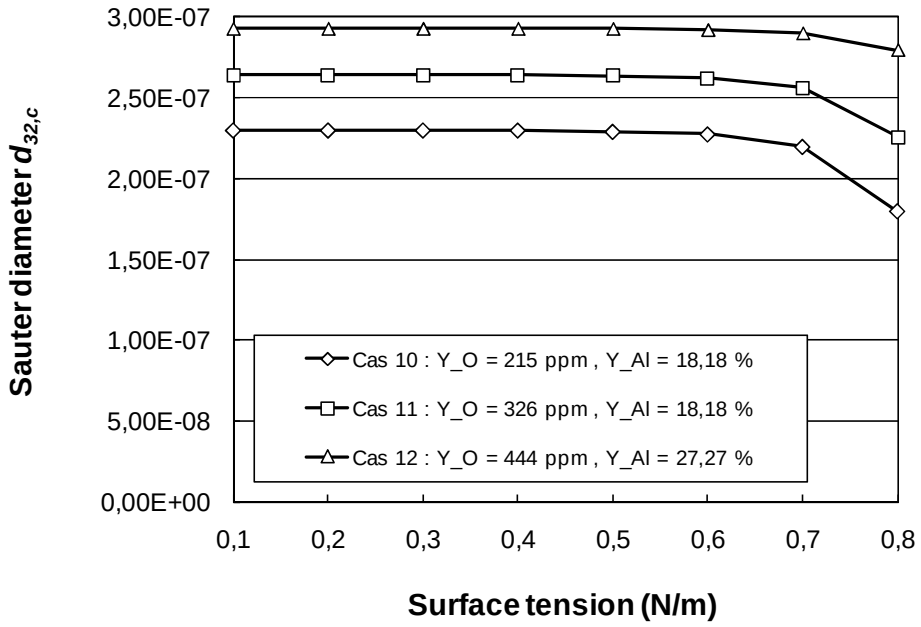


Figure 5.9 : Évolution du diamètre de Sauter des amas d'alumine au bout d'1 seconde de réaction chimique en fonction de la tension de surface pour $D_f = 3.0$ des 6 derniers cas d'expériences du tableau 5.1.

Les résultats de la seconde série de simulations (Figures 5.10 à 5.15) montrent la même dépendance observée par les expérimentateurs entre le rayon moyen volumique des inclusions d'alumine $r_{30,c} = d_{30,c} / 2$ et la fraction massique en oxygène. Les résultats des simulations (Figures 5.10 à 5.12) donnent cependant des rayons moyens volumique $r_{30,c}$ légèrement inférieures à ceux obtenus durant les expériences. Cette observation est confirmée en regardant les distributions obtenues par les simulations numériques pour les cas 2 et 9 (Figures 5.16 et 5.17). Les distributions en taille des résultats numériques sont inférieures d'un facteur 3 ou 4 à ceux obtenus lors des expériences.

De plus, la diminution de la dimension fractale augmente sensiblement les rayons des simulations numériques (Figures 5.11 et 5.13) car le rayon de collision est remplacé par le rayon apparent dans le calcul des noyaux de collisions alors que la variation de tension de surface affecte peu ou pas du tout les rayons volumiques moyens (Figures 5.14 et 5.15).

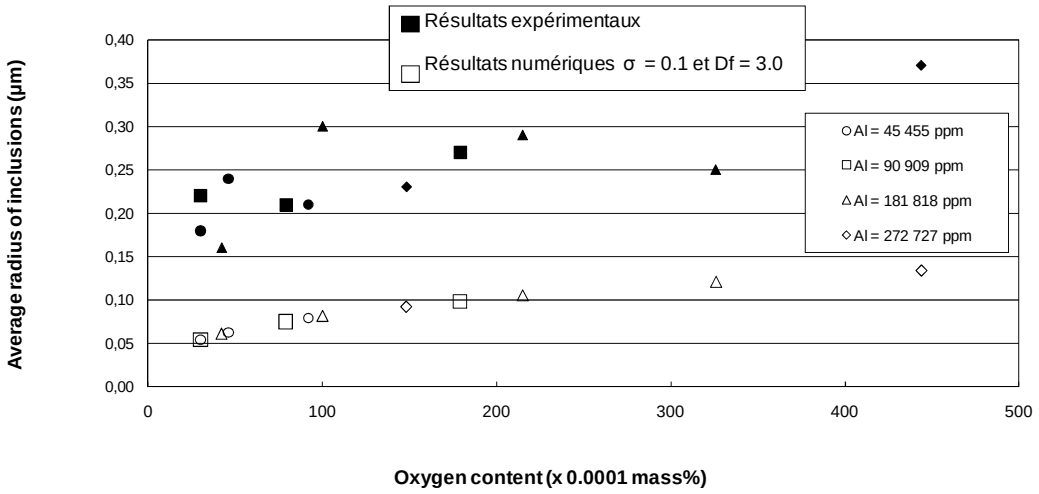


Figure 5.10 : Confrontation résultats expérimentaux et numériques pour $\sigma = 0.1$ et. $D_f = 3.0$.

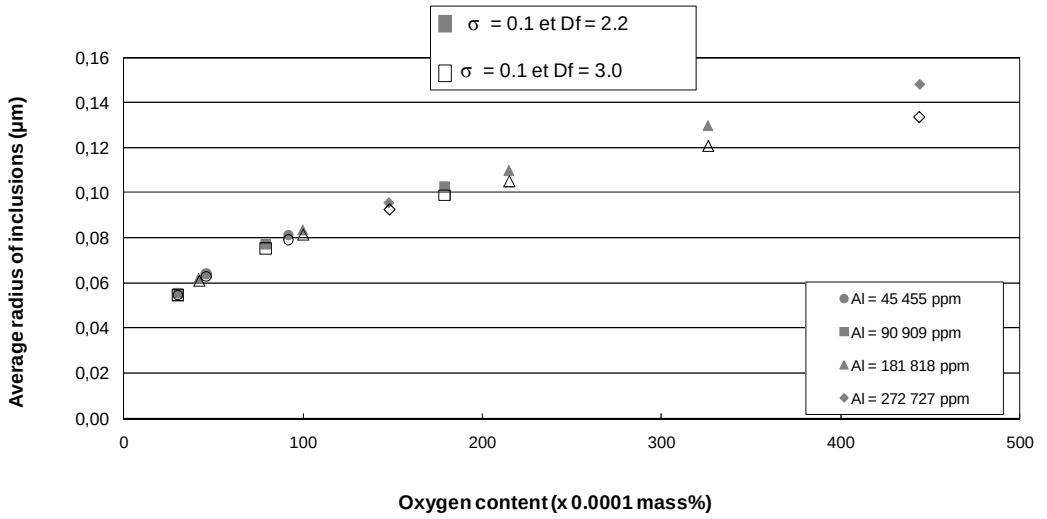


Figure 5.11 : Confrontation résultats numériques pour $D_f = 2.2$ et $D_f = 3.0$ avec $\sigma = 0.1$.

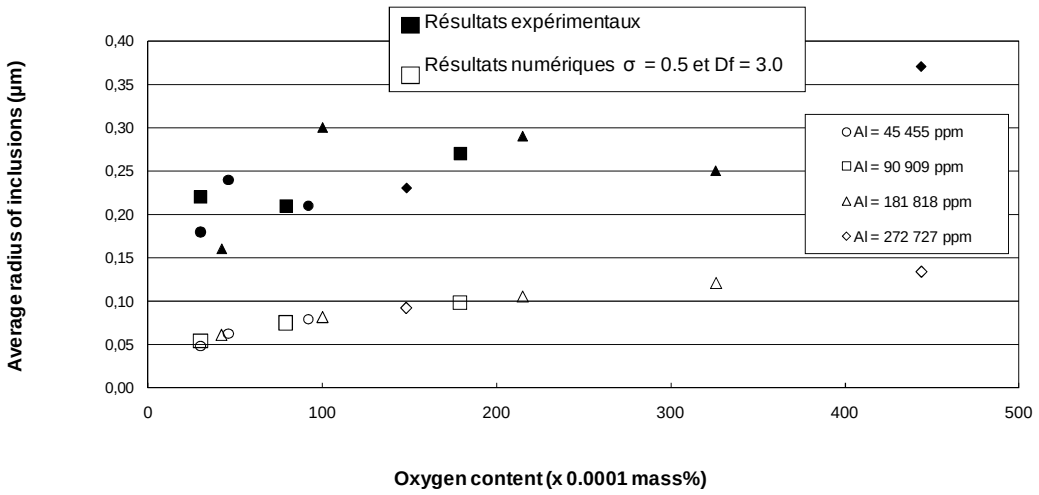


Figure 5.12 : Confrontation résultats expérimentaux et numériques pour $\sigma = 0.5$ et. $D_f = 3.0$.

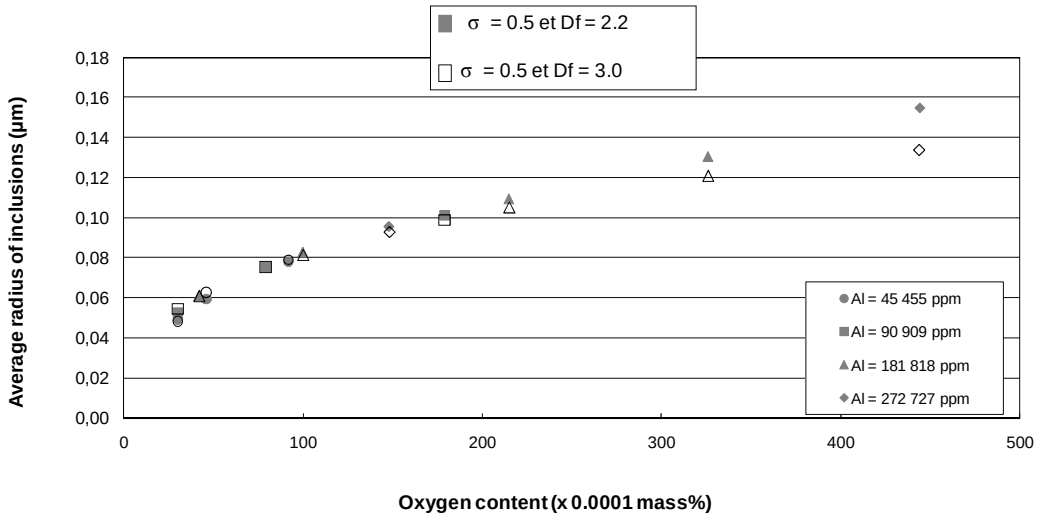


Figure 5.13 : Confrontation résultats numériques pour $D_f = 2.2$ et $D_f = 3.0$ avec $\sigma = 0.5$.

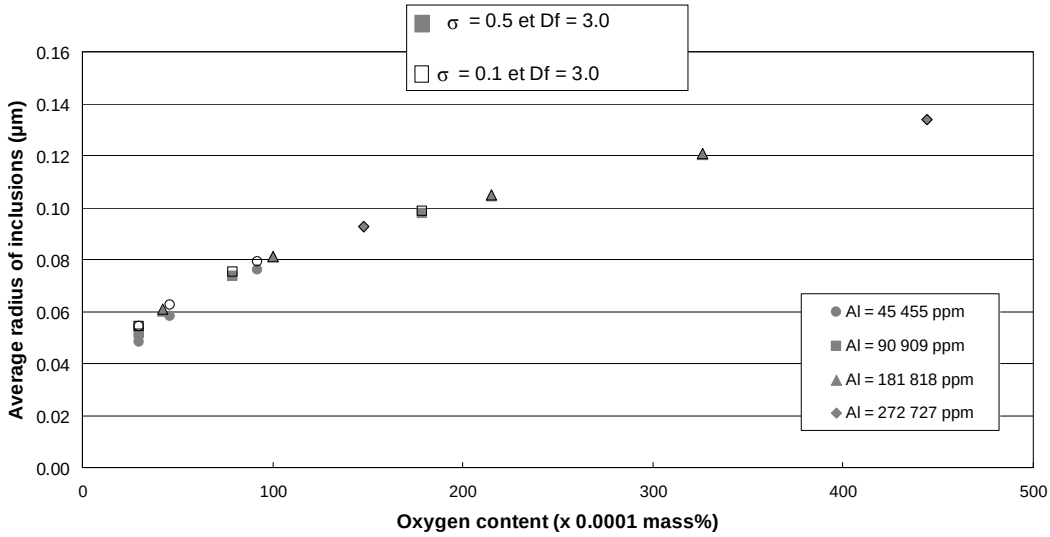


Figure 5.14 : Résultats numériques pour $\sigma = 0.1$ et $\sigma = 0.5$ avec $D_f = 3.0$.

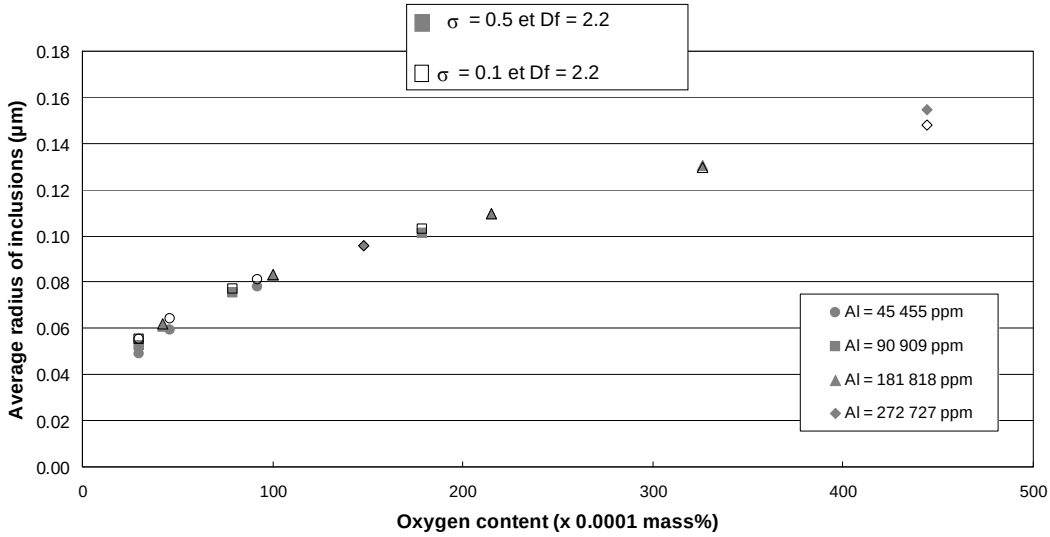


Figure 5.15 : Résultats numériques pour $\sigma = 0.1$ et $\sigma = 0.5$ avec $D_f = 2.2$.

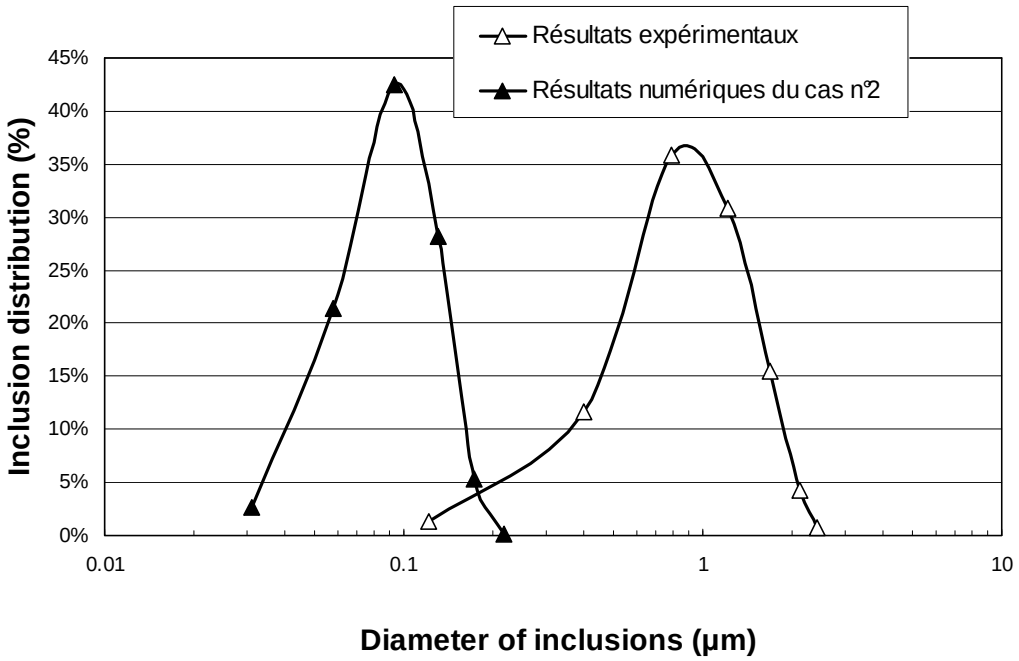


Figure 5.16 : Confrontation résultat expérimental et numériques du cas n°2 pour $\sigma = 0.1$ et $D_f = 3.0$. (Formes géométriques vides : expériences ; formes pleines : simulations numériques).

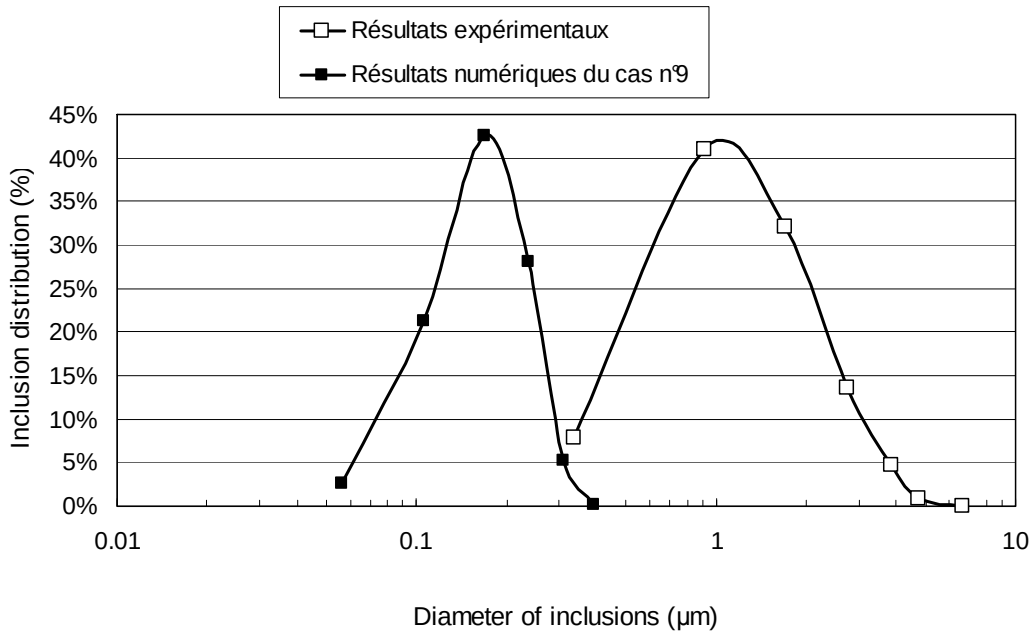


Figure 5.17 : Confrontation résultat expérimental du cas n°9 - résultats de simulation pour $\sigma = 0.1$ et $D_f = 3.0$. (Formes géométriques vides : expériences ; formes pleines : simulations numériques).

5.1.7 Conclusions

La présence en grande quantité de particules de faible taille ($r_{30,c}$ < 0.1 μm) permet d'expliquer en partie les faibles tailles des distributions obtenues par nos simulations. Il s'avère que les premiers précipités se remettent partiellement en solution pour produire de nouveaux précipités de taille plus importante. Comme la sursaturation diminue du fait de la consommation des éléments, la taille critique de germination augmente (Figure 5.18). Les particules de taille inférieure au nouveau diamètre de précipitation ne sont plus à l'équilibre et se remettent en solution. C'est le phénomène de maturation d'Oswald qui se poursuit tant que le diamètre des particules n'est pas supérieur au diamètre critique de précipitation.

Nous avons testé l'influence de la tension de surface et de la dimension fractale sur la taille moyenne des inclusions dans MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM. Les deux séries de simulations numériques montrent d'une part que la tension de surface doit être faible pour qu'il y ait précipitation dans chaque cas du tableau 5.1 et d'autre part que la diminution de la dimension fractale $D_f = 3.0 \rightarrow 2.2$ entraine une augmentation des rayons volumiques moyens $r_{30,c}$. Cependant, la diminution de la dimension fractale n'explique pas à elle seule la différence de taille des amas entre la simulation numérique et l'expérience surtout que la morphologie des inclusions observées durant l'expérience (Figure 5.19) montre une compacité élevée indiquant que la dimension fractale est proche de 3.0.

La comparaison numérique-expérimental doit être remise en question car il existe des zones d'ombre sur la valeur de certains paramètres. Nous avons testé la dimension fractale et la tension de surface mais ce ne sont pas les uniques variables ajustables. Tout d'abord, seule la phase d'alumine α stable est considérée alors que les autres phases d'alumine instables β, γ, κ et θ sont ignorées. Ensuite, nous avons peu de données sur la procédure d'échantillonnage. Par exemple, l'aspiration pourrait accélérer l'agrégation et la trempe augmenter la force motrice de précipitation. Deux phénomènes non simulés. Nous travaillons dans un réacteur parfaitement agité alors que ce n'est visiblement pas le cas de l'expérience (non contrôle de la fraction massique en aluminium). Enfin, les petites inclusions inférieures à 0.1 μm ne sont pas détectées par l'outil de mesure alors qu'elles sont présentes en grand quantité dans nos simulations. Réduire les incertitudes pourrait modifier favorablement la comparaison entre nos résultats numériques et ceux de l'expérience.

Pour conclure, maintenant que l'impact de ces deux paramètres a été mis en avant, la tension de surface et la dimension fractale seront pris constants dans la suite des résultats présentés avec les valeurs suivantes : $\sigma = 0.1$ et $D_f = 3.0$.

Remarque 5.3 :
Pour des informations complémentaires concernant la valeur de la tension de surface, le lecteur pourra se référer aux articles de Wasai *et al.* [13-14] qui montrent la dépendance de la tension de surface de l'alumine à l'activité en oxygène, en aluminium mais aussi sur la phase d'aluminium précipitée (*i.e.* $\alpha, \beta, \gamma, \kappa$ ou θ). Nos calculs numériques ne prennent en compte que la phase stable α de l'alumine.

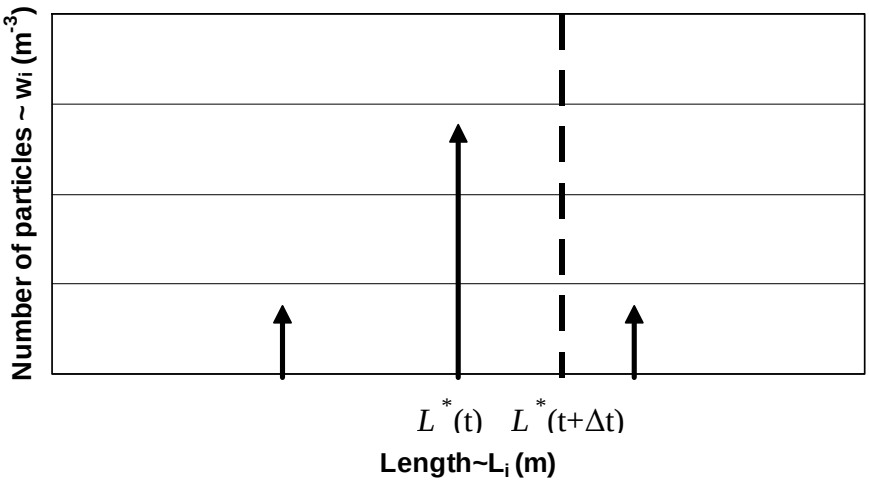


Figure 5.18 : Évolution de la taille critique de germination L^*. La précipitation du premier pas de temps est représentée par les 3 flèches. Le pic central est positionné sur la taille critique de germination du premier pas de temps. Il se décale vers des tailles plus grandes car la sursaturation diminue. Les classes de tailles inférieures à L^* vont se remettre en solution en faveur des classes plus grandes que L^*. Pour plus d'informations, se référer au chapitre 2.

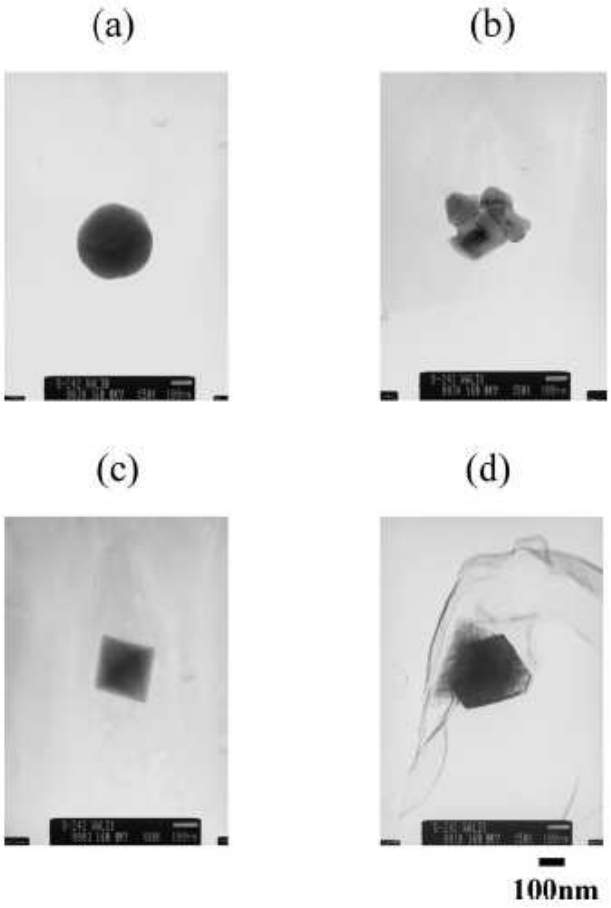


Figure 5.19 : Images au microscope électronique à transmission d'inclusions d'alumine provenant des différentes expériences de Wakoh *et al.* [12]. (a) sphère : Cas 9, (b) agrégat : Cas 10, (c) octaèdre : Cas 2 et (d) hexagonal : Cas 10.

5.2 Désoxydation de la poche par précipitation d'alumine

5.2.1 Introduction

La connaissance des phénomènes se déroulant durant la désoxydation de la poche est un objectif majeur pour caractériser la propreté inclusionnaire. Ce procédé fait l'objet d'un grand nombre d'études expérimentales ou numériques [1, 5, 6, 7, 16, 17]. Cette désoxydation est souvent réalisée par injection d'aluminium sous forme de particules sphériques, ou de fil fourré. La figure 5.23 [6] synthétise les résultats industriels d'une douzaine de cas de désoxydation de poches par précipitation d'alumine.

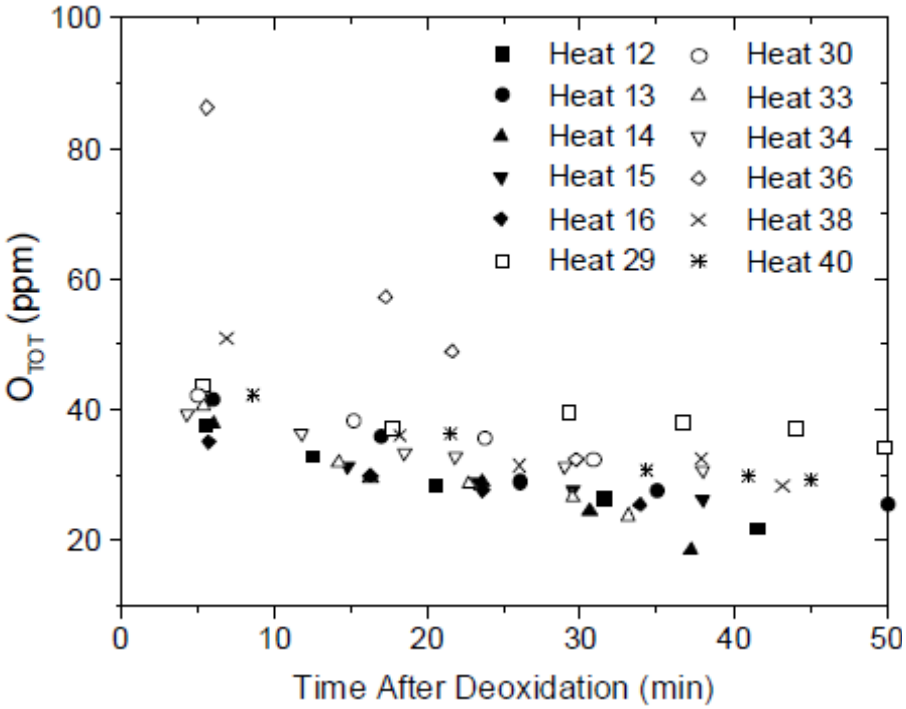


Figure 5.20 : Évolution de la fraction d'oxygène total (dissous + oxydé) en fonction du temps pour une douzaine de cas industriels de poches brassées à l'argon sous vide provenant d'ArcelorMittal Dofasco.

La décroissance de l'oxygène total (Figure 5.20) peut être caractérisée par une cinétique du premier ordre :

$$K_O = -\frac{1}{C_O}\frac{dC_O}{dt} \tag{5.1}$$

où K_O est la « constante » de désoxydation et C_O la concentration massique en oxygène total.

Cette constante, souvent donnée en fonction de l'énergie de brassage ε (Figure 5.21), dépend de la méthode de brassage utilisée : injection de bulles d'argon, électromagnétique, sous vide, etc.

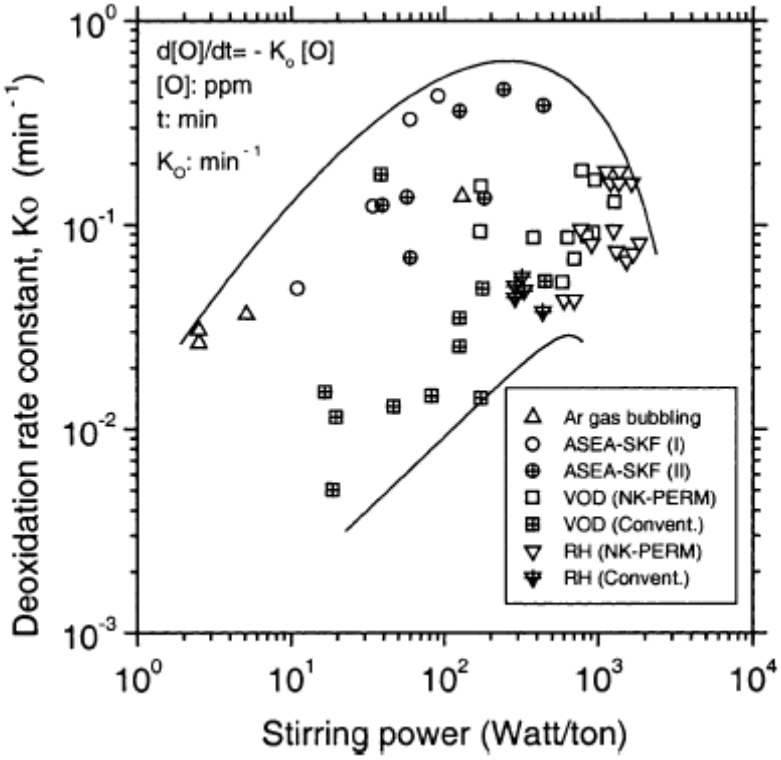


Figure 5.21 : Effet de la puissance de brassage sur la constante de désoxidation K_O [17]. ASEA-SKF est une poche brassée électromagnétiquement. VOD (Vacuum Oxygen Decarburization) est une chambre contenant la poche où le vide est réalisé. RH du nom de ses inventeurs (Ruhrstahl-Hereaus) est un équipement dans lequel le vide est réalisé dans une enceinte communiquant avec le métal liquide par l'intermédiaire de deux jambes immergées dans la poche.

Les données expérimentales de la figure 5.21 sont limitées par deux courbes. Il existe un temps de désoxydation optimal se situant au sommet de la courbe limite supérieure. Pour une même méthode de brassage, plus l'énergie est grande, plus la constante de désoxydation est grande. Cependant ce raisonnement a une limite. En effet, si le brassage est trop fort (>~200 W/tonnes) le temps d'élimination des inclusions diminue à nouveau. Deux causes majeures expliquent ce changement de comportement. Tout d'abord, un brassage fort arrache le laitier en surface où peu avoir lieu une nouvelle oxydation à travers un « open eye ». Ensuite, un fort cisaillement de l'écoulement sur les parois de la poche provoque l'érosion des briques réfractaires introduisant de nouvelles inclusions.

La désoxydation convient parfaitement à la validation du modèle d'extraction de notre outil Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM où la constante de désoxydation K_O numérique pourra être comparée à celles évaluées industriellement.

5.2.2 Mise en place de la simulation

Une simulation numérique de désoxydation d'une poche sidérurgique a été mise en place avec des paramètres industriels (Tableau 5.6).

Dimension du problème	2D
Symétrie	révolution axiale
Nombre de cellules	1 000
Modèle de turbulence	$k-\varepsilon$ réalisable

Diamètre poche (m)	4
Hauteur de poche (m)	3.7
Position du bouchon	centré
Diamètre du bouchon (m)	0.014
Température de l'acier liquide (K)	1 873
Densité acier liquide (kg/m^3)	7 000
Viscosité dynamique de l'acier liquide (Pa s)	0.0062
Débit d'argon (*N*l/min)	300
Taille initiale des bulles (m)	0.002
Densité argon (kg/m^3)	0.28
Énergie de brassage (W/t)	~13

Tableau 5.6 : Principaux paramètres utilisés pour la simulation de désoxydation de la poche.

La simulation numérique est réalisée en trois temps. La poche est d'abord brassée par injection de bulles d'argon (Figure 5.22) jusqu'à atteindre un état stationnaire (Figure 5.23). L'écoulement est figé dans son état stationnaire et les particules d'aluminium pures sont ensuite introduites de façon continue dans le système (Figure 5.24). Lorsque la première particule d'aluminium fond, l'outil numérique est enfin activé.

Remarque 5.4 :
Le temps de fusion des éléments d'addition (*e.g.* particules d'aluminium) est imposé égal à 1 seconde de transport. Ce temps est basé sur les travaux effectué par Gardin *et al.* [4] pour la fusion de particules de titane dans l'acier liquide.

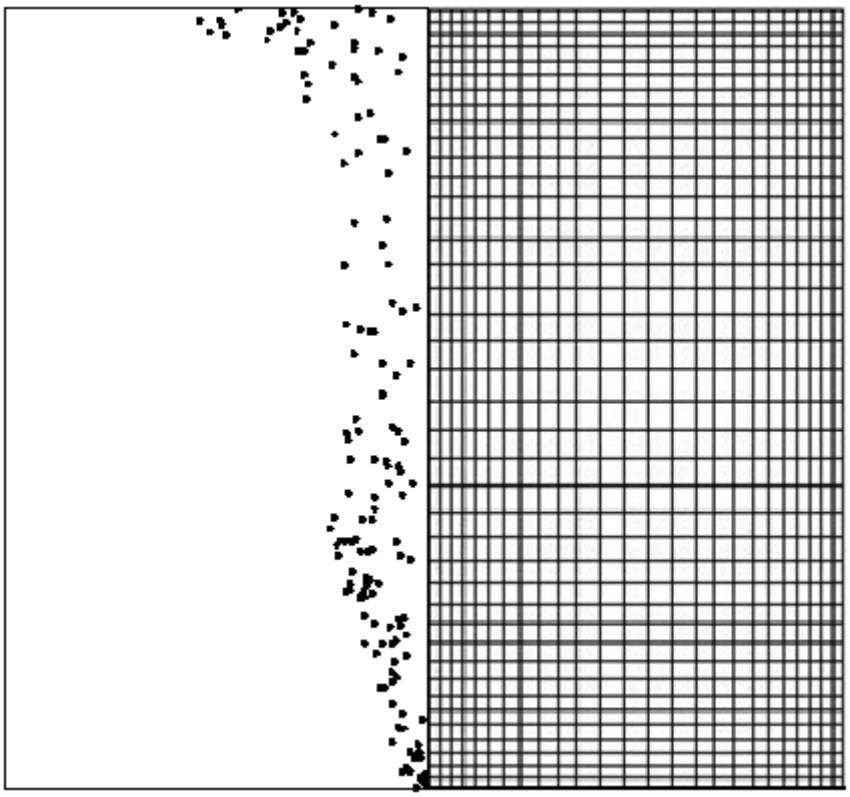


Figure 5.22 : Représentation (à gauche) du parcours des bulles d'argon dans le maillage 2D de révolution axiale (à droite). Les trajectoires des bulles sont calculées en utilisant le modèle lagrangien DPM proposé dans Fluent® [3].

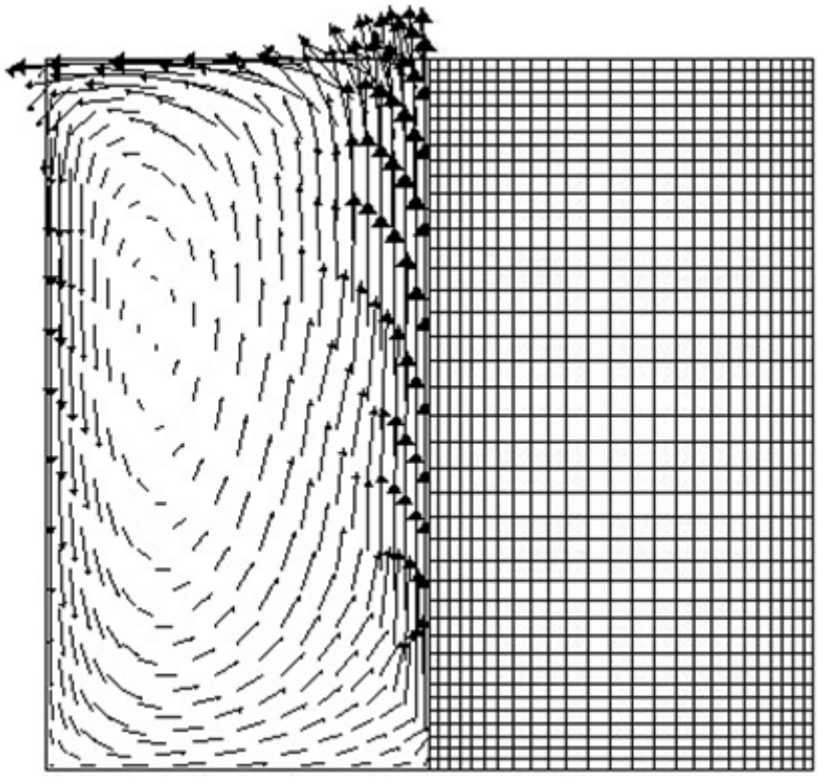


Figure 5.23 : Représentation (à gauche) de l'écoulement stationnaire avec le maillage 2D de révolution axiale (à droite). La vitesse maximale de remontée du fluide est atteinte sur l'axe central avec une valeur de $v_z = 1.3\text{m/s}$.

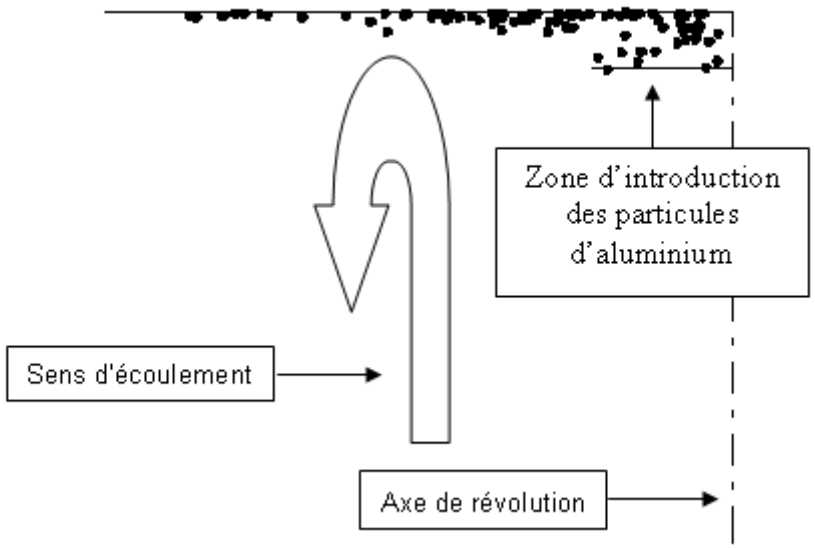


Figure 5.24 : Représentation du transport des particules d'aluminium pur dans l'écoulement figé. Les particules sphériques sont injectées quelques centimètres en dessous du laitier mais la différence de densité les fait remonter.

Dans cette simulation, la vitesse d'extraction aux parois est calculée avec l'équation présentée au §2.4 :

$$u_{p,i} = u_d^+ u^* = \left(0.057 Sc_i^{-\frac{2}{3}} + 4.5\times10^{-4} \left(\tau_{p,i}^+\right)^2 \right) u^* + u_{T,i} \qquad (5.2)$$

avec :

$$u^* = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho_F}} \qquad (5.3)$$

L'interface acier liquide / laitier est quant à elle simulée comme une surface libre et en conséquence sans cisaillement. Afin de toujours pouvoir utiliser l'éq. 5.2, la vitesse de cisaillement est alors remplacée par la vitesse fluctuante u'. Cette vitesse représente les fluctuations turbulentes apparaissant à cette interface et qui peuvent la déformer :

$$u^* \approx \sqrt{\frac{2}{3}k} \qquad (5.4)$$

Ce choix empirique se justifie en remarquant que dans la zone d'équilibre d'une paroi pour un écoulement turbulent, la vitesse fluctuante est du même ordre de grandeur que la vitesse de cisaillement.

5.2.3 Tests préliminaires du module d'extraction

Pour tester le module d'extraction de l'outil numérique, six simulations ont été réalisées avec le maillage 2D de révolution axiale. La poche est remplie initialement de particules de taille identique (20 μm, 50 μm ou 100 μm). Ensuite, le module d'extraction et le transport de particules sont activés. Enfin, les fichiers résultats sont traités et présentés en figure 5.25. Sur cette dernière figure, il a été ajouté les données industrielles de désoxydation par brassage à l'argon [17] et la courbe de tendance observée par Graham *et al.* [6] d'équation :

$$K_O = (0.57 \pm 0.15)\varepsilon^{(0.28\pm0.08)}, \tag{5.5}$$

Les tests sont réalisés avec ou sans prise en compte de la vitesse turbulente (éq. 5.4) pour l'interface acier liquide / laitier. Ainsi, pour atteindre la courbe calculée par Graham *et al.* [6] il faut soit que la population inclusionnaire ait une taille de 100 μm sans prise en compte de la vitesse turbulente, et une taille de 50 μm avec prise en compte de la vitesse turbulente.

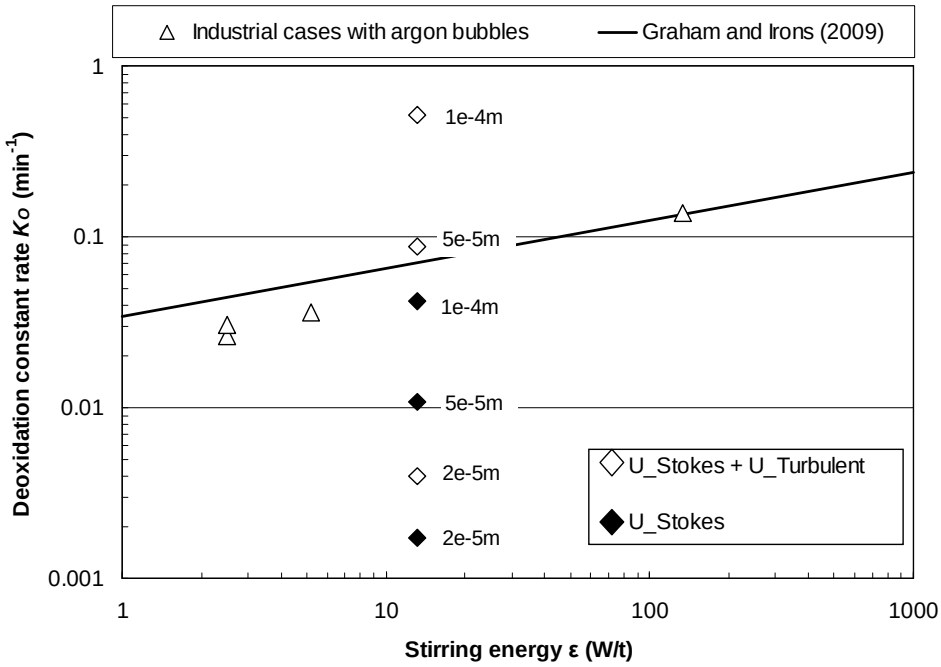


Figure 5.25 : Temps de désoxydation des cas industriels brassé à l'argon. La droite représente l'équation obtenue par Graham *et al*. [6] reliant l'énergie de brassage à la constante de désoxydation.

5.2.4 Simulation numérique de la désoxydation de la poche

Après extraction et post-traitement, les résultats de la simulation 2D de révolution axiale montrent que l'oxygène dissous précipite sous forme d'alumine durant les 50 premières secondes (Figure 5.26). Les réactions chimiques se stabilisent et la fraction massique d'alumine diminue par extraction du bain.

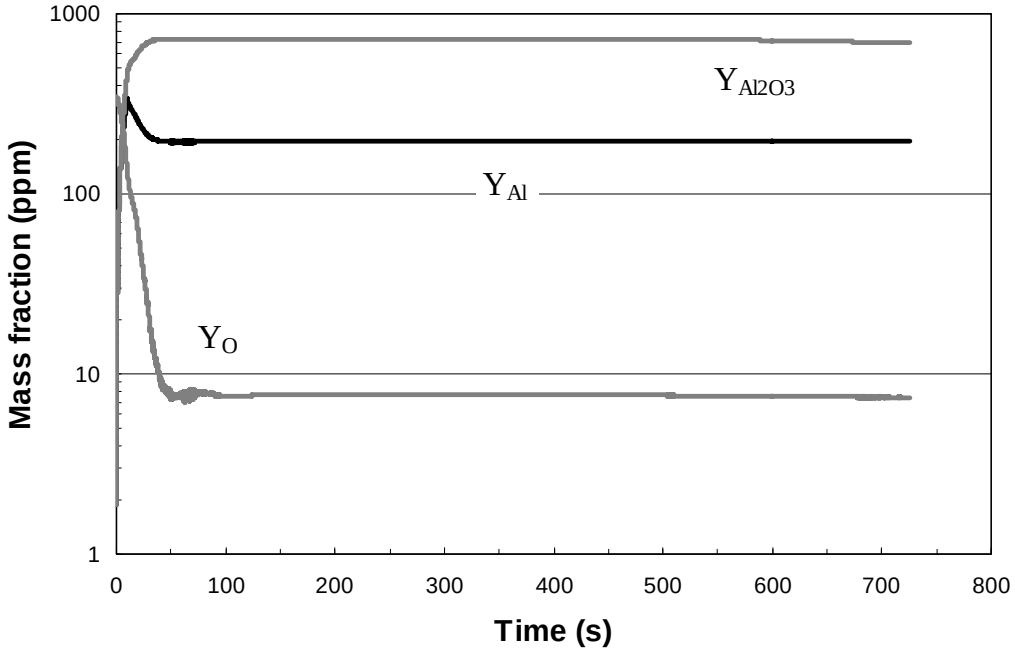


Figure 5.26 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments simples (oxygène dissous et aluminium) et du précipité (alumine). L'extraction de l'alumine apparait seulement vers la fin de la simulation.

Mais l'évolution de la taille moyenne des amas (Figures 5.27 et 5.28) nous informe d'une remise en solution des inclusions. Cependant après 100 s de traitement, l'agrégation binaire domine le phénomène de remise en solution et des amas de tailles micrométrique commencent à apparaitre. Ce phénomène s'inverse après 550 s de traitement lorsque les grosses particules produites deviennent minoritaires.

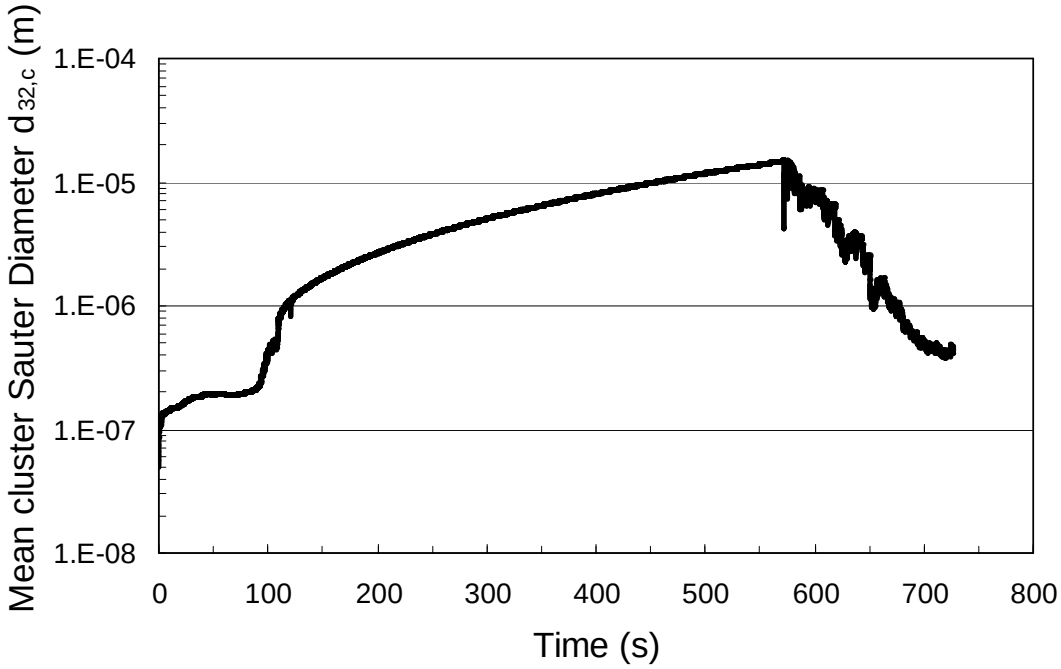


Figure 5.27 : Évolution temporelle de la taille moyenne de Sauter $d_{32,c}$ des amas d'alumine.

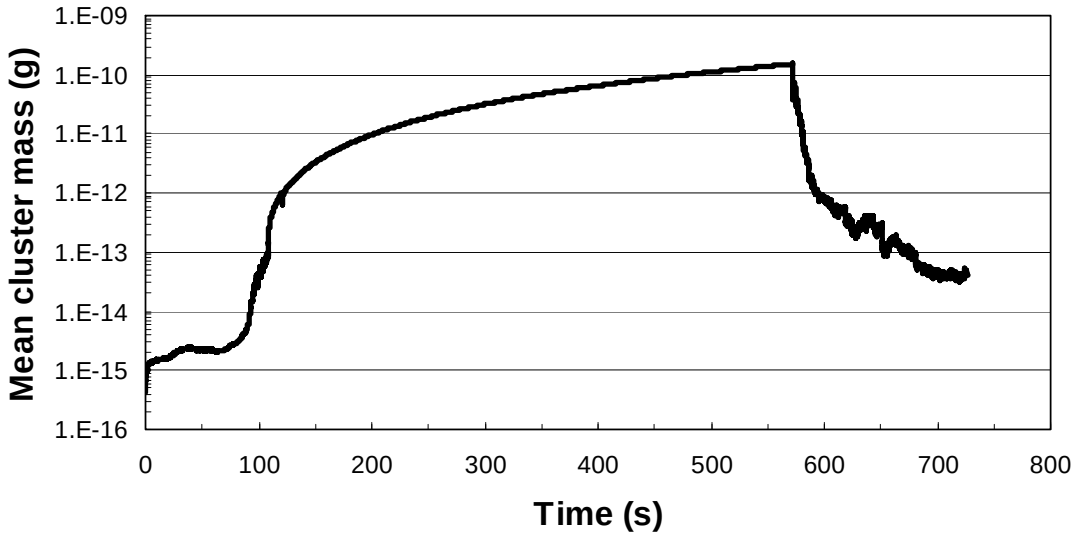


Figure 5.28 : Évolution temporelle de la masse moyenne d'un amas M_{amas} dans la poche.

Malgré une rapide consommation de l'oxygène dissous et la prise en compte d'une vitesse turbulente à l'interface acier liquide / laitier, l'extraction de l'oxygène total est lente (Figures 5.29, 5.30 et 5.31). Moins d'une centaine de ppm d'alumine sont extraites du bain en 10 minutes de traitement (Figure 5.29). De plus, la vitesse de désoxydation n'est pas constante (Figure 5.31).

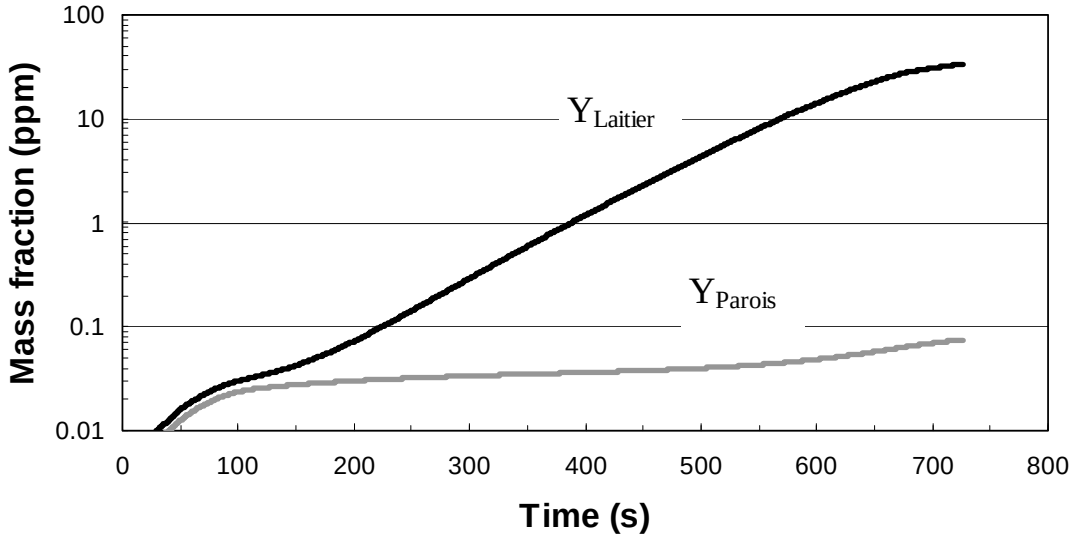


Figure 5.29 : Évolution temporelle des fractions d'alumine capturée par le laitier et les parois.

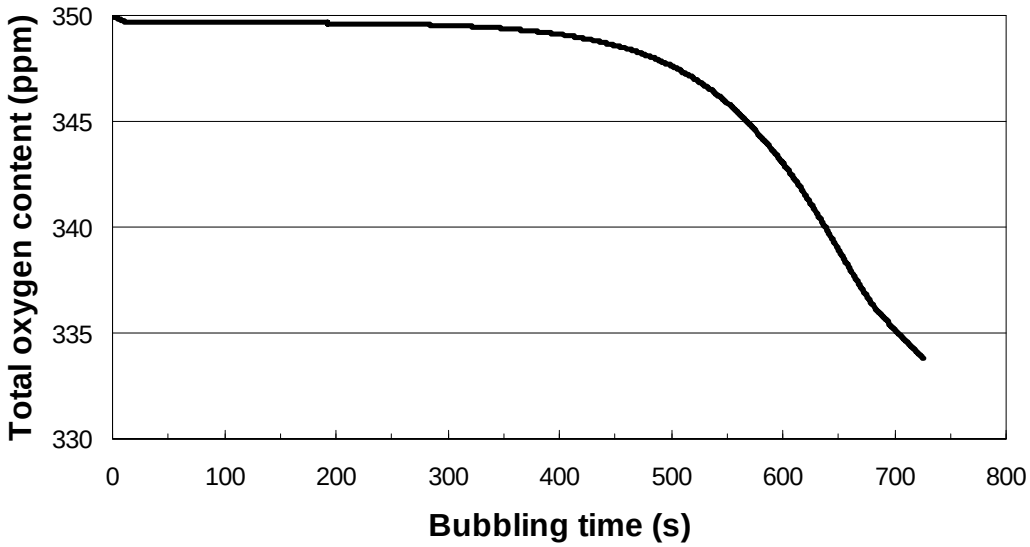


Figure 5.30 : Évolution temporelle de la fraction massique totale d'oxygène.

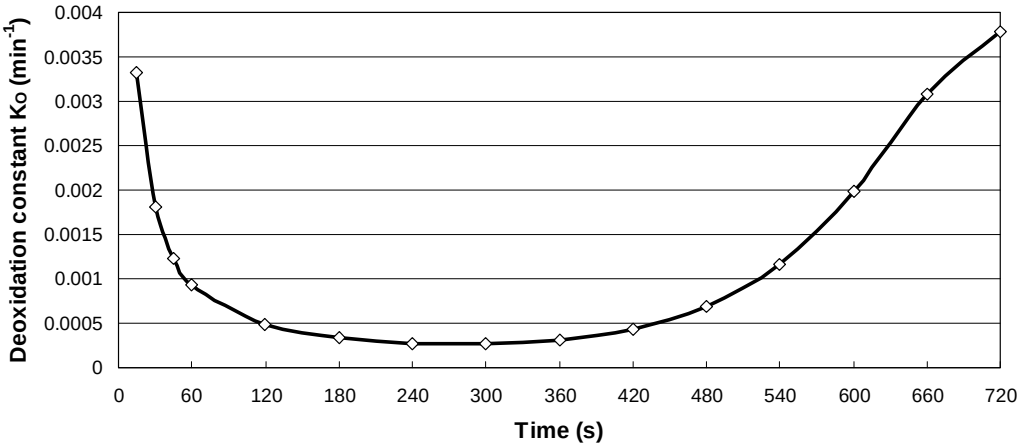


Figure 5.31 : Évolution temporelle de la « constante » de désoxydation K_O.

Notre simulation après 12 minutes de traitement, nous donne une valeur de K_O comparable à celle obtenue dans les tests préliminaires pour des particules de taille constante de 20 μm avec prise en compte de la vitesse turbulente (Figure 5.32). Ce résultat est conforté par la valeur de la taille moyenne des amas (Figure 5.27) et par la distribution en taille des amas (Figure 5.33). Cependant, notre valeur de K_O est inférieure d'un ordre de grandeur à celle estimée par Graham *et al*. Pour nos conditions de brassage, les amas produits sont trop petits en taille, ce qui a pour conséquence de ralentir le temps d'extraction des inclusions du bain. La prise en compte d'une dimension fractale différente de $D_f = 3.0$ permettrait peut être d'augmenter d'une façon significative le diamètre des amas et d'accélérer leurs extractions.

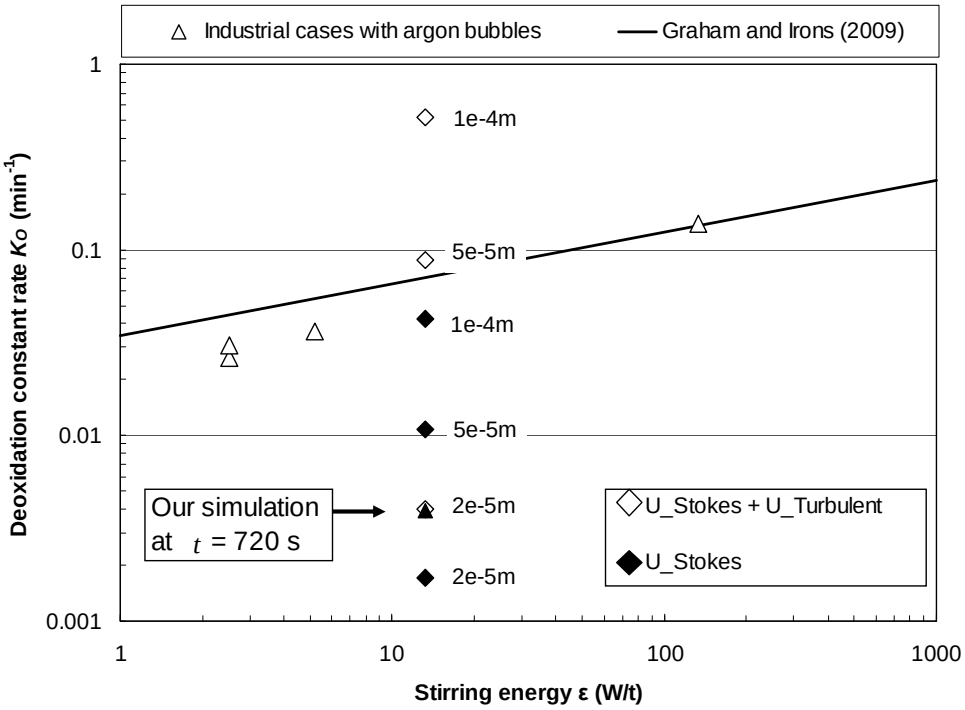


Figure 5.32 : Temps de désoxydation de notre simulation au bout de 12 minutes comparé aux cas industriels et aux tests préliminaires.

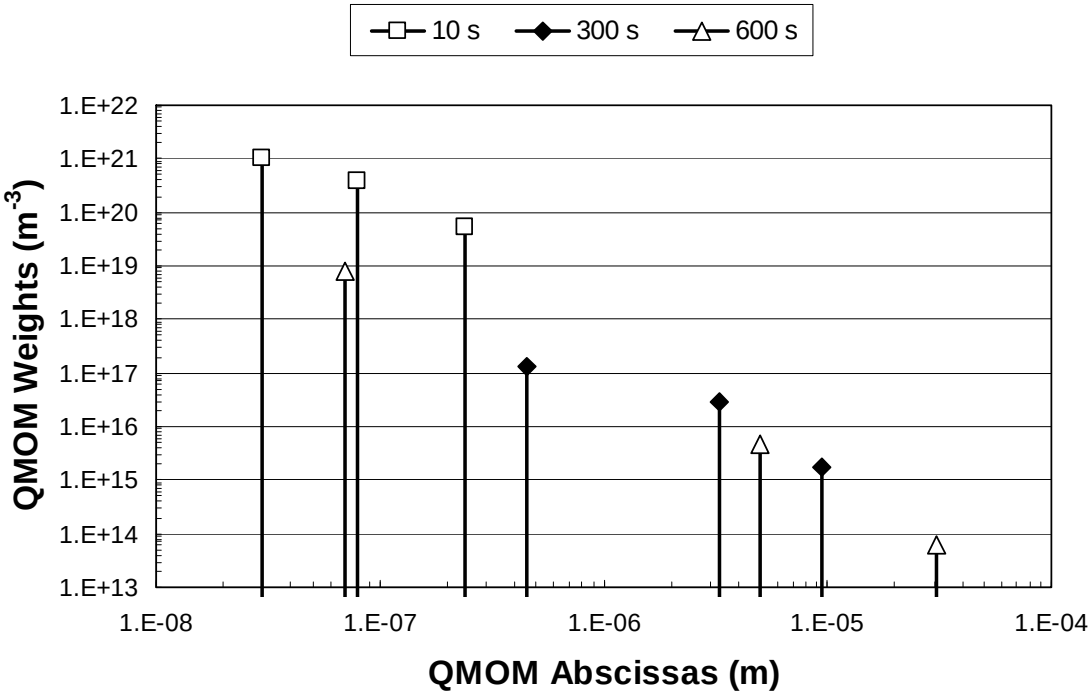


Figure 5.33 : Distribution en taille de la population d'alumine à trois instants différents.

La figure 5.33 montre l'élargissement de la distribution en taille des amas au cours du temps. Durant les premiers instants, les petites particules précipitent en grand nombre et se remettent en solution (t = 10 s). Une fois que la précipitation et la remise en solution s'atténuent, l'agrégation joue un rôle majeur en produisant des amas micrométriques (t = 300 s). Dès que les agrégats atteignent une dizaine de micromètres, l'extraction des amas est accélérée (t = 600 s). Ce phénomène d'extraction est rendu visible par la diminution du diamètre moyen de Sauter des amas $d_{32,c,g}$ (Figure 5.27) et par le décalage progressif du premier nœud vers les petites tailles (~100 nm) et la diminution des deux autres nœuds placé aux grandes tailles (> 1μm).

5.2.5 Conclusions

L'extraction par le laitier est pilotée par le transport des particules vers les conditions limites du système et par la taille moyenne des amas à travers l'extraction par séparation gravitaire (Figure 5.33). Tant que le $d_{32,c,g}$ est supérieur au micromètre, l'extraction est accélérée sinon elle est ralentie (Figure 5.30).

Pour conclure, notre outil numérique ne produit pas de particules de taille suffisamment importantes (50 μm) pour que se déroule l'extraction observée par Graham *et al.* [6]. Ce problème est en accord avec les résultats obtenus pour la simulation de Wakoh *et al.* [12]. Ici notons que, la capture des inclusions par les bulles peut représenter un paramètre d'ajustement important. Nous pouvons par ailleurs nous référer aux travaux d'Aoki *et al.* [1] qui ont réalisé une simulation numérique en prenant seulement en compte la capture d'une population d'inclusions de taille unique (100 μm) par les bulles. Leurs résultats montrent une constante de désoxydation stable mais trop élevée par rapport à l'éq. 5.5 (Figure 5.34).

Malgré cette faiblesse, notre outil numérique suit d'une manière très satisfaisante la taille des inclusions (Figure 5.33), celles des fractions massiques des différents éléments et du précipité (Figure 5.26) avec seulement une erreur de 0.001% sur la fraction massique en oxygène totale.

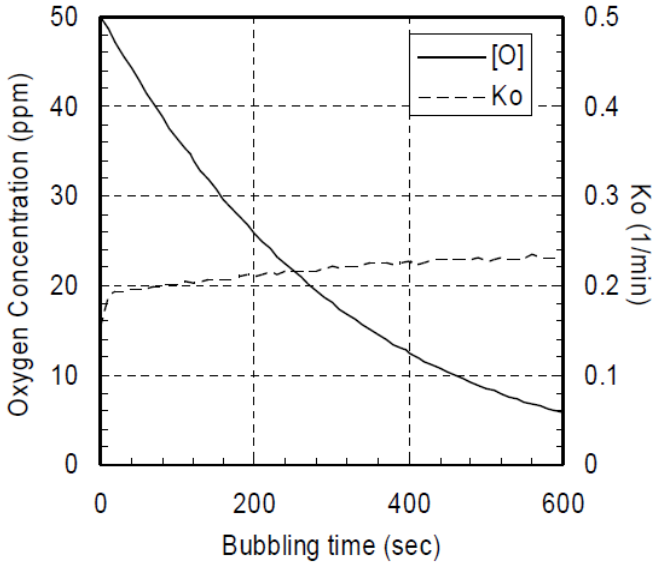


Figure 5.34 : Résultats d'une simulation numérique tridimensionnelle d'une désoxydation de 50 ppm d'oxygène total en prenant uniquement en compte la capture par les bulles [1]. L'énergie de brassage est d'environ 10 W/t pour une constante de désoxydation de K_O = 0.2 min^{-1}.

Remarque 5.5 :
Si la production de gros amas est souhaitée au début du procédé industriel pour accélérer l'extraction de l'oxygène piégé dans les oxydes, cela n'est plus souhaité à la fin du process. En effet, si les grosses inclusions ne sont pas retirées de la poche, elles produiront des défauts plus tard. Zhang *et al.* [17] recommandent de brasser vigoureusement au début afin d'éliminer le maximum d'inclusions et de diminuer l'énergie de brassage vers la fin pour produire de plus petites inclusions qui seront moins nocives si elles restent présentes dans le métal liquide et sont piégées lors de la solidification.

5.3 Production simultanée d'alumine et de rutile

Dans cette configuration, l'aluminium et le titane sont introduits en même temps et de la même manière que celle décrite au §5.2.2. Ils sont ajoutés pour réagir avec les 350 ppm d'oxygène dissous. Les simulations numériques réalisées ont fait l'objet d'une publication dans *l'AIChE Journal* (Annexe 4) et dans la revue métallurgique *Steel Research International* (Annexe 5).

Les deux publications présentent l'utilisation du modèle Multi-QMOM dans un cas de multi-précipitation de deux oxydes que sont l'alumine (Al_2O_3) et le rutile (TiO_2). Les simulations diffèrent de la simulation précédente de désoxydation §5.2 car les modules de croissance et d'extraction n'ont pas été activés car ces modules n'avaient pas encore été testés. Cela rend alors impossible la croissance en surface, la maturation d'Oswald, la remise en solution d'un précipité en faveur d'un autre et l'extraction des inclusions du bain.

De plus, le noyau d'agrégation turbulent utilisé dans l'*AIChE Journal* est différent de celui utilisé dans la revue *Steel Research International*. Avant d'avoir mis en place l'expression développée par Zaichik *et al.* [15] (*SRI*), l'expression classique de Saffman-Turner [10] (*AIChE*) a été utilisée. Le nouveau noyau prend mieux en compte les collisions binaires de particules en régime inertiel et entre particules de taille très différente. En effet, le noyau de collision turbulent de Saffman-Turner n'est utilisable que pour des collisions binaires dont le rayon de collision $R_{c,ij}$ est inférieur à l'échelle de Kolmogorov η alors que le noyau de Zaichik-Simonin peut s'appliquer à une gamme plus étendue. L'impact de ce changement de noyau n'apparait pas clairement sur la taille moyenne des amas (Figure 5.35). En effet, la valeur moyenne de l'échelle de Kolmogorov dans la poche est environ $\eta = 87.2\mu m$ alors que la taille des amas est inférieure à cette valeur. Mais il joue un rôle plus important sur la distribution en taille des inclusions dans la poche en produisant des amas plus gros (Figure 5.36).

Les résultats des ces simulations ayant été présentés dans les articles, le lecteur pourra s'y référer. Ces simulations ont cependant été nécessaires pour calibrer et vérifier le comportement de l'outil numérique en présence de plusieurs types de précipités.

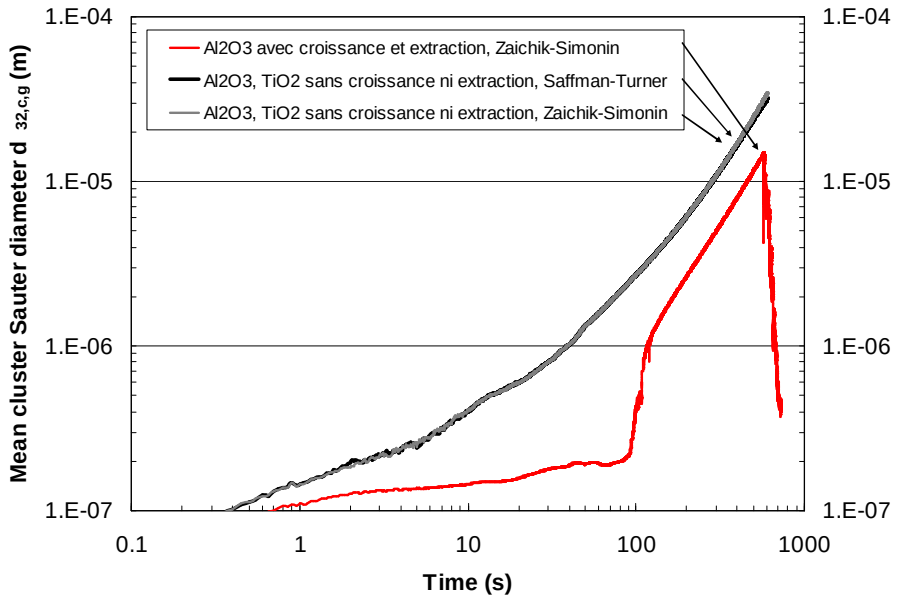


Figure 5.35 : Comparaison des diamètres moyens de l'amas entre trois simulations numériques. Les modules de croissance et d'extraction sont activés pour la courbe inférieure alors qu'ils ne le sont pas pour les deux courbes supérieures. La différence entre les deux courbes supérieures vient de l'utilisation du noyau d'agrégation de Saffman-Turner [10] pour la courbe noire et de l'expression de Zaichik & Simonin [15] pour la courbe grise.

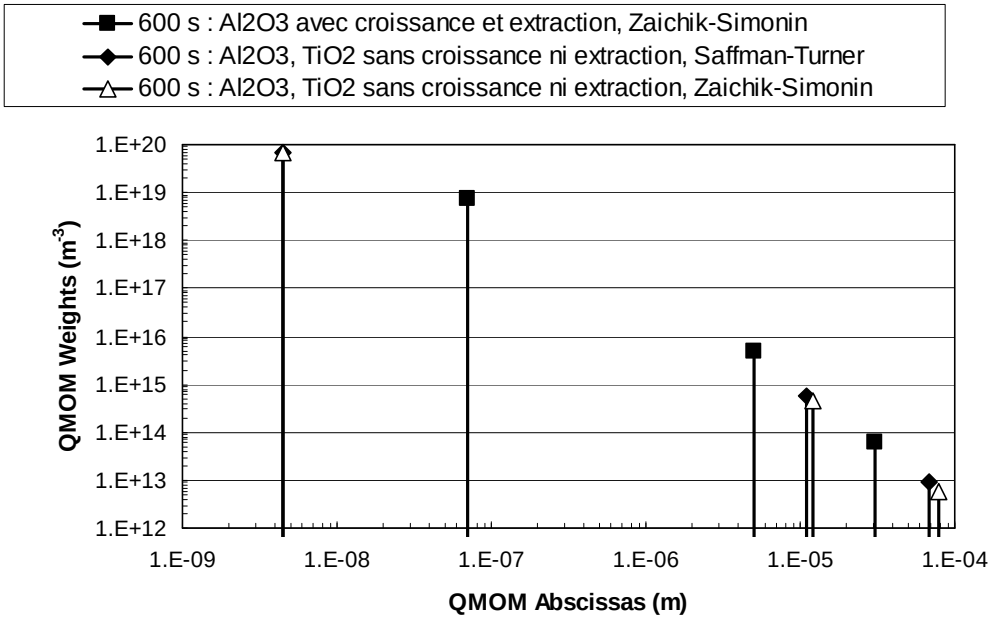


Figure 5.36 : Comparaison des distributions en taille des amas à 600 s pour le cas de désoxydation traité en §5.2 et pour les cas de désoxydation-mise à nuance avec les deux formulations du noyau d'agrégation turbulent.

5.4 Production d'aluminate de titane

La production d'aluminate de titane Al_2TiO_5 (Figure 5.37) dans la poche sidérurgique a fait l'objet d'une étude particulière dans le projet « Zero-Clogging » [2]. Le projet avait pour objectif de prédire leur présence suivant les conditions d'injection de l'aluminium et du titane.

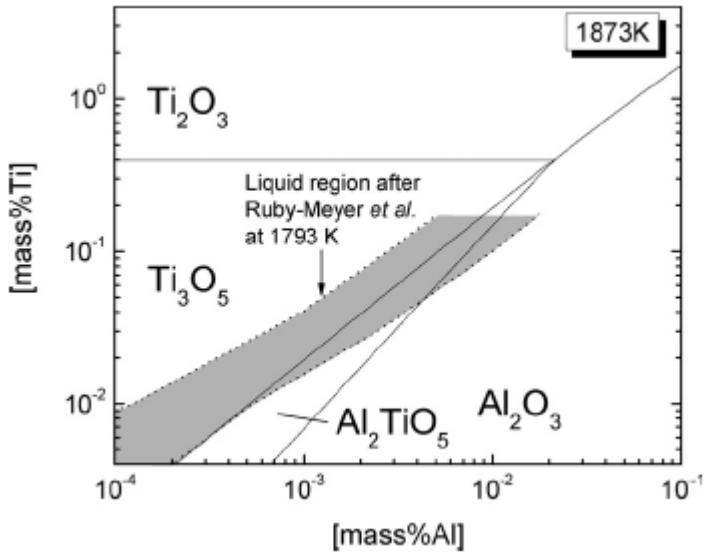


Figure 5.37 : Diagramme d'équilibre des phases d'oxydes calculé à 1600℃ entre le fer, l'aluminium et le titane [8].

Les industriels ont observé que les aluminates de titane étaient produites en quantité importante lorsque l'injection de titane était proche de celle de l'aluminium (Figure 5.38) et qu'au contraire si les deux injections étaient suffisamment éloignées l'une de l'autre, l'aluminium avait le temps de précipiter avec l'oxygène avec une faible production d'aluminates de titane (Figure 5.39). Pour vérifier et donner une opinion scientifique à cette observation, deux simulations numériques avec des temps d'injections différents entre l'aluminium et le titane ont été réalisées avec le précédent couplage Fluent®/CEQCSI sur le maillage 3D d'une poche RH dont les résultats sont présentés en Figures 5.38 et 5.39.

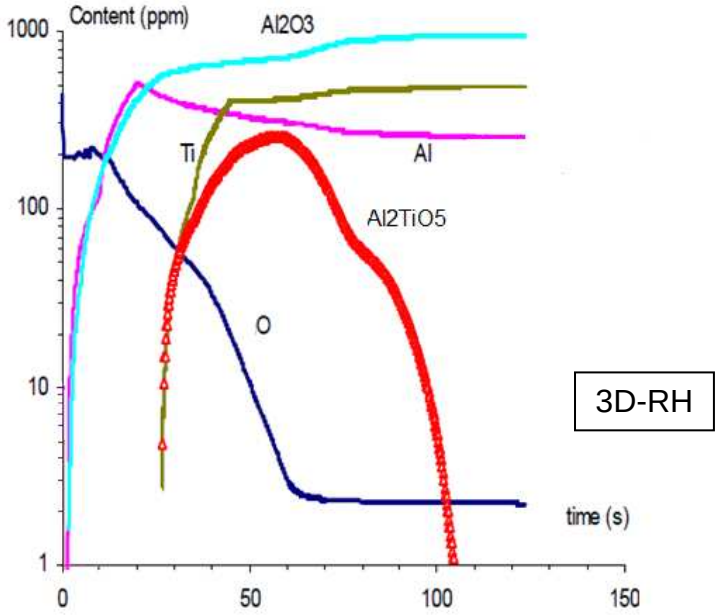


Figure 5.38 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments et des précipités obtenus avec une simulation **3D** avec le couplage Fluent®/CEQCSI. Le titane est injecté 25 secondes après l'aluminium. Y_O = 350 ppm $Y_{Al_injecté}$ = 700 ppm et $Y_{Ti_injecté}$ = 500 ppm [2]. Les AlTi ou AlTiOx représentent les aluminates de titane Al_2TiO_5.

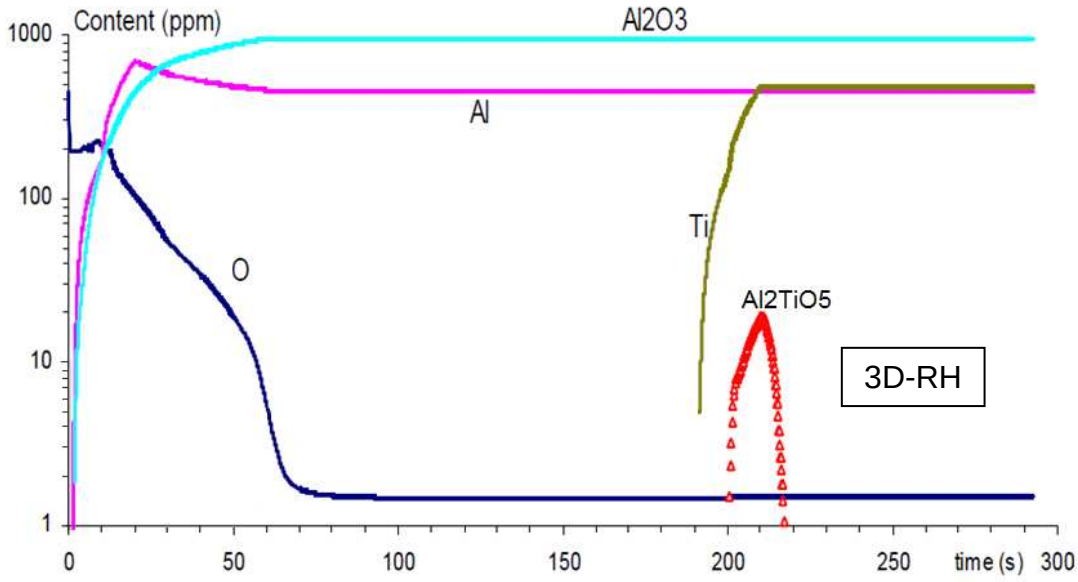


Figure 5.39 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments et des précipités obtenus avec une simulation **3D** avec le couplage Fluent®/CEQCSI. Le titane est injecté 190 secondes après l'aluminium. Y_O = 450 ppm $Y_{Al_injecté}$ = 900 ppm et $Y_{Ti_injecté}$ = 450 ppm [2]. Les AlTi et AlTiOx représentent les aluminates de titane Al_2TiO_5.

Les résultats de ces simulations (Figures 5.38 et 5.39) prédisent l'apparition en grande quantité des inclusions d'aluminate de titane lorsque les deux injections sont rapprochées. Cependant le calcul prévoit leurs totales disparitions dans le premier cas (Figure 5.38). Ceci est contraire à l'observation industrielle puisque des phénomènes de bouchage sont observés lors de la coulée continue pour cette configuration indiquant que les aluminates de titane sont toujours présents en fin de mise à nuance. Ce résultat est un artefact numérique provenant du logiciel thermodynamique CEQCSI qui travaille uniquement à l'état d'équilibre chimique. En conséquence, la cinétique de précipitation et de remise en solution n'est pas prise en compte. Les inclusions nocives sont alors remises rapidement en solution lorsque les conditions sont favorables et sans vérifier qu'il a le temps de se dérouler.

Pour résoudre ce problème de cinétique de précipitation et de remise en solution, nous nous proposons de réaliser deux simulations en utilisant cette fois-ci notre outil numérique. Deux configurations ont été choisies pour vérifier l'impact de l'intervalle de temps des injections sur la précipitation des aluminates de titane. Les injections de titane sont faites respectivement à 15 secondes et à 180 secondes après celle de l'aluminium. Les fractions massiques des éléments présents et injectés sont identiques pour les deux simulations (Tableau 5.7) et le maillage a été détaillé dans le §5.2.2. Pour révéler l'impact d'une géométrie axisymétrique sur une géométrie tridimensionnelle, la première simulation a aussi été réalisée sur un maillage 3D comportant 90 000 cellules. Les autres données physiques et chimiques sont présentés dans les tableaux 5.8 et 5.9.

Y_O	350 ppm
$Y_{Al_injectée}$	700 ppm
$Y_{TI\text{-}injectée}$	400 ppm

Tableau 5.7 : Fractions massiques des principaux éléments des simulations industrielles.

	Acier	O	Al	Ti
ρ (kg/m^3)	7 000		2 700	4 500
μ (kg/m/s)	$6{,}2\cdot10^{-3}$			
D (m^2/s)		$12{,}58\cdot10^{-9}$	$3{,}02\cdot10^{-9}$	$8{,}3\cdot10^{-9}$

Tableau 5.8 : Propriétés physiques de l'acier liquide.

	Al_2O_3	TiO_2	Al_2TiO_5
ρ (kg/m^3)	3 990	4 250	3 700
ΔG_0 (J)	-1 199 869 + 393,212 T	-645 874 + 224,346 T	-1 976 384 + 663,581 T
V_m (m^3/mol)	$2{,}5554\cdot10^{-5}$	$1{,}8799\cdot10^{-5}$	$4{,}9151\cdot10^{-5}$
σ (J/m^2)	0.1	0.1	0.1

Tableau 5.9 : Propriétés physiques et chimiques des oxydes.

5.4.1 1er cas industriel : 15 s séparant l'injection entre Al et Ti

Pour cette configuration, deux simulations ont été réalisées sur deux maillages différents : 2D de révolution axiale et tridimensionnelle. Nous avons uniquement étudié la production d'alumine, de rutile et des aluminates de titane. De précédentes simulations nous avaient montré une faible production du Ti_2O_3 que nous avons décidé d'ignorer.

Les aluminates de titane sont bien présents dès l'introduction du titane et se maintiennent tout au long des deux simulations. Quelques différences apparaissent entre les géométries. La simulation 2D prédit une consommation rapide de l'oxygène dissous dans le bain en une cinquantaine de secondes (Figure 5.40) alors qu'une centaine de secondes sont requises pour le 3D (Figure 5.41). Cela a pour conséquence de diminuer les quantités d'aluminate de titane produites avec un pic à 30 ppm pour le 2D et 70 ppm pour le 3D et la durée de leurs présences dans la composition moyenne d'un amas (Figures 5.42 et 5.43). Cependant dans les deux cas, le rutile disparait complètement de la composition dès que l'oxygène dissous a atteint l'équilibre.

Le diamètre de Sauter moyen des amas dans la poche et leurs masses moyennes sont du même ordre de grandeur pour les deux types de géométrie (Figures 5.44 et 5.45). Ceci valide l'utilisation d'une géométrie bidimensionnelle pour une étude quantitative sur le diamètre moyen et la masse moyenne d'un amas.

Les différences de résultats entre 2D de révolution axiale et 3D viennent de la différence du volume de travail. En 2D de révolution axiale, nous avons un volume en forme de couronne alors qu'en 3D nous avons hexaèdre. En conséquence, nous diffusons plus rapidement l'aluminium et le titane en 2D qu'en 3D. La question de l'utilisation d'une géométrie 2D afin de représenter une géométrie tridimensionnelle est questionnable. En effet, les temps de calculs sont différents. Il faut 3 jours pour une simulation 2D de révolution axiale alors qu'il faut 3 mois pour la même simulation tridimensionnelle. Si les constantes de temps diffèrent entre les deux géométries, de nombreux résultats restent identiques (*i.e.* maintien des aluminates de titane en fin de process, diamètres de Sauter moyen des amas et masse moyenne d'un amas). Ainsi, si nous voulons un résultat qualitatif la simulation 2D est suffisante alors que pour un résultat quantitatif la simulation 3D est nécessaire.

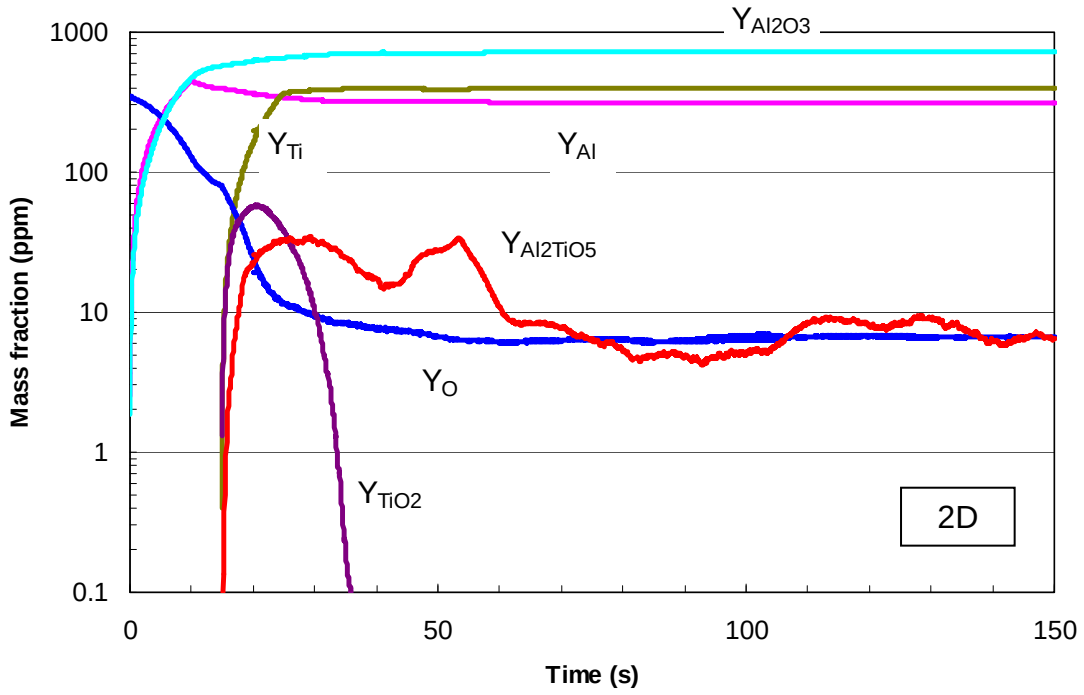


Figure 5.40 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments et des précipités obtenue pour une simulation **2D** avec le nouveau couplage Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM. Le titane est injecté 15 secondes après l'aluminium.

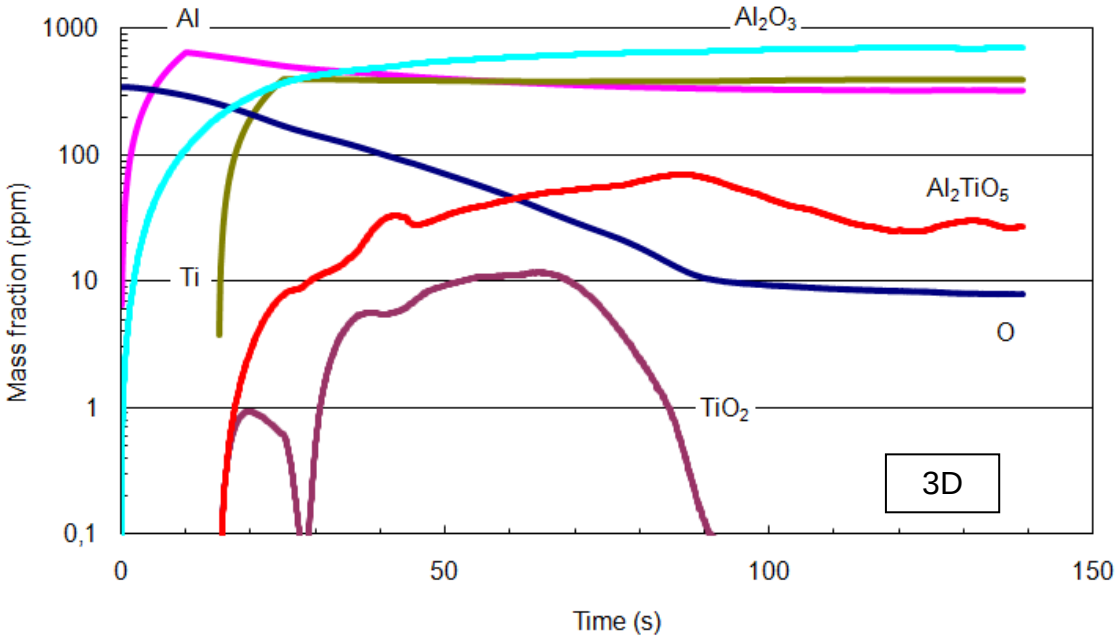


Figure 5.41 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments et des précipités obtenue pour une simulation **3D** avec le nouveau couplage Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM. Le titane est injecté 15 secondes après l'aluminium.

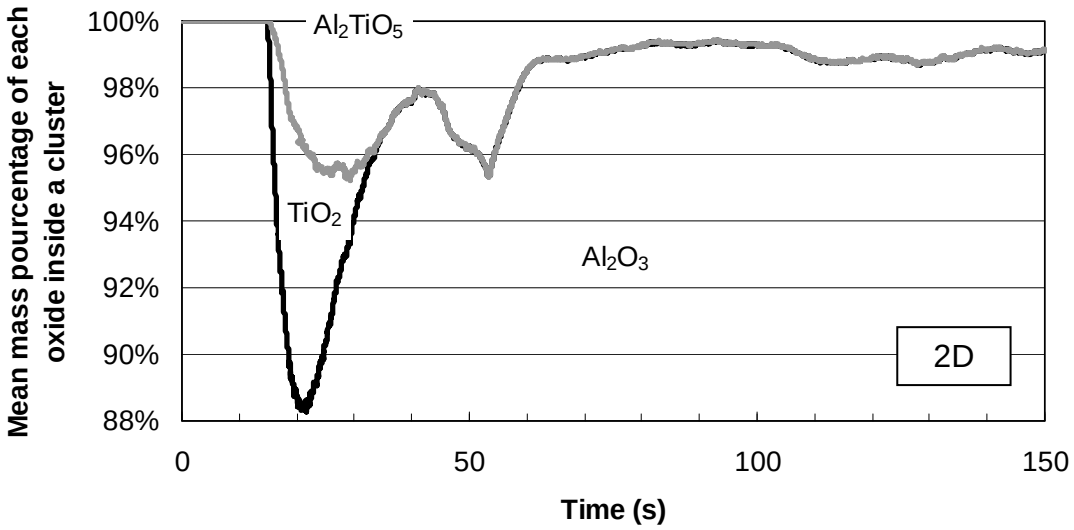


Figure 5.42 : Évolution temporelle de la composition massique d'un amas lorsque l'injection du titane est réalisée 15 secondes après celle de l'aluminium avec un maillage **2D**. Les trois zones distinctes représentent les trois types d'oxydes étudiés. La masse de chaque oxyde présent dans un amas évolue au cours du temps. Ainsi, l'alumine constitue la majorité de la masse d'un amas soit plus de 88%.

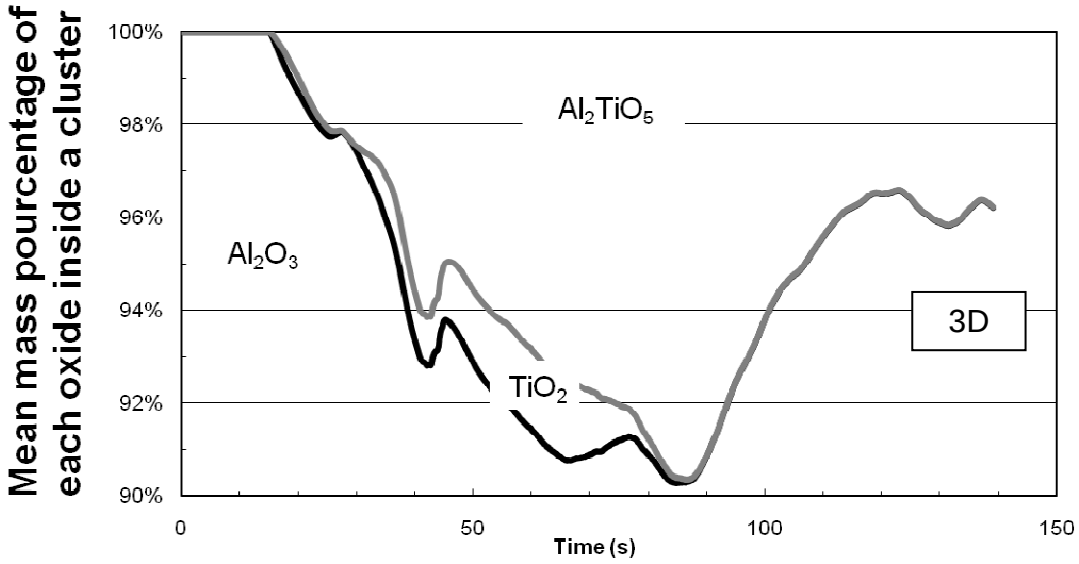


Figure 5.43 : Évolution temporelle de la composition massique d'un amas lorsque l'injection du titane est réalisée 15 secondes après celle de l'aluminium avec un maillage **3D**.

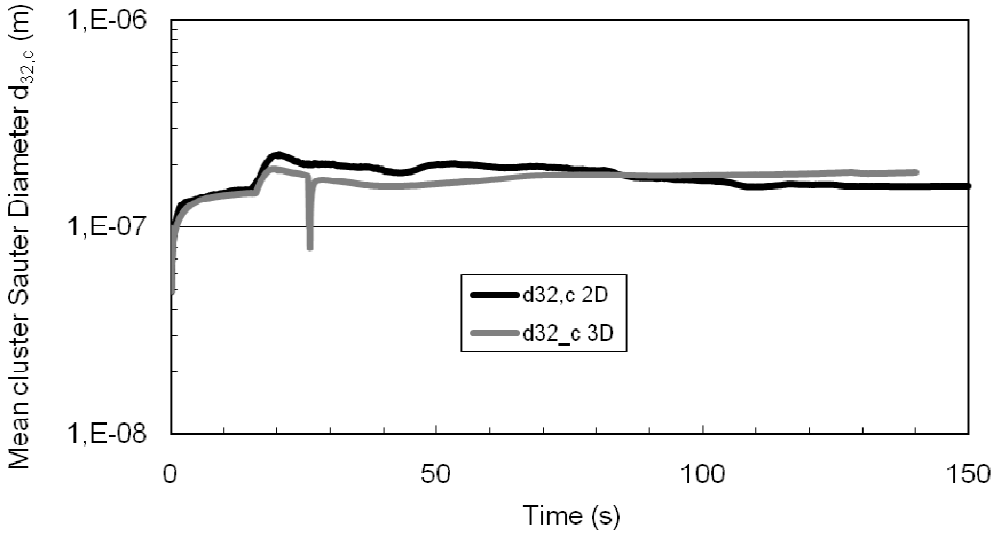


Figure 5.44 : Évolution temporelle du diamètre moyen de Sauter de l'amas lorsque l'injection du titane est réalisée 15 secondes après celle de l'aluminium pour les maillages **2D** et **3D**.

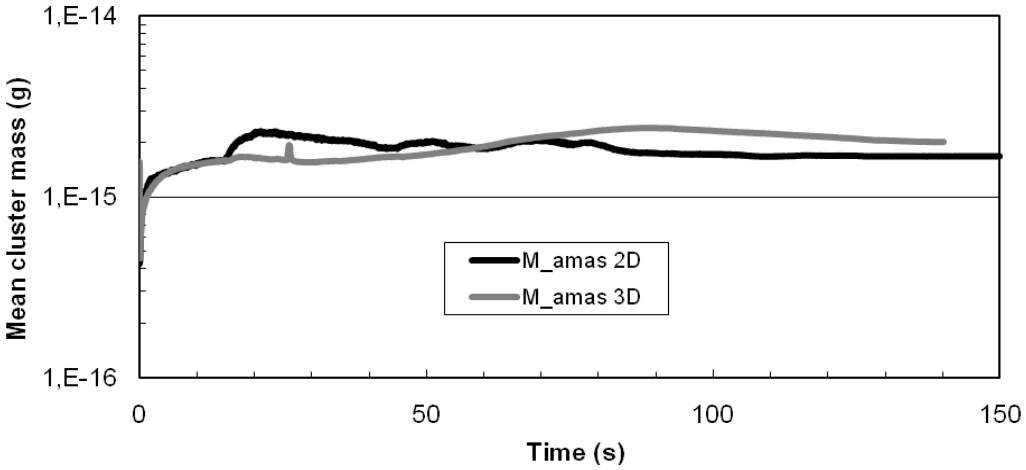


Figure 5.45 : Évolution temporelle la masse moyenne d'un l'amas lorsque l'injection du titane est réalisée 15 secondes après celle de l'aluminium pour les maillages **2D** et **3D**.

5.4.2 2nd cas industriel : 180 s séparant l'injection entre Al et Ti

Pour cette simulation, le titane est injecté 180 secondes après celle de l'aluminium. Ce temps doit être suffisant pour que l'oxygène dissous précipite en alumine sans former d'oxydes contenant du titane.

Les résultats 2D de révolution axiale montrent que d'une part l'oxygène dissous est toujours consommé en une cinquantaine de secondes comme dans le cas précédent et d'autre part que le rutile et l'aluminate de titane se forment avec des quantités négligeables (Figures 5.46 et 5.47). Ce résultat conforte encore les observations des industriels.

L'évolution du diamètre moyen de Sauter pour la poche (Figure 5.48) nous indique que la maturation d'Oswald se poursuit tout au long de la simulation et que l'agrégation binaire n'est pas suffisante pour contrebalancer ce phénomène. Il y a un petit décrochement à 180 secondes et ensuite le diamètre moyen se stabilise. Nous avons observé le même phénomène dans les simulations du §5.4.1 Ceci est troublant, car nous avions plutôt envisagé un phénomène de maturation d'Oswald limité aux premiers instants comme vu durant la simulation de désoxydation de poche (Figure 5.27). Ici, il continue durant toute la durée de la simulation. La tension de surface utilisée est surement en cause car elle favorise la précipitation au détriment de la croissance en surface.

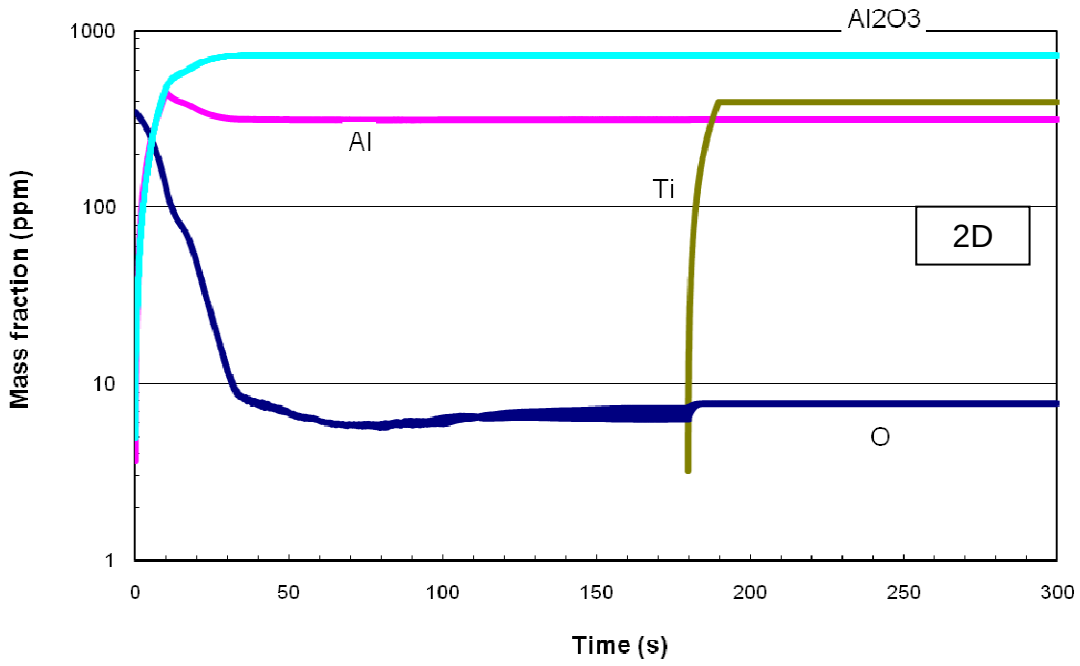


Figure 5.46 : Évolution temporelle de la fraction massique des éléments et des précipités obtenue pour une simulation **2D** avec le nouveau couplage Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM. Le titane est injecté 180 secondes après l'aluminium.

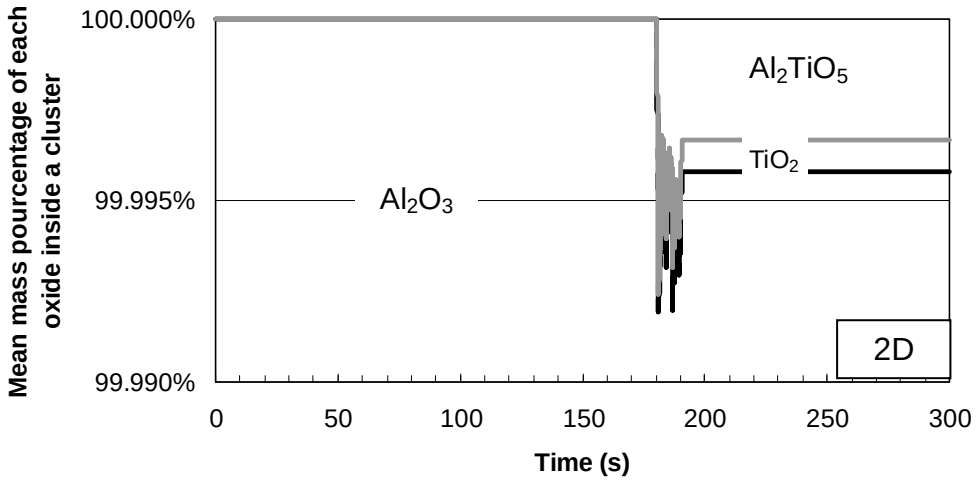


Figure 5.47 : Évolution temporelle de la composition massique dans un amas lorsque l'injection du titane est réalisée 180 secondes après celle de l'aluminium pour le maillage **2D**. Les quantités du rutile et de l'aluminate de titane sont ici négligeables devant celle de l'alumine.

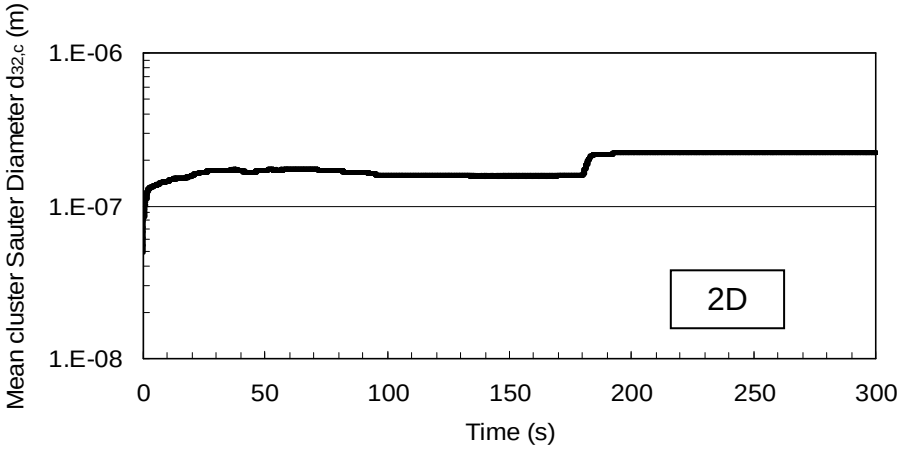


Figure 5.48 : Évolution temporelle du diamètre moyen de Sauter de l'amas lorsque l'injection du titane est réalisée 180 secondes après celle de l'aluminium pour le maillage **2D**.

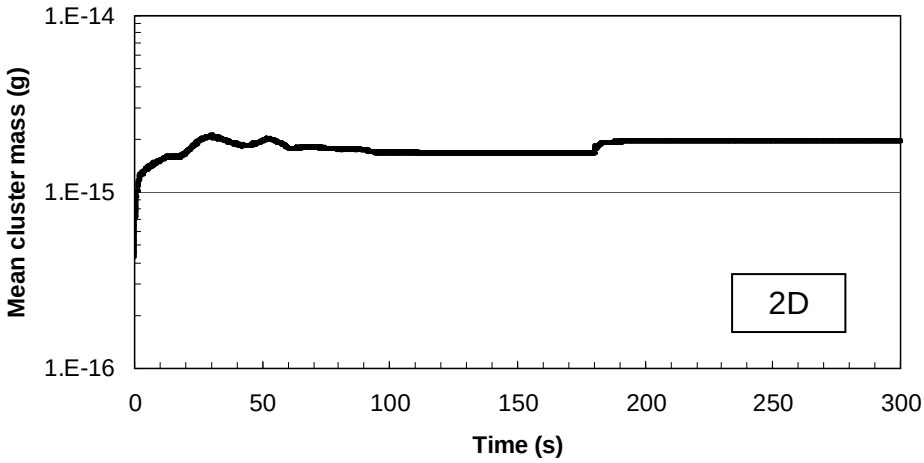


Figure 5.49 : Évolution temporelle la masse moyenne d'un l'amas lorsque l'injection du titane est réalisée 180 secondes après celle de l'aluminium pour le maillage **2D**.

5.4.3 Conclusions des simulations industrielles

Les résultats des simulations montrent que dans le cas où l'injection de titane se déroule 15 secondes après celle de l'aluminium, les oxydes d'aluminates de titane précipitent et restent dans le bain (Figures 5.40 et 5.41). Ce détail n'avait pu être constaté avec le précédent couplage basé sur l'hypothèse d'équilibre chimique local. Alors que pour la seconde simulation où le titane est injecté 180 secondes après l'aluminium, il n'y a que des traces d'aluminates de titane (Figure 5.46). Ces résultats confirment ce qui est observé industriellement.

Les résultats des cas 2D et 3D pour la première simulation sont légèrement différents. En effet, le temps de précipitation de l'oxygène dissous est de 50 secondes pour le 2D et de 100 secondes pour le 3D. En effet, lorsqu'une cellule en 2D axisymétrique est traitée par le logiciel thermodynamique, il calcule en réalité la composition chimique d'un anneau alors qu'il s'agit d'un hexaèdre en 3D. Il faut en conséquence plus de temps en 3D pour que les éléments désoxydants et de mise à nuance s'homogénéisent dans la poche.

Le maillage 2D de révolution axiale à cependant l'avantage d'avoir un faible nombre de cellules (1000) nécessitant peu de temps de calcul (3 jours environs pour 600 s de simulation). Alors que la simulation 3D sur un maillage de géométrie cylindrique comporte 90 000 cellules. Dans ce cas, 1 jour de calcul correspond seulement à 2 secondes de simulation. A noter que les simulations sont toutes effectuées sur 2 ordinateurs ayant 2 processeurs Intel-XEON possédant 4 cœurs chacun.

Le temps d'exécution d'une simulation numérique est aussi un critère d'utilisation d'un outil à des fins industrielles. Comme les simulations passent plus de 80% de leurs temps de calcul pour résoudre la thermodynamique de nombreuses améliorations ont été apportées notamment en parallélisant MIPPHASOLACIDO. Ensuite, l'utilisation d'une puissance de calcul supérieure devrait permettre de rendre cet outil encore plus attractif.

5.5 Conclusions

L'outil numérique Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM a été utilisé dans sa globalité. Il a montré quelques difficultés pour reproduire l'expérience de Wakoh *et al.* et celle de désoxydation de la poche par précipitation d'alumine. Mais il permet de suivre les distributions en taille de plusieurs oxydes et celle des amas. En couplant ces informations à celles des fractions massiques, nous avons pu alors en déduire la composition et la masse moyenne d'un amas.

Certains paramètres ont pu être testés comme la dimension fractale, la tension de surface ou le noyau d'agrégation turbulent. Nous avons observé que la dimension fractale dans un écoulement sans agitation avait un faible impact sur les petites inclusions ($d_{32,c} < 0.1\mu m$) et qu'une faible valeur de la tension de surface facilitait la précipitation au détriment de la croissance en surface. Ensuite, l'utilisation du noyau d'agrégation turbulent développé par Zaichik & Simonin produit des agrégats plus gros et enfin, durant les différentes simulations, nous avons observé le phénomène de maturation d'Oswald favorisant la création de précipités plus gros au détriment des plus petits qui se remettent en solution. Ce phénomène de maturation d'Oswald mérite d'être étudié d'une manière plus approfondie car c'est un des facteurs limitant la croissance des amas.

L'un des objectifs industriels majeurs de la thèse a été traité dans le dernier paragraphe de ce chapitre. Alors que l'ancien couplage Fluent®/CEQCSI ne permettaient pas d'observer les aluminates de titane en fin de simulation, l'ajout du modèle cinétique couplé au suivi en taille des précipités permet dorénavant d'observer leur maintien dans le bain d'acier liquide. Ce résultat attendu était rendu difficile par l'instabilité thermodynamique de ces inclusions qui ont tendance à se remettre en solution.

Bibliographie

[1]: Aoki J., Zhang L., Thomas B.G., (2005), “Modeling of inclusion removal in ladle refining”, Internal report of Illinois University at Urbana-Champaign.

[2]: Burty M., Peeters L., (2007), “Zero clogging”, *Rapport interne Arcelor*, IRD/OI/2007/5484.

[3]: Fluent 6.3 user guide, (2006), Fluent Inc., Lebanon, NH, USA.

[4]: Gardin P., Domgin J.F., Simonnet M., Lehmann J., (2008), “Modeling of inclusion evolution in a steel ladle”, *La revue de Métallurgie - CIT*, pp. 84-91.

[5]: Gosh A., (2001), *Secondary Steelmaking: Principles and Applications*, CRC Press.

[6]: Graham K.J., Irons G.A., (2009), “The behavior of non-metallic inclusions during ladle refining”, *Proceedings of AISTech Conference, St. Louis, Mo., USA, 4-7 May*.

[7]: Kwon Y.J, Zhang J., Lee H.G., (2008), “A CFD-based nucleation-growth-removal model for inclusion behavior in a gas-agitated ladle during molten steel deoxidation”, *ISIJ International*, **48**(7), pp. 891-900.

[8]: Matsuura H., Wang C., Wen G., Sridhar S., (2007), “The transient stages of inclusions evolution during Al and/or Ti additions to molten iron”, *ISIJ International*, **47**(9), pp. 1265-1274.

[9]: Miki Y., Thomas B.G., (1999), “Modeling of inclusion removal in a tundish”, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, pp. 639-654.

[10]: Saffman P.G., Turner J.S., (1956), “On the collision of drops in turbulent clouds”, *Journal of Fluids Mechanics*, **1**, pp. 16-30.

[11]: *Slag Atlas*, (1995), 2nd Edition Verlag Stahleisen GmbH, D-Düsseldorf.

[12]: Wakoh M., Sano N., (2007), “Behavior of alumina inclusions just after deoxidation”, *ISIJ International*, **47**, pp. 627-632.

[13]: Wasai K., Mukai K., (1999), “Thermodynamics of nucleation and supersaturation for the aluminum-deoxidation reaction in liquid iron”, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, pp. 1065-1074.

[14]: Wasai K., Mukai K., (2002), “Thermodynamics analysis on metastable alumina formation in aluminum deoxideized iron based on Ostwald’s step rule and classical homogeneous nucleation theories”, *ISIJ International*, **42**(5), pp. 467-473.

[15]: Zaichik L.I., Simonin O., Alipchenkov V.M., (2003), “Two statistical models for predicting collision rates of inertial particles in homogeneous isotropic turbulence”, *Physic of Fluids*, **15**, pp. 2995-3005.

[16]: Zhang L., Thomas B.G., (2002), “Alumina inclusion behavior during steel deoxidation”, *7th European Electric Steelmaking Conference, Venice, Italy,* May 26-29*,* pp. 2.77-2.86.

[17]: Zhang L., Thomas B.G., (2003), “State of the art in evaluation and control of steel cleanliness”, *ISIJ International*, **43**, pp. 271-291.

[18]: Zhang L., Thomas B.G., (2006), “Numerical simulation on inclusion transport in continuous casting mold”, *Journal of University of Science and Technology Beijing*, **13**(4), pp. 293-300.

Conclusions générales et perspectives

Les principaux mécanismes physiques se déroulant dans une poche d'acier liquide et les modèles correspondant ont été exposés dans la première partie de ce mémoire (chapitre 1 à 3). Cette description portait sur le brassage d'une poche sidérurgique où des réactions chimiques ont lieu dans un écoulement turbulent favorisant l'agrégation des particules élémentaires. Le chapitre 4 a ensuite poursuivi sur la présentation d'une nouvelle méthode de résolution du bilan de population basé sur le diamètre. La méthode Multi-QMOM est innovante par la manière dont les méthodes QMOM sont liées les unes aux autres afin de suivre et de reconstruire la taille et la composition d'une population multiple d'oxydes.

La seconde partie est, quant à elle, dédiée à l'utilisation de l'outil numérique Fluent®/MIPPHASOLACIDO/Multi-QMOM pour différentes configurations. Nous l'avons ainsi testé dans un cas expérimental de précipitation d'alumine où les réactions chimiques sont bloquées au bout d'une seconde, puis pour un cas industriel de désoxydation avec injection de bulles d'argon pour le brassage et d'aluminium pour l'extraction de l'oxygène total. Ensuite, deux cas d'école sont présentés à travers deux articles internationaux : *AIChE Journal* et la revue *Steel Research International*. Ils vérifient le comportement de l'outil dans le cas d'une précipitation multiple. Enfin, deux configurations industrielles ont été simulées pour étudier la présence des aluminates de titane.

Les résultats des simulations numériques reproduisant les cas expérimentaux [7] et industriels [1, 3, 8, 9] montrent une faiblesse à prédire des particules de fortes tailles. Les distributions en taille des amas nécessiteraient d'être multipliées par un facteur 3 à 5 pour se rapprocher des résultats de Wakoh *et al.* [7] et d'un ordre de grandeur pour obtenir ceux de Graham *et al.* [3]. Certains paramètres non implémentés ou non activés suggèrent qu'il est possible d'ajouter encore plus de mécanismes physiques aux modèles existants. L'ajout de la variation de la dimension fractale, la capture des inclusions par les bulles, la précipitation hétérogène et une croissance limitée non plus par la diffusion mais par la convection permettrait d'améliorer nos résultats numériques. Toutes ces variables sont autant de potentiomètres qu'il faudra ajuster dans le futur pour mesurer leurs impacts sur les résultats.

Dans le chapitre 2, nous avons introduit l'idée d'une efficacité de collision par l'utilisation d'un coefficient tenant compte des forces de Van der Walls et du film hydrodynamique. Ce paramètre intervient dans le calcul du noyau d'agrégation turbulent et dans celui par séparation gravitaire. Si nous ne tenions pas compte de ce coefficient, cela entrainerait une agrégation après chaque collision binaire et une augmentation plus importante du diamètre moyen des amas. Cependant, son calcul est approximatif et il nécessite d'être amélioré en utilisant par exemple les modèles développés par Gruy *et al* [2,4].

Les vecteurs de moments sont transportés avec un schéma du premier ordre. Or, ce schéma numérique est diffusif. Utiliser un schéma d'ordre supérieur perturbe cependant le vecteur de moments jusqu'à le rendre inutilisable. Une idée pour améliorer et stabiliser les calculs du transport du vecteur de moments est de le normaliser par le moment d'ordre 0. Ensuite, nous

pourrions remplacer la méthode d'ajout des nouveaux précipités qui utilise actuellement un taux J^* et une taille critique de précipitation L^* en convertissant directement les classes de taille de MIPPHASOLACIDO en un vecteur de moments. Si le nombre de classes produites par le logiciel thermodynamique est supérieur ou égal au nombre de nœuds du système PBE/QMOM alors cette solution aura aussi pour effet de lever le problème d'initialisation des moments. Enfin, les vecteurs de moments sont actuellement convectés à la vitesse du fluide. Cette hypothèse est correcte tant que les particules sont en régime de Stokes. Si elles entrent dans le régime inertiel, suite au phénomène d'agrégation, les particules auront une vitesse différente de celle du fluide. Cette prise en compte pourrait améliorer la décantation des inclusions.

Il existe de nombreux modèles numériques utilisant un ou deux de ces trois aspects de la physique [5, 6, 8] mais aucun d'entre eux n'utilise un outil thermodynamique aussi complet que MIPPHASOLACIDO. Ce dernier calcule non seulement la précipitation et la croissance en surface d'un grand nombre d'inclusions mais il calcule aussi la compétition thermodynamique existant entre précipités. Pour le rendre compatible avec le reste de l'outil, nous avons dû réaliser des modifications dans ce code complexe.

Tout au long du chapitre 5 et durant les différentes simulations numériques, la maturation d'Oswald a pu être observée. Il y a donc remise en solution des inclusions dont la taille est inférieure à la taille critique de précipitation en faveur de précipités de taille plus importante. Ce phénomène se poursuit tant que la force motrice est suffisamment importante pour produire de nouveaux oxydes. Ce phénomène de maturation d'Oswald est cependant trop présent dans nos simulations. Il intervient car nous utilisons une tension de surface unique, de faible valeur et constante. Cette tension de surface présente dans le calcul de la force motrice de précipitation et dans le calcul de la taille critique des nucleii est très mal connue. Elle est en effet fonction de l'activité de toutes les espèces présentes. Deux pistes de recherche s'ouvrent sur ce sujet. D'une part, il faut trouver des corrélations plus complètes sur la variation de la tension de surface en fonction des espèces présentes et d'autre part réaliser une étude sur la vitesse de remise en solution dont la formulation est prise actuellement identique à celle de la croissance en surface. Un flux de remise en solution plus faible permettrait de réduire le phénomène de maturation d'Oswald et d'augmenter le diamètre de nos amas.

L'hypothèse d'équilibre thermodynamique utilisée dans le précédent couplage Fluent®/CEQCSI n'est pas toujours vérifiée. Cette cinétique est maintenant prise en compte par l'intermédiaire du couplage entre MIPPHASOLACIDO et Multi-QMOM. Cet ajout permet dorénavant de prédire le maintien ou non des inclusions d'aluminate de titane pour certaines configurations industrielles. Ce résultat démontre l'importance de l'ajout du modèle de cinétique de précipitation dans le contrôle de la chimie des poches sidérurgiques. Il est maintenant possible de prédire une composition chimique qui n'a pas encore atteint l'équilibre. Cet outil pourra maintenant être utilisé afin de comparer la méthode d'injection des éléments et favoriser la production d'inclusions bénéfiques tout en limitant la précipitation d'inclusions néfastes pour l'acier.

La méthode Multi-QMOM représente l'autre avancée scientifique de cette thèse. Elle est implémentée sous forme d'UDFs dans le logiciel Fluent®. Grâce à elle, il est possible de suivre la précipitation, la croissance, la remise en solution et l'extraction de tous les oxydes. Certains paramètres nécessitent quelques réglages supplémentaires pour mieux rendre compte de la

désoxydation et de la mise à nuance. Les programmes informatiques développés pour ce projet ont l'énorme avantage d'être générique. Ainsi, l'introduction d'une nouvelle composition chimique, le changement de la dimension fractale, l'ajustement de la tension de surface ou encore la modification des conditions limites d'extraction se réalisent en corrigeant quelques fichiers textes sans recompilation. De plus, il est possible de transposer l'utilisation de ce travail de thèse à d'autres géométries quels que soient leurs écoulements. Il pourrait être appliqué à d'autres process que la poche, c'est-à-dire, au RH ou lors du vide en cuve par exemple.

Dans ce mémoire de thèse, nous avons présenté un outil numérique capable non seulement de suivre la taille et la composition des amas d'une poche sidérurgique précipitant plusieurs oxydes, mais aussi de suivre leurs extractions du bain. Cet outil numérique représente une avancée importante pour la sidérurgie car il réalise un couplage fort entre l'écoulement turbulent transportant toutes les espèces, les réactions chimiques traduisant le déséquilibre thermodynamique et l'évolution en taille des différents précipités.

Bibliographie

[1]: Burty M., Peeters L., (2007), "Zero clogging", *Rapport interne Arcelor*, IRD/OI/2007/5484.

[2]: Cournil M., Gruy F., Gardin P., Saint-Raymond H., (2006), "Modelling of solid particle aggregation dynamics in non-wetting liquid medium", *Chemical Engineering Process*, **45**, pp. 586-597.

[3]: Graham K.J., Irons G.A., (2009), "The behavior of non-metallic inclusions during ladle refining", *Proceedings of AISTech Conference, St. Louis, Mo., USA, 4-7 May*.

[4]: Gruy F., Cournil M., Cugniet P., (2005), "Influence of nonwetting on the aggregation dynamics of micronic solid particles in a turbulent medium", *Journal of Colloid and Interface Science*, **284**, pp. 548-559.

[5]: Kwon Y.J, Zhang J., Lee H.G., (2008), "A CFD-based nucleation-growth-removal model for inclusion behavior in a gas-agitated ladle during molten steel deoxidation", *ISIJ International*, **48**(7), pp. 891-900.

[6]: Miki Y., Thomas B.G., (1999), "Modeling of inclusion removal in a tundish", *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, pp. 639-654.

[7]: Wakoh M., Sano N., (2007), "Behavior of alumina inclusions just after deoxidation", *ISIJ International*, **47**, pp. 627-632.

[8]: Zhang L., Thomas B.G., (2002), "Alumina inclusion behavior during steel deoxidation", *7th European Electric Steelmaking Conference, Venice, Italy,* May 26-29*,* pp. 2.77-2.86.

[9]: Zhang L., Thomas B.G., (2003), "State of the art in evaluation and control of steel cleanliness", *ISIJ International*, **43**, pp. 271-291.

Annexe 1 : L'algorithme Produit-Différence

L'algorithme Produit-Différence a été mis en place pour résoudre efficacement le système matriciel utilisé pour obtenir les poids et les abscisses correspondant à un vecteur de moments de bas ordre. Pour construire ce système matriciel, la première étape consiste à construire la matrice P où les composantes de la première colonne ont pour valeurs :

$$P_{i,1} = \delta_{i1}, \quad i \in 1,...,2N+1 \tag{A.1}$$

avec δ_{i1} est le symbole de Kronecker.

Les composantes de la seconde colonne de P sont :

$$P_{i,2} = (-1)^{i-1} m_{i-1}, \quad i \in 1,...,2N+1 \tag{A.2}$$

Pour des raisons pratiques de calculs, il est possible de normaliser la distribution (*i.e.* $m_0 = 1$). Ainsi les poids finaux seront corrigés en les multipliant par la vraie valeur de m_0. Les autres composantes de la matrice sont trouvées en utilisant l'algorithme de produit-différence :

$$P_{i,j} = P_{1,j-1}P_{i+1,j-2} - P_{1,j-2}P_{i+1,j-1} \tag{A.3}$$

Si $N_q = 2$ alors P devient :

$$P = \begin{bmatrix} 1 & m_0 & m_1 & m_2 - m_1^2 & m_1 m_3 - m_2^2 \\ 0 & -m_1 & -m_2 & m_1 m_2 - m_3 & 0 \\ 0 & m_2 & m_3 & 0 & 0 \\ 0 & -m_3 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{A.4}$$

Les coefficients α_i de la fraction continue sont générés en posant le premier élément égal à zéro et en calculant les autres avec la relation récursive suivante :

$$\begin{cases} \alpha_1 = m_0 \\ \alpha_i = \dfrac{P_{1,i+1}}{P_{1,i}P_{1,i-1}} \quad i \in 2,...,2N \end{cases} \tag{A.5}$$

Une matrice tridiagonale symétrique J_k, où k est l'ordre de la matrice carrée, est construite ensuite à partir des sommes et des produits des coefficients α_i :

$$\begin{cases} a_1 = \alpha_2 \\ a_i = \alpha_{2i-1} + \alpha_{2i}, \quad i \in 1,..., N \end{cases} \tag{A.6}$$

et

$$b_i = -\sqrt{\alpha_{2i}\alpha_{2i+1}}, \quad i \in 1,..., N-1 \tag{A.7}$$

où a_i et b_i sont respectivement les valeurs des composantes constituant la diagonale et co-diagonale de la matrice de Jacobi :

$$J_2 = \begin{bmatrix} a_1 & b_1 \\ b_1 & a_2 \end{bmatrix} \tag{A.8}$$

Une fois ces actions réalisées, les abscisses et les poids sont déterminés en trouvant les valeurs propres et les vecteurs propres de la matrice de Jacobi.

$$\det(\lambda I_d - J_2) = 0 \Leftrightarrow (\lambda - a_1)(\lambda - a_2) - b_1^2 = 0 \tag{A.9}$$

Ce qui donne pour les valeurs propres :

$$\lambda_{1/2} = \frac{1}{2}(a_1 + a_2) \pm \sqrt{(a_1 - a_2 + 2b_1)(a_1 - a_2 - 2b_1)} \tag{A.10}$$

Ainsi, les abscisses correspondent aux valeurs propres et les poids sont obtenus de la manière suivante :

$$w_j = m_0 U_{1j}^2 \tag{A.11}$$

où U est une matrice orthogonale de passage et v les vecteurs propres tels que :

$$v_i \cdot J_2 = \lambda_i v_i \tag{A.12}$$

$$\|v_i\| = 1 \tag{A.13}$$

$$U = \begin{Bmatrix} v_{1x} & v_{2x} \\ v_{1y} & v_{2y} \end{Bmatrix} \tag{A.14}$$

$$U^{-1} J_2 U = \begin{Bmatrix} \lambda_1 & 0 \\ 0 & \lambda_2 \end{Bmatrix} \tag{A.15}$$

Annexe 2 : Constructions des diamètres

L'étude d'une population de particules requiert le suivi d'une ou plusieurs de ses caractéristiques. Le suivi du volume est souvent choisi lorsque seuls les phénomènes d'agrégation et de brisure se produisent. Mais lorsqu'il y a de la précipitation, de la croissance ou de la sédimentation, l'utilisation du diamètre est plus appropriée. Cependant, il existe de nombreuses manières de définir la notion de diamètre.

Prenons l'exemple d'une population contenant dix particules distribuées de la manière suivante :

Diamètre L (unité)	1	2	3
Nombre de particules	7	2	1

Tableau 3.1 : Distribution d'une population de particules quelconques.

Une manière d'obtenir un diamètre moyen de cette population est de multiplier le nombre de particules d'une classe par la valeur de son diamètre, ce qui donne :

$$d_{10} = \frac{7 \cdot 1 + 2 \cdot 2 + 1 \cdot 3}{7 + 2 + 1} = 1{,}4 \tag{A.16}$$

C'est la définition du diamètre moyen en nombre ou diamètre arithmétique (*i.e.* moyenne classique sans pondération) où le nombre de particules intervient au dénominateur. Ce diamètre est équivalent au rapport m_1/m_0. Il est à noter que la forme des particules n'entre pas dans le calcul.

Les diamètres moyens surfacique et volumique peuvent être définis d'une manière identique :

$$d_{20} = \sqrt{\frac{m_2}{m_0}} = \sqrt{\frac{7 \cdot 1^2 + 2 \cdot 2^2 + 1 \cdot 3^2}{7 + 2 + 1}} = 1{,}549 \tag{A.17}$$

$$d_{30} = \sqrt[3]{\frac{m_3}{m_0}} = \sqrt[3]{\frac{7 \cdot 1^3 + 2 \cdot 2^3 + 1 \cdot 3^3}{7 + 2 + 1}} = 1{,}709 \tag{A.18}$$

Le diamètre volumique est représentatif dans le transport de masse car il privilégie les effets de volume. Les diamètres moyens (3.54) à (3.55) nécessitent de connaître le nombre de particules.

Les diamètres moyens de Sauter d_{32} et de De Brouckere d_{43} tiennent une place importante dans la caractérisation d'une population de particules. Ils sont respectivement définis par :

$$d_{32} = \frac{m_3}{m_2} = \frac{7 \cdot 1^3 + 2 \cdot 2^3 + 1 \cdot 3^3}{7 \cdot 1^2 + 2 \cdot 2^2 + 1 \cdot 3^2} = 2{,}083 \tag{A.19}$$

$$d_{43} = \frac{m_4}{m_3} = \frac{7 \cdot 1^4 + 2 \cdot 2^4 + 1 \cdot 3^4}{7 \cdot 1^3 + 2 \cdot 2^3 + 1 \cdot 3^3} = 2{,}4 \tag{A.20}$$

Le diamètre de Sauter correspond au rapport volume sur surface de l'ensemble de la distribution. Il est principalement utilisé dans les problèmes de transfert de matière ou de chaleur. Le diamètre de De Brouckere correspond au centre de gravité du volume ou de la masse si la densité est constante. C'est le diamètre mesuré par les lasers à diffraction. Ces deux diamètres privilégient les grosses particules au détriment des plus petites et sont analogues à des moments d'inertie du système étudié.

Annexe 3 : Construction du vecteur de moment

Différentes formes d'initialisation du vecteur de moments avec la taille L comme unique coordonnée interne sont présentés dans cette annexe (*i.e.* Dirac, gaussienne, exponentielle, log-normale – *cf.* Tableau 4.1).

Distribution	Fonction densité	Vecteur de moments
Dirac	$n(L)=\frac{N_0}{V_0}\delta(L-L_0)$	$m_k=\int_0^{+\infty} n(L)L^k\,dL=m_0L_0^k$
Exponentielle	$n(L)=3\frac{N_0}{V_0}L^2\exp\left(\frac{-L^3}{\nu_0}\right)$	$m_k=m_0\Gamma\left(1+\frac{k}{3}\right)=m_0\left(\frac{k}{3}\right)!$
Gaussienne	$n(L)=\frac{N_0/V_0}{\sqrt{2\pi}\sigma}\exp\left(-\frac{(L-L_0)^2}{2\sigma^2}\right)$	$m_k=\int_0^{+\infty}\frac{m_0}{\sqrt{2\pi}\sigma_{L^*}}\exp\left(-\frac{(L-L_0)^2}{2\sigma_{L^*}{}^2}\right)L^k\,dL$
Log-Normale	$n(L)=\frac{N_0/V_0}{\sigma_{L^*}\sqrt{2\pi}}\left(\frac{1}{L}\right)\exp\left(-\frac{(\ln L-\ln L_0)^2}{2\sigma_{L^*}{}^2}\right)$	$m_k=m_0\exp\left(k\left(\ln L_0+\frac{k}{2}\sigma_{L^*}{}^2\right)\right)$

Tableau 4.1 : Présentation de quatre formes d'initialisation du vecteur de moments. La valeur des dix premiers moments normalisés de l'initialisation par une fonction exponentielle et gaussienne du vecteur de moment sont présentées ci-dessous. $n(L)$ est la fonction densité en nombre exprimée en taille L, δ est la fonction Dirac, Γ est la fonction gamma, σ_{L^*} est l'écart type et m_k est le moment d'ordre k. $m_0=N_0/V_0$ représente le nombre de particules N_0 par unité de volume V_0.

Les dix premiers moments normalisés par m_0 de la fonction exponentielle prennent les valeurs suivantes :

$m_0=1$ $\quad m_3=1$ $\quad m_6=2$
$m_1=0.892979511569249$ $\quad m_4=1.19063934875900$ $\quad m_7=2.77815848043766$ $\quad m_9=3$
$m_2=0.902745292509340$ $\quad m_5=1.50457548825156$ $\quad m_8=4.01220130200410$

alors que les moments 1 à 9 de la fonction gaussienne se calculent à partir des expressions ci-après :

$$m_1=m_0L_0$$
$$m_2=m_0\left(L_0^2+\sigma_{L^*}{}^2\right)$$
$$m_3=m_0L_0\left(L_0^2+3\sigma_{L^*}{}^2\right)$$
$$m_4=m_0\left(L_0^4+6L_0^2\sigma_{L^*}{}^2+3\sigma_{L^*}{}^4\right)$$
$$m_5=m_0L_0\left(L_0^4+10L_0^2\sigma_{L^*}{}^2+15\sigma_{L^*}{}^4\right)$$
$$m_6=m_0\left(L_0^6+15L_0^4\sigma_{L^*}{}^2+45L_0^2\sigma_{L^*}{}^4+15\sigma_{L^*}{}^6\right)$$
$$m_7=m_0L_0\left(L_0^6+21L_0^4\sigma_{L^*}{}^2+105L_0^2\sigma_{L^*}{}^4+105\sigma_{L^*}{}^6\right)$$
$$m_8=m_0\left(L_0^8+28L_0^6\sigma_{L^*}{}^2+210L_0^4\sigma_{L^*}{}^4+420L_0^2\sigma_{L^*}{}^6+105\sigma_{L^*}{}^8\right)$$
$$m_9=m_0L_0\left(L_0^8+36L_0^6\sigma_{L^*}{}^2+378L_0^4\sigma_{L^*}{}^4+1260L_0^2\sigma_{L^*}{}^6+945\sigma_{L^*}{}^8\right)$$

Annexe 4 : *AICHE Journal*

A multi-QMOM framework to describe multi-component agglomerates in liquid steel

Journal:	*AIChE Journal*
Manuscript ID:	AIChE-09-12107.R1
Wiley - Manuscript type:	Research Article
Date Submitted by the Author:	
Complete List of Authors:	Rimbert, Nicolas; Nancy University, ESSTIN, LEMTA Claudotte, Laurent; ArcelorMittal Maizières Research, RDMP Gardin, Pascal; ArcelorMittal Maizières Research, RDMP Simmonet, marie; ArcelorMittal Maizières Research, RDMP Lehmann, Jean; ArcelorMittal Maizières Research, RDMP Oesterlé, Benoît; Nancy University, LEMTA ESSTIN
Keywords:	Computational chemistry (kinetics/thermo), Computational fluid dynamics (CFD), Metallurgy, Crystal growth (industrial crystallization), Design (process simulation)

scholarONE™
Manuscript Central

For Review Only

A multi-QMOM framework to describe multi-component agglomerates in liquid steel

L. Claudotte[1,2], N. Rimbert[2], P. Gardin[1], M. Simonnet[1], J. Lehmann[1] and B. Oesterlé[2]

(1) ArcelorMittal Maizières Research S.A., RDMP, 57283 Maizières-lès-Metz, France

(2) LEMTA, Nancy-University, CNRS, ESSTIN, 54500 Vandœuvre-lès-Nancy, France

Correspondence should be addressed to N. Rimbert : nicolas.rimbert@esstin.uhp-nancy.fr

Abstract. *A variant of the quadrature method of moments (QMOM) for solving multiple population balance equations is developed with the objective of application to steel industry processing. During the process of oxygen removal in a steel ladle, a large panel of oxide inclusions may be observed depending on the type of oxygen removal and addition elements. The final quality of the steel can be improved by accurate numerical simulation of the multi-component precipitation. The model proposed in this paper takes into account the interactions between three major aspects of steelmaking modeling, namely fluid dynamics, thermo-kinetics and population balance. A commercial CFD code is used to predict the liquid steel hydrodynamics, whereas a home-made thermo-kinetic code adjusts chemical composition with nucleation and diffusion growth, and finally a set of population balance equations (PBE) tracks the evolution of inclusion size with emphasis on particle aggregation. Each PBE is solved by QMOM, the first PBE/QMOM system describing the clusters and each remaining PBE/QMOM system being dedicated to the elementary particles of each inclusion species. It is shown how this coupled model can be used to investigate the cluster size and composition of a particular grade of steel (i.e., Fe-Al-Ti-O).*

Topical heading: Process systems engineering.

Keywords: *Liquid steel processing, ladle reactor, solid inclusion thermodynamics, population balance, growth, aggregation, quadrature method of moments.*

For peer review only

Introduction

Deoxidation and refining are steel processes that occur inside a ladle reactor of molten steel at 1600°C. They are specific instances of precipitation that have a large impact on the final steel quality since the production of some inclusions can create defects on future operations (stamping and rolling).[1]

During deoxidation a significant amount of oxide inclusions[2] are produced and the knowledge of their size and composition allows the steel quality to be controlled. Some studies[1-4] have shown that the typical elementary particle size of oxide inclusion ranges from nanometers to micrometers due to growth and aggregation phenomena. A numerical tool has been developed in order to predict and to understand the production of large inclusions, taking into account the strong coupling between steel flow and chemical reactions. The spatial cluster evolution inside the ladle reactor is modeled by a CFD code (Fluent®) and the chemical composition evolution is computed using a in-house thermo-kinetic code.

Since McGraw[5] developed the quadrature method of moments (QMOM) and validated it for a problem of growth in an aerosol dynamics context, various developments have been achieved. Marchisio et *al.*[6-7] used QMOM for nucleation, crystal growth and aggregation, and validated their results through comparison with some analytical results. However, as our study involves a large range of inclusion compositions, the standard QMOM is not appropriate because only one internal coordinate can be tracked. Here, a multi-QMOM model is presented, based on a decomposition of the global population balance equation (PBE), which involves several internal coordinates, into several PBE with one internal coordinate.

The main objective of this paper is to present how the cluster size and composition are tracked by the multi-QMOM model. In the first part, the various population balance

For Peer review Only

equations and the associated QMOM are described. Then the numerical implementation is detailed. The third part presents the numerical tool applied to a ladle reactor and results are finally discussed.

PBE and associated QMOM

In this section, the PBE and associated QMOM are presented. A new usage of QMOM for a multi-precipitation system with two or more different kinds of oxide is explained.

Original PBE

This study focuses on the three major particle behaviors that are observed inside a ladle reactor of liquid steel, namely nucleation, diffusion growth and aggregation. They can be expressed through a population balance model which is a continuity statement based on the number density function.

The time evolution of the particle size distribution (PSD) is described by the following equation based on the number density function in particle length coordinate: [6]

$$\frac{\partial n(L)}{\partial t}+\langle u_i\rangle\frac{\partial n(L)}{\partial x_i}-\frac{\partial}{\partial x_i}\left[\Gamma_t\frac{\partial n(L)}{\partial x_i}\right]=-\frac{\partial}{\partial L}[G(L)n(L)]+h(L) \quad (1)$$

where $n(L)$ is the number density function of particle size L, $\langle u_i\rangle$ denotes the Reynolds-averaged velocity in the x_i-direction (Einstein summation convention is applied), Γ_t is the turbulent diffusivity, $G(L)$ is the diffusion growth rate, and $h(L)$ represents the net rate of introduction of new particles into the system.[8] New particles of size L are originating from three source terms:

$$h(L)=J(L)+B(L)-D(L) \quad (2)$$

where $J(L)$ is the nucleation rate, $B(L)$ and $D(L)$ are the rate of birth and death, respectively, due to particle aggregation. According to the work of Smoluchowski (see

For peer review only

the textbook by Ramkrishna[9]), we define the birth and death rates of aggregates for a discrete system composed of interacting monomers:

$$B(L) = \frac{1}{2}\int_0^L \frac{\beta\left(\left(L^3-\lambda^3\right)^{1/3},\lambda\right)}{\left(L^3-\lambda^3\right)^{2/3}} n\left(\left(L^3-\lambda^3\right)^{1/3}\right) n(\lambda) d\lambda \tag{3}$$

$$D(L) = n(L)\int_0^\infty \beta(L,\lambda) n(\lambda) d\lambda \tag{4}$$

where L and λ are particle sizes, β is the length based aggregation kernel. Finally, neglecting the turbulent diffusion compared to the convective transport, the PBE can be rewritten as:

$$\frac{Dn(L)}{Dt} = -\frac{\partial}{\partial L}[G(L)n(L)] + J(L) + B(L) - D(L) \tag{5}$$

The left member of Eq. (5) regroups all the transport terms (*D/Dt* stands for the total derivative using the fluid velocity), whereas the right member represents the population size evolution.

PBE written in the QMOM framework

The moments of the PSD are obtained from the number density function by applying the moment transformation:

$$m_k = \int_0^\infty n(L) L^k dL \tag{6}$$

where k is the moment order. The first four moments can be related to the physical properties of the distribution: m_0 is the number of particles per unit volume, m_1/m_0 is the mean diameter, m_2/m_0 is the mean particle surface area (up to a factor π for spherical particles) and m_3/m_0 is the mean particle volume (up to a factor $\pi/6$ for spherical particles).

For peer review only

As the left member of the PBE is solved using the CFD code, the terms in the right member must be approximated with the quadrature. Let us first apply the moment transformation for each term on the right hand side:

$$\int_0^\infty \frac{Dn(L)}{Dt} L^k dL = \int_0^\infty kGn(L) L^{k-1} dL + JL^{*k} + B_k - D_k \tag{7}$$

where L^* is the nucleus size, and

$$B_k = \frac{1}{2} \int_0^\infty n(\lambda) \int_0^\infty \beta(u,\lambda) \left(u^3 + \lambda^3\right)^{k/3} n(u) du d\lambda \tag{8}$$

$$D_k = \int_0^\infty L^k n(L) \int_0^\infty \beta(L,\lambda) n(\lambda) d\lambda dL \tag{9}$$

with $u^3 = L^3 - \lambda^3$. The nucleation rate J and the crystal growth rate G are considered as time dependent variables and their values are obtained by the thermo-kinetic software.

The QMOM can be seen as a moving class method where N_q classes evolve in size and weight. The so-called quadrature approximation is performed on the number density function: [6-7]

$$n(L) \approx \sum_{i=1}^{N_q} w_i \delta[L - L_i] \tag{10}$$

where N_q is the number of nodes, each of one is defined by its abscissa L_i and weight w_i, and δ is the Dirac delta function. The moments are obtained by using this Gaussian quadrature approximation in Eq. (6):

$$m_k = \int_0^\infty n(L) L^k dL \approx \sum_{i=1}^{N_q} w_i L_i^k \tag{11}$$

The abscissas L_i and weights w_i are determined through the product-difference algorithm from the lower-order moments. Only $2N_q$ moments are needed to apply this algorithm.[5-7,10] Now, by applying the quadrature approximation in Eqs. (7)-(9), the moment equation becomes:

For peer review only

$$\frac{Dm_k}{Dt} = k\sum_{i=1}^{N_q} G\left(L_i\right) w_i L_i^{k-1} + JL^{*k} + \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q} w_i \sum_{j=1}^{N_q} w_j \left(L_i^3 + L_j^3\right)^{k/3} \beta_{ij} - \sum_{i=1}^{N_q} L_i^k w_i \sum_{j=1}^{N_q} w_j \beta_{ij} \qquad (12)$$

where $\beta_{ij} = \beta\left(L_i, L_j\right)$. It has been shown[6-7] that it is possible to track with high accuracy the moments of the PSD by using only three nodes (N_q =3).

Multi-PBE model description

In order to better understand the issues of this project, a symbolic representation of the shape and composition of the harmful inclusions is displayed in Fig. 1.

The particle size depends on the critical nucleation length L^*, on the diffusion growth rate G, on the rate of aggregation β_{ij} and obviously on the nature of inclusions produced inside the reactor. From this description, it is obvious that several internal coordinates are necessary to properly describe the shape and composition of clusters.

Recently, Marchisio and Fox[11-13] developed the method of direct quadrature of moments (DQMOM) to solve the PBE with two or more internal coordinates, however this method still suffers from some numerical instability. This is especially true when a large number of internal coordinates is required, mainly due to ill-conditioned matrices and to the difficulty of choosing the right set of moments. Thus, for the time being, the DQMOM has been excluded for the present application. By contrast, the QMOM with one internal coordinate is a precise approximation of the original PBE.

Accordingly, an alternate method relying solely on QMOM has been devised. The presented multi-QMOM method does not take the correlations between composition and size into account. In this manner, the chemical composition is followed by using a QMOM/PBE system for each kind of precipitate (i.e. Al_2O_3, TiO_2…). Each system follows the number of nuclei ($m_{0,p}$) and the size of the elementary particles for the precipitate p. In return, only diffusion growth and nucleation can modify the distribution:

For peer review only

$$\frac{Dm_{k,p}}{Dt} = k\sum_{i=1}^{N_q} G_{i,p} w_{i,p} L_{i,p}^{k-1} + J_p L_p^{*k} \quad (13)$$

where the subscript p stands for the elementary particle PBE/QMOM system. Then, the cluster size is followed by a dedicated PBE/QMOM system which includes all elementary particles, with a particular growth treatment based on volume conservation and a particle collision calculation:

$$\frac{Dm_{k,c}}{Dt} = k\sum_{i=1}^{N_q} G_{i,c} w_{i,c} L_{i,c}^{k-1} + \sum_{p=1}^{N_p} J_p L_p^{*k} + \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c} \sum_{j=1}^{N_q} w_{j,c} \left[\left(L_{i,c}^3 + L_{j,c}^3 \right)^{\frac{k}{3}} - L_{i,c}^k - L_{j,c}^k \right] \beta_{ij} \quad (14)$$

where N_p is the number of precipitated phases, $G_{i,c}$ is the diffusion growth rate of the cluster envelope and the subscript c stands for the cluster PBE/QMOM system. The nucleation term in Eq. (14) comes from the PBE/QMOM system for elementary particles. All new nuclei are considered as clusters with only one particle that can collide with other particles to grow up.

Multi-QMOM results

The multi-QMOM has been developed in order to obtain the cluster size and composition inside a liquid steel ladle from a single simulation.

The mean cluster or particle size is observed by tracking the Sauter mean diameter $d_{32,c} = m_{3,c}/m_{2,c}$ or $d_{32,p} = m_{3,p}/m_{2,p}$. We also define the number-volume mean diameter $d_{30,c}$:

$$d_{30,c} = \sqrt[3]{\frac{m_{3,c}}{m_{0,c}}} \quad (15)$$

Then, the elementary particle PBE and the cluster PBE are linked by a volume conservation hypothesis, which implies that the global precipitate volume is equal to the total cluster volume. This yields the following relationship between all third-order moments:

For peer review only

$$m_{3,c} = \sum_{p=1}^{N_p} m_{3,p} \tag{16}$$

The cluster size and cluster composition can be assumed to be independent of each other provided that collisions do not depend on the type of oxide. This assumption is realistic because alumina and titanium oxides are considered as solid spherical particles. The volume percentage of one oxide *p* inside a cluster is defined by:

$$\phi_{v,p} = \frac{m_{3,p}}{m_{3,c}} \tag{17}$$

Finally, the average mass of a cluster is written by using the parameters defined in Eqs. (15) and (17):

$$M_{cluster} = \sum_{p=1}^{N_p} k_v \rho_p \phi_{v,p} \left(d_{30,c}\right)^3 \tag{18}$$

where k_v is the volume shape factor (equal to $\pi/6$ for spherical particles) and ρ_p is the oxide density.

Numerical implementation

Coupling fluid motion, chemistry and population balance

The software is made up of three independent pieces of software that can share data through file access. The chemical composition and all the moment vectors are transported as passive scalars inside the Fluent® CFD software. The chemical composition is sent to the thermo-kinetic code once the scalar transport computation has been achieved by the CFD code. The thermo-kinetic software checks the chemical equilibrium evolution and computes the growth and nucleation rates for each precipitate. The chemical composition is then sent back to the CFD code. Finally, all moments of PBE/QMOM systems are updated with terms stemming from diffusion growth, elementary particles nucleation and aggregation (actually only for the clusters PBE),

For peer review only

making the coupling process ready for a new time-step. As QMOM is directly implemented in the CFD code Fluent®, in the form of user defined functions, the variables are shared by the two programs. The thermo-kinetic code is called as an external application and it exchanges data with the CFD code through ASCII data files.

Nucleation and diffusion growth rates

The nucleation rate J and the diffusion growth rate G are computed by the thermo-kinetic code, which is based, according to the classical nucleation theory (CNT), on the minimization of the Gibbs free energy. The competition between the volumic nucleation driving force and the surface creation energy cost results in a minimum given by:[14]

$$\Delta G^* = \frac{16\pi\sigma^3}{3\,\Delta G_v^2} \tag{19}$$

where σ is the interfacial energy, and ΔG_v is obtained from

$$\Delta G_v = I\,(\sum_{i,j} C_{ji} X_i)/V_m \tag{20}$$

with I denoting the driving force of precipitation. C_{ij} is the number of atoms of component j in the oxide i, X_i is the mole fraction of oxide i and V_m is the oxide mole volume. For a given oxide stoichiometric compound, the driving force I obeys the following expression:

$$I = RT \ln\left\{\left(\frac{(a_E)^x (a_O)^y}{K_{E_xO_y}.a_{E_xO_y}}\right)^{\frac{1}{x+y}}\right\} \tag{21}$$

where R is the ideal gas constant, T denotes temperature, $a_{\underline{E}}$ and $a_{\underline{O}}$ are, respectively, the activities of element E and of oxygen referred to the 1% dilute solution, a_{E_xOy} is the activity of E_xO_y in the oxide, K_{E_xOy} is the solubility product of E_xO_y in the liquid metal, and x and y are the appropriate stoichiometric coefficients. Then the rate of homogeneous nucleation of inclusions is given by:

For peer review only

$$J = Z\beta_n N_s \exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T}\right) \quad (22)$$

where Z is the Zeldovitch factor, β_n a frequency factor, N_s the number of nucleation sites per unit volume and k_B the Boltzmann constant.

In the thermo-kinetic software, it is considered that all precipitates are spherical with the diameter of new nuclei, increasing for decreasing driving force according to CNT, given by

$$L^* = -4\sigma/\Delta G_v \quad , \quad (23)$$

therefore the nucleus diameter is larger at the end of the process than at the beginning.

Finally, when the diffusion growth rate is not limited by interfacial kinetics the diffusion flux at the surface is obtained as follows:

$$\Phi_i = k_i \left(C_i^{(l)} - C_i^{(i)}\right) \quad (24)$$

where $C_i^{(l)}$ and $C_i^{(i)}$ are the concentrations in mol m^{-3}, respectively in the liquid steel far from the precipitate and at the interface. $C_i^{(l)}$ is given by composition transport and when the growth is controlled by diffusion, $C_i^{(i)}$ is the equilibrium value. Here, due to the small size of the precipitates, the Sherwood number $2r\,k_i/D_i$ can be assumed equal to 2, therefore the mass transfer coefficient k_i is taken equal to D_i/r where D_i is the diffusion coefficient of the element i and r the radius of the precipitate (*cf.* Table 1).

Growth treatment for elementary particles

Instead of directly using the diffusion growth rate $G_{p,i}$ presented in Eq. (13) where the weights of the Dirac's distributions are modified accordingly, the abscissas are shifted ensuring growth in a proper manner. Let us describe more precisely this procedure in the following. First, the oxide volume is connected to the third moment according to the following relationship:

For peer review only

$$V_{i,p} = k_v w_{i,p} L_{i,p}^3 \tag{25}$$

Then, we notice that only the size of the particles (and not their number) is concerned by diffusion growth, so that it is useless to try to modify the weights (i.e. the number of the moving classes of the QMOM framework). The volume variation for node *i* during a time-step Δt is obtained through:

$$\Delta V_{i,p} = k_v \Delta\left(w_{i,p} L_{i,p}^3\right) = k_v w_{i,p}\left(L_{i,p}^3(t+\Delta t) - L_{i,p}^3(t)\right) \tag{26}$$

giving finally the new abscissa used to reconstruct the vector of moments for the next time-step:

$$L_{i,p}(t+\Delta t) = L_{i,p}(t)\left[1 + \frac{\Delta V_{i,p} k_v^{-1}}{w_{i,p} L_{i,p}^3(t)}\right]^{1/3} \tag{27}$$

As a consequence, the product-difference algorithm is not used because the new treatment of particle diffusion growth only shifts the node abscissas. It may be noticed that even if this new way of treating the particle growth may seem quite simple, it is an important modeling step as it enforces the numerical stability. Actually, it has been observed that if weights and abscissas were modified as presented in equation (14), the product-difference algorithm might fail. Therefore, the set of moments obtained (and convected) thereafter is still the set of moments of a real distribution.

Growth treatment for clusters

Even if the problem has been simplified by decoupling the cluster size from the cluster composition, i.e., $n_{Cluster}(L, X_1, ..., X_p) \approx n_{Cluster}(L)$, the cluster volume must satisfy the volume conservation hypothesis. In the same way that the diffusion growth of elementary particle is treated, the QMOM abscissas of clusters are shifted using a multiplying factor h_f. Consequently the new cluster QMOM abscissas are calculated as follows:

$$L_{i,c}(t+\Delta t) = L_{i,c}(t) h_f \tag{28}$$

For peer review only

with a factor independent of the abscissa:

$$h_f = \left(1 + \frac{\Delta m_{3,c}}{m_{3,c}}\right)^{1/3} \tag{29}$$

To illustrate the described model for cluster growth, Fig. 2 shows the impact of h_f upon a Gaussian cluster shape with a QMOM using 4 nodes. Therefore, for a global volume divided by 2 ($h_f = 2^{-1/3} \approx 0.794$) or multiplied by 2 ($h_f = 2^{1/3} \approx 1.259$), the global shape of the cluster population is conserved and only abscissas are modified in accordance with the volume conservation hypothesis.

The two models for elementary particle growth or cluster growth are nearly the same, as shown by Eqs. (27) and (28). Let us point out that the growth coefficient for elementary particles is computed node by node whereas there is only one coefficient for clusters.

Aggregation kernel

In this paper, the aggregation mechanism is classically assumed to be a second-order process, in which the rate of collision is proportional to the product of concentrations of the two colliding species.[15] Thanks to dilution, the collisions between three bodies or more are neglected. Moreover, as the collisions are assumed to be instantaneous, a three-body collision can be considered as the succession of two binary collisions. Three kernels are used, according to their range of influence:

- for very small particles (negligible inertia), Brownian motion is the main mechanism leading to interparticle collisions ; in this case, the kernel writes as:

$$\beta_{ij}^{Br} = \frac{2k_B T}{3\mu_L} \frac{\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^2}{R_{c,i} R_{c,j}} \tag{30}$$

where $R_{c,i} = L_i/2$ is the collision radius and μ_L is the fluid viscosity.

For peer review only

- for inertial particles that do not perfectly follow the turbulent fluctuations, the effect of Brownian motion can be neglected, and turbulence becomes the main mechanism ; if the particle diameter is smaller than the Kolmogorov microscale , $\eta_K = \left(\nu_L^3/\varepsilon\right)^{1/4}$, a new collision kernel can be used. The turbulent aggregation kernel can be expressed by

$$\beta_{ij}^{Turb} = \alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right)\beta_{ij0}^{Turb} = \alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right)\sqrt{\frac{8\pi}{15}\frac{\varepsilon}{\nu_L}}\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^3 \quad (31)$$

where β_{ij0}^{Turb} is the Saffman-Turner collision kernel[16] and $\alpha(R_{c,i}, R_{c,j})$ is the coagulation efficiency, which takes into account the forces to eliminate the liquid film between two colliding particles and the Van der Waals force.[17-18] It can be shown that the Brownian kernel alone generally does not lead to rapid formation of large aggregates and that the turbulent kernel significantly enhances the rate of inter-particle collisions.[15]

- if precipitates are lighter than the liquid, then collisions happen due to the difference in rise velocities between particles of various size. The corresponding Stokes aggregation kernel is given by:

$$\beta_{ij}^{St} = \alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right)\beta_{ij0}^{St} = \alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right)\frac{2\pi g\left(\rho_L - \rho_p\right)}{9\mu_L}\left|R_{c,i}^2 - R_{c,j}^2\right|\left(R_{c,i} + R_{c,j}\right)^2, \quad (32)$$

where g denotes the gravitational acceleration.

In Eqs. (31)-(32), the coagulation efficiency is expressed in terms of the mean velocity gradient $\dot{\gamma}$ in the particle neighborhood, following Van de Ven and Mason:[18]

$$\alpha\left(R_{c,i}, R_{c,j}\right) = 0.8H^{0.18}\left(36\pi\mu_L\dot{\gamma}\left(\frac{R_{c,i} + R_{c,j}}{2}\right)^3\right)^{-0.18} \quad (33)$$

where H is the Hamaker constant, the value of which is not well established for the mixed oxides studied here. Therefore H is set to 10^{-20} J in the next simulation, a value

For peer review only

which is a good compromise with predicted values obtained for Al_2O_3 alone in liquid iron at T = 1873 K (H = 2.3 10^{-20} J).[19] For the Saffman-Turner kernel, the mean velocity gradient in Eq. (33) is $\dot{\gamma} = \sqrt{\varepsilon / \nu_L}$, while in case of Stokes collisions the velocity gradient is obtained from the difference in terminal velocities of two particles:

$$\dot{\gamma} = \frac{2g}{9\mu_L}\left|\rho_L - \rho_p\right| \frac{\left|R_{c,i}^2 - R_{c,j}^2\right|}{R_{c,i} + R_{c,j}} = \frac{2g}{9\mu_L}\left|\rho_L - \rho_p\right| \left|R_{c,i} - R_{c,j}\right| \tag{34}$$

As is usual, the aggregation kernel is finally approximated by simply adding the three kernels given by Eqs. (30)-(32):

$$\beta_{ij} = \beta_{ij}^{Br} + \beta_{ij}^{Turb} + \beta_{ij}^{St} \tag{35}$$

Time stepping for aggregation

The solution of multi-QMOM / PBE is split into three parts: nucleation, growth by diffusion and growth by aggregation. To ensure positive values of the three first moments using an Euler time integration scheme, the aggregation source term is calculated with the following general time step condition:

$$\Delta t_0 \leq K \frac{m_0(t)}{D_0 - B_0}, \tag{36}$$

where K is a constant defining the cluster aggregation limitation (e.g. for K = 0.005, only 0.5% of the population are aggregated), and B_0, D_0 are the birth and death source terms for the moment m_0, according to Eqs. (8)-(9). Note that $D_0 > B_0$, so that all terms in (36) are positives. As shown in Fig. 3, the general time step condition is validated by the comparison between analytical and numerical results, assuming an exponential initial PSD for a constant aggregation kernel β_0:

$$m_k(t) = m_k(t=0)\left(\frac{2}{2 + N_0 \beta_0 t}\right)^{1-k/3} \tag{37}$$

For peer review only

where N_0 is the initial number of particles per unit volume (m^{-3}). The moments are initialized with the gamma function Γ:

$$m_k(t=0) = \Gamma\left(1+\frac{k}{3}\right) \tag{38}$$

The same aggregation test case has been performed in a one-dimensional simulation by transforming the time dependent PBE into a steady one-dimensional PBE with a uniform convection velocity[20] (u = 1 m s^{-1}). Results obtained by this simulation, using the same initialization, are also in good agreement with the analytical solution.

Application to a model ladle reactor

Geometry and simulation set up

The ladle reactor (Fig. 4) is a cylindrical vessel lined with refractory bricks and stirred with argon bubbles injected through a porous bumper at the bottom center. On top of the liquid steel, the slag protects the steel from reoxidation by the air oxygen and from heat losses. It also captures solids inclusions. A ladle of height h = 3.70 m and radius r = 2 m contains about 325 tons of liquid steel. In order to reduce computational cost, a two-dimensional axisymmetric geometry is modeled in this work, and the energy equation is not solved, which means that neither the heat losses through the ladle walls and surface nor the heat production by precipitation are taken into account. In the present state, the slag is modeled as a reflecting wall without inclusion extraction nor chemical exchange (though these phenomena will be modeled for industrial applications).

Initially, the ladle reactor contains pure iron with 500 ppm dissolved oxygen. Additional elements, namely aluminum and titanium, are introduced together during 10 s in the form of small spherical beads of diameter 4 mm. The amount of each deoxidizer is prescribed in order that all oxygen is consumed by alumina precipitation or by

For peer review only

titanium oxide precipitation (*cf.* Table 2). Aluminum and titanium particles are scheduled to melt after a time delay of 1s inside the ladle, as confirmed by a preliminary work[21] which has shown that such a melting time of 1 s is in good agreement with experimental data.

As regards the numerics, let us mention that the CFD code and the PBE solution work in double precision and that three nodes are used for each QMOM. The first six moments are chosen to track the particle distribution (m_0 to m_5).

The flow is computed using the realizable k–ε turbulence model,[22] which is known to provide better performance for flows involving recirculation and prevents non-realizability of the Reynolds stresses for flow regions where $Sk/\varepsilon > 3.7$, with S being the strain rate, k the turbulent kinetic energy and ε the turbulent dissipation rate. This choice of turbulence model has been found to be needed in the present computations because the ratio Sk/ε has been observed to exceed the value 3.7 in the most part of the flow. The standard wall function (*i.e.* a logarithmic "law-of-the-wall") is used as a boundary condition at the vessel walls. It is worth noting that such a turbulence model can be used here since the liquid steel may be considered as a simple and Newtonian liquid at our working spatial and time scales[23] (its viscosity and other properties are given in Table 1). A second-order discretization scheme (QUICK) is selected for the convective terms. Due to the low concentration of oxides, any effect of the particles upon the liquid steel flow can be neglected. Once the flow field has reached a steady state, it is numerically frozen and the full coupling between the numerical tools is started. All mass fractions and moments are tracked by the CFD code as passive scalars in a steady fluid flow.

For peer review only

Results

The stationary liquid flow field obtained after 180 s of stirring by argon bubbles is displayed in Fig. 5. The plume zone is clearly defined with a maximum velocity near 1.3 m s^{-1}. The fluid recirculation ensures the composition homogenization and the particle transport.

The main purpose of the presented numerical model is to describe the behavior of inclusions during the ladle treatment. From now, all presented results (mass fraction, cluster size and composition) are averaged over the entire ladle. In the plots shown in Figs. 6-11, time t=0 s corresponds to the beginning of the aluminum and titanium melting, therefore all the injected particles are assumed to be dissolved in the steel at t=10 s. The mass fractions of the dissolved elements and precipitated oxides are shown in Figs. 6-7. The linear introduction of aluminum and titanium in Fig. 6 has to be related to the linear production of oxides in Fig. 7. Before 10 s, all deoxidation particles melt and they react directly with the local dissolved oxygen. After 10 s, the oxygen removal is limited by scalar transport and the ladle composition is stabilized after 100 s of chemical reaction (see Figs. 6, 7 and 10). The mean Sauter diameter of clusters, $d_{32,c}$, and the mean cluster mass, $M_{cluster}$, are presented in Figs. 8 and 9. As far as the stabilized composition appearing at the end of the simulation is considered, $d_{32,c}$ is about doubled while $M_{cluster}$ is multiplied ten-fold; all of which is in good agreement with the calculation of particle mass using the particle diameter.

As shown by Figs. 7 and 10, at the end of the simulation the clusters are composed of about 2/3 alumina and 1/3 titanium oxide, a proportion related to their respective Gibbs free energies. When aluminum and titanium are in competition for oxygen capture, thermodynamics predicts that alumina precipitates more easily than titanium oxide (see Table 2).

For peer review only

The mean cluster size distribution, illustrated in Fig. 11 in which the weights are plotted as functions of the node abscissas, confirms the production of large inclusions (exceeding 3 μm) by consumption of small particles. The first node is divided by a factor 10 from time 100 s to 600 s. Only agglomeration due to turbulent or Stokes collisions are strong enough to explain the rise of particle diameter.

Conclusion

The cluster size and composition of solid oxide inclusions inside a liquid steel ladle of Fe-Al-Ti-O have been studied by means of an improved quadrature method of moments, called multi-QMOM. The multi-QMOM reconstructs the mean cluster size and composition and makes it possible to draw a picture of the cluster population inside the entire steel ladle. The use of N_p+1 PBE/QMOM systems to predict the cluster size and composition (N_p being the number of precipitated species) requires only $N_q(N_p+1)$ moments to be calculated and tracked by the numerical tool (where N_q is the number of QMOM nodes). To successfully run the simulation case, the standard way of taking the growth process into account has to be modified. By shifting the Dirac delta position, it is ensured that the shape of the vector of moments still describes the moments of a probability density function.

The production of large aggregates (exceeding the Kolmogorov length scale, which is of the order of 100 μm) raises the question of the validity of the turbulent aggregation kernel. Indeed, when the particle size enters the inertial domain a new turbulent aggregation kernel must be used instead of equation (32). This is in development and a new turbulent kernel will be implemented following the works of Abrahamson[24] and Zaichik et al.[25] Moreover, in order for the numerical predictions to assess the final cleanliness of liquid steel, appropriate extraction models will be implemented so as to simulate bubble capture, slag entrapment and wall adhesion.

For Peer review only

As it affects mainly the buoyancy effect, the possible correlation between size and composition has been neglected, seeing that all oxides have nearly the same densities (about 4 000 kgm^{-3}) in this preliminary work. To our knowledge, no study has been carried out so far regarding the effect of such a correlation. Nevertheless, we expect that the use of DQMOM would make it possible to allow for the correlation between size and composition. This new development is left for future work.

In the present state, simulations are restricted by the computational cost of the thermo-kinetic code (50 minutes for 90 000 cells with a time-step of 0.05 s on a quad-core bi-processor INTEL Xeon computer). Therefore efforts will be devoted towards the code parallelization. It is worth mentioning also that additional precipitates can easily be added into the simulation. Taking advantage of such improvements, the next important step for industrial application will be a 3D ladle study including the prediction of the production of most harmful inclusions like titanate aluminum for instance.

Acknowledgement

This project has been supported by the “Association Nationale de la Recherche Technique” (ANRT-France: Grant n°1064/2006).

References

[1] Zhang L and Thomas BG. State of the art in evaluation and control of steel cleanliness. *ISIJ Int.* 2003; 43:271-291.

[2] Thuman M and Sichen D. Origins of non-metallic inclusions and their chemical development during ladle treatment. *Steel Research Int.* 2007; 79:124-131.

[3] Doo WC, Kim DY, Kang SC and Yi KW. Measurement of the two-dimensional fractal dimensions of alumina clusters formed in an ultra low carbon steel melt during RH process. *ISIJ Int.* 2007; 47:1070-1072.

For peer review only

[4] Wakow M and Sano N. Behavior of alumina inclusions just after deoxidation. *ISIJ Int*. 2007; 47:627-632.

[5] McGraw R. Description of aerosol dynamics by the quadrature method of moments. *Aerosol Sci. Technol*. 1997; 27:255-265.

[6] Marchisio DL, Pikturna JT, Fox RO, Vigil DR and Barresi AA. Quadrature method of moments for population-balance equations. *AIChE J*. 2003; 49:1266-1276.

[7] Marchisio DL, Vigil DR and Fox RO. Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes. *J. Colloid Interf. Sci*. 2003; 258:322-334.

[8] Hulburt HM and Katz S. Some problems in particle technology. *Chem. Eng. Sci*. 1964; 19:555-574.

[9] Ramkrishna D. Population balances: Theory and applications to particulate systems in engineering. *Academic Press*, London, 2000.

[10] Gordon RG. Error bounds in equilibrium statistical mechanics. *J. Math. Phys*. 1968; 9:655-663.

[11] Marchisio DL and Fox RO. Solution of population balance equations using the direct quadrature method of moments. *J. Aerosol Sci*. 2005; 36:43-73.

[12] Fox RO. Bivariate direct quadrature method of moments for coagulation and sintering of particle populations. *J. Aerosol Sci*. 2006; 37:1562-1580.

[13] Fox RO, Laurent F and Massot M. Numerical simulation of spray coalescence in an Eulerian framework: Direct quadrature method of moments and multi-fluid method. *J. Comput. Phys*. 2007; 227:3058-3088.

[14] Lehmann J, Rocabois P and Gaye H. Kinetic model of non metallic inclusions precipitation during steel solidification. *J. Non-Cryst. Solids* 2001; 282:61-71.

[15] Elimelech M, Gregory J, Jia X and Williams RA. Particle deposition and aggregation. Measurement, modelling and simulation. *Butterworth-Heinemann*, Woburn, USA, 1995.

For peer review only

[16] Saffman PG and Turner JS. On the collision of drops in turbulent clouds. *J. Fluid Mech.* 1956; 1:16-30.

[17] Cournil M, Gruy F, Gardin P and Saint-Raymond H. Modelling of solid particle aggregation dynamics in non-wetting liquid medium. *Chem. Eng. Process*. 2006; 45:586-597.

[18] Van de Ven TGM and Mason SG. The microrheology of colloidal suspensions. VII. Orthokinetic doublet formation of spheres. *Colloid Polym. Sci*. 1977; 255:468-479.

[19] Taniguchi S, Kikuchi A, Ise T and Shoji N. Model experiment on the coagulation of inclusion particles in liquid steel. *ISIJ Int.* 1996 ; 36 (Suppl.):S117-S120.

[20] Silva LFLR, Damian RB and Lage PLC. Implementation and analysis of numerical solution of the population balance equation in CFD packages. *Computers & Chemical Engineering*. 2008; 32, 12, 2933-2945.

[21] Gardin P, Domgin JF, Simonnet M and Lehmann J. Modeling of inclusion evolution in a steel ladle. *Revue Metall.-Paris.* 2008; 2:84-91.

[22] Shih T-H, Liou WW, Shabbir A, Yang Z and Zhu J. A new *k-ε* eddy-viscosity model for high reynolds number turbulent flows - Model development and validation. *Computers Fluids*. 1995; 24(3):227-238.

[23] Scopigno T, Ruocco G and Sette F. Microscopic dynamics in liquid metals: the experimental point of view. *Rev. Mod. Physics*. 2005; 77:881-933.

[24] Abrahamson J. Collision rates of small particles in a vigorously turbulent fluid. *Chem. Eng. Sci*. 1975; 30:1371-1379.

[25] Zaichik LI, Simonin O and Alipchenkov VM. Collision rates of bidisperse inertial particles in isotropic turbulence. *Phys. Fluids*. 2006;18:035110.

For peer review only

Table captions

Table 1: Values of density and diffusion coefficients in liquid steel at 1873 K.

Table 2: Thermo-kinetic data for alumina and titanium.

Figure captions

Figure 1: Symbolic representation of cluster shapes. Black and grey particles represent elementary particles belonging to two different phases. These two species are followed by the elementary particle PBE/QMOM systems, while clusters are followed by the cluster PBE/QMOM system.

Figure 2: Shape evolution due to cluster growth model (Gaussian initialization, four nodes).

Figure 3: Aggregation validation case: $N_0 = 1\ \mathrm{m}^{-3}$ and $\beta_0 = 1\ \mathrm{m}^3\mathrm{s}^{-1}$. Symbols : analytical solution ; solid lines : numerical solution obtained with four nodes.

Figure 4: Sketch of the ladle reactor with its axis of revolution. The argon bubbles are injected at the bottom center (A), and the additional elements are introduced through the slag at the top of the ladle (B).

Figure 5: Fluid velocity field (left) and computational grid (right). The maximum velocity is about $1.3\ \mathrm{m\,s}^{-1}$.

Figure 6: Time evolution of the mass fraction of dissolved elements.

Figure 7: Time evolution of the mass fraction of precipitated oxides.

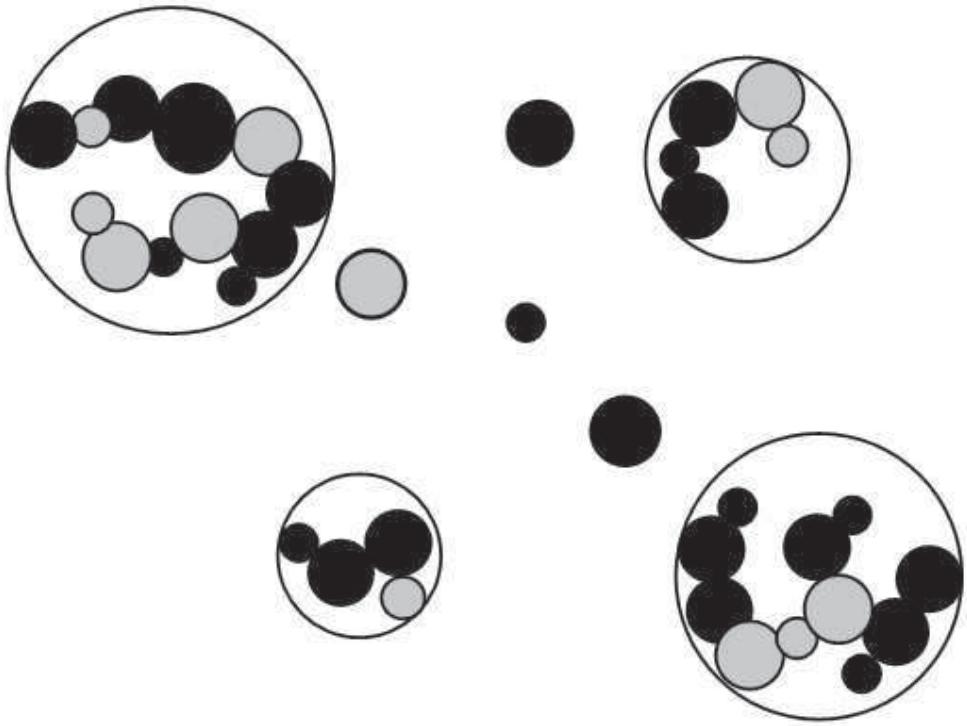
Figure 8: Time evolution of the Sauter mean diameter of clusters.

Figure 9: Time evolution of the mean mass of clusters.

Figure 10: Predicted mass fraction of each oxide inside a cluster.

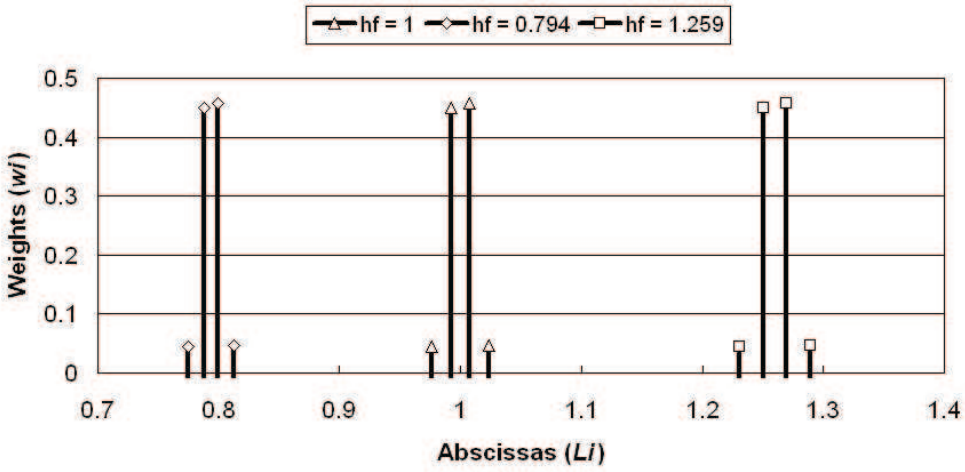
Figure 11: Illustration of the cluster size distribution at time $t = 10$ s, $t = 100$ s and $t = 600$ s.

For peer review only



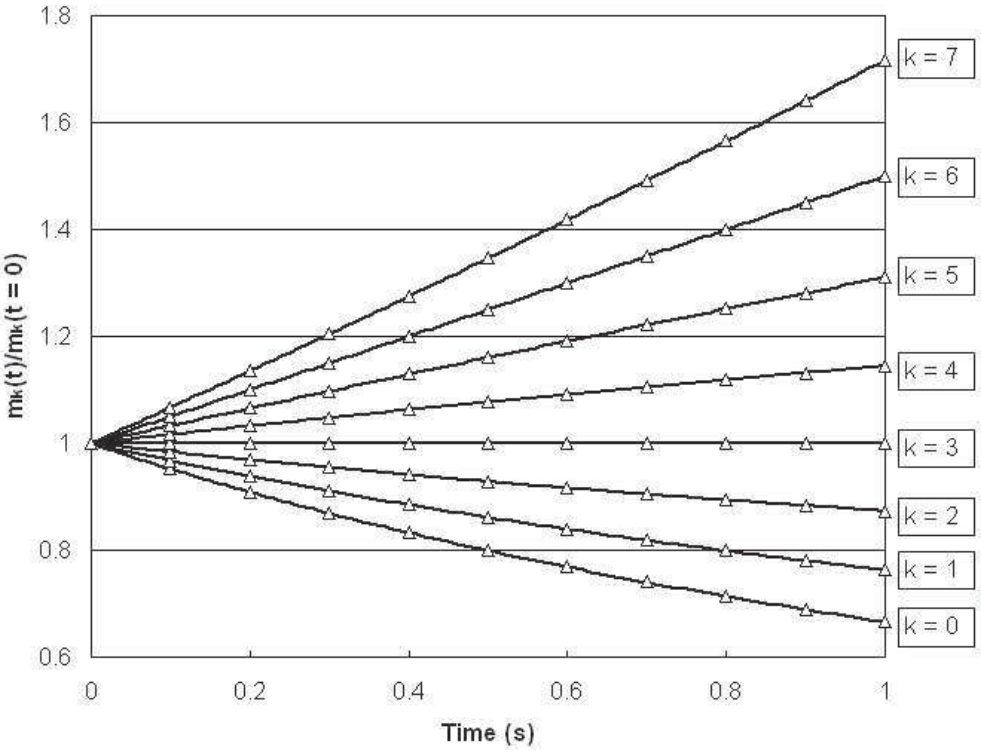
Symbolic representation of cluster shapes. Black and grey particles represent elementary particles belonging to two different phases. These two species are followed by the elementary particle PBE/QMOM systems, while clusters are followed by the cluster PBE/QMOM system.
140x106mm (96 x 96 DPI)

For Review Only



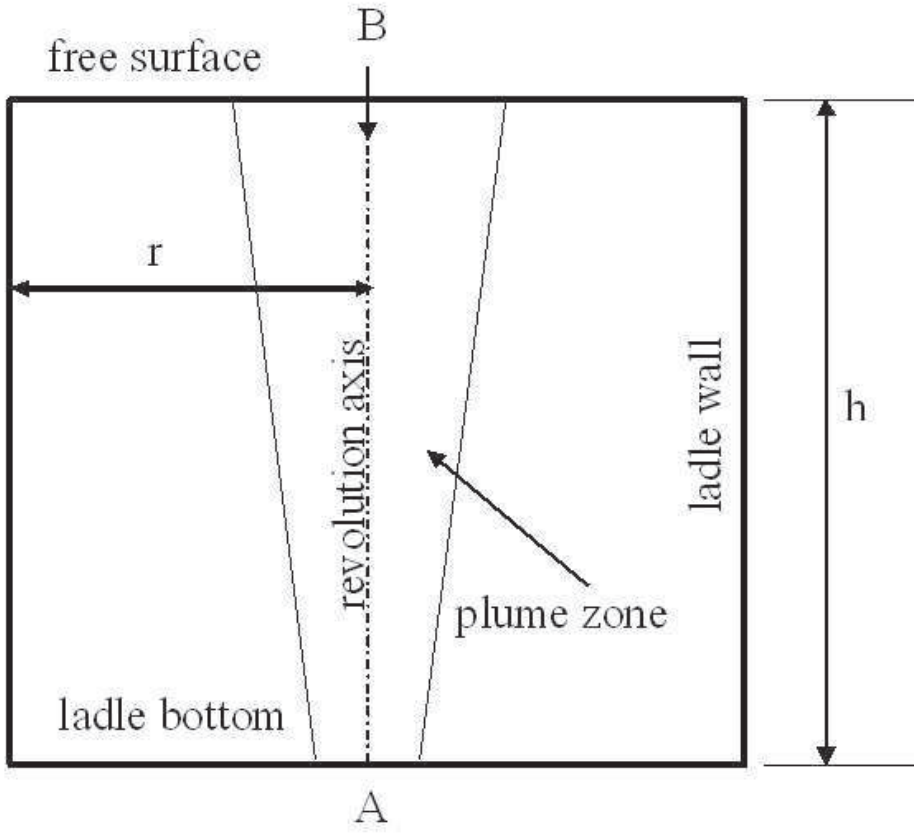
Shape evolution due to cluster growth model (Gaussian initialization, four nodes).
231x113mm (96 x 96 DPI)

For review only



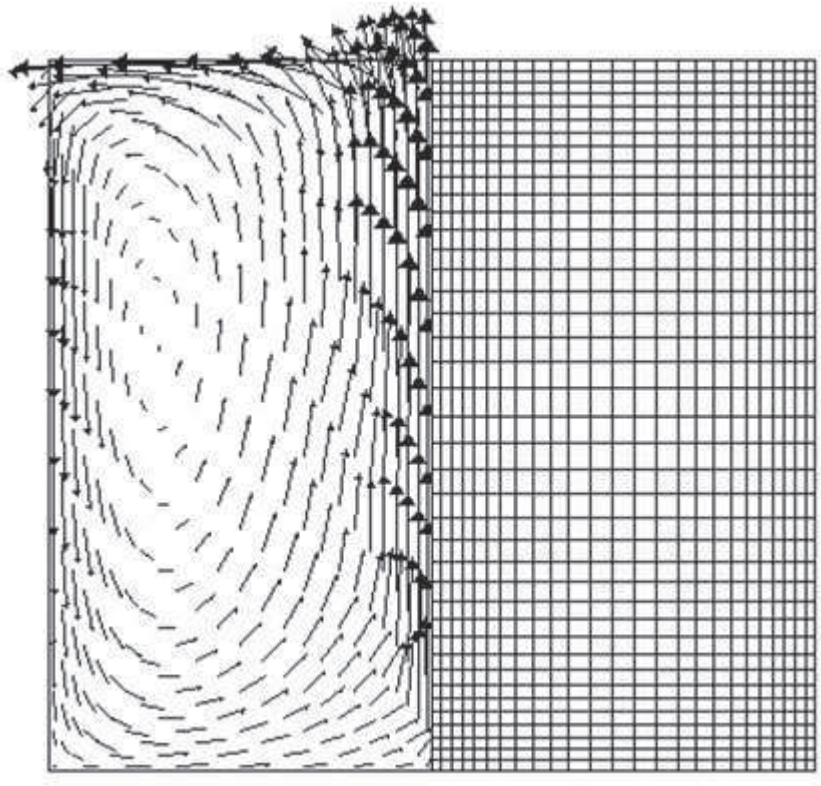
Aggregation validation case: N_0 = 1m^{-3} and β_0 =1 m^{3}s^{-1}. Symbols : analytical solution ; solid lines : numerical solution obtained with four nodes.
178x139mm (96 x 96 DPI)

w only



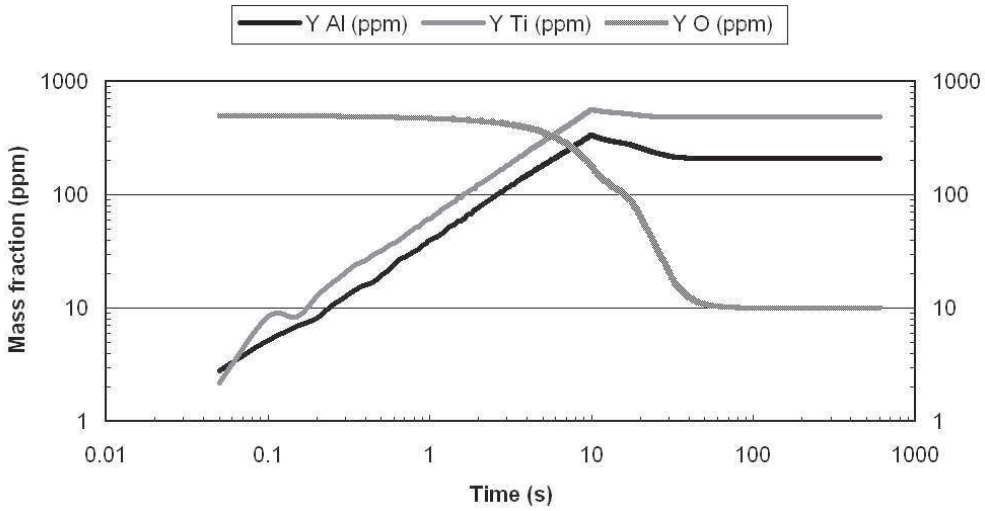
Sketch of the ladle reactor with its axis of revolution. The argon bubbles are injected at the bottom center (A), and the additional elements are introduced through the slag at the top of the ladle (B).
160x137mm (96 x 96 DPI)

only



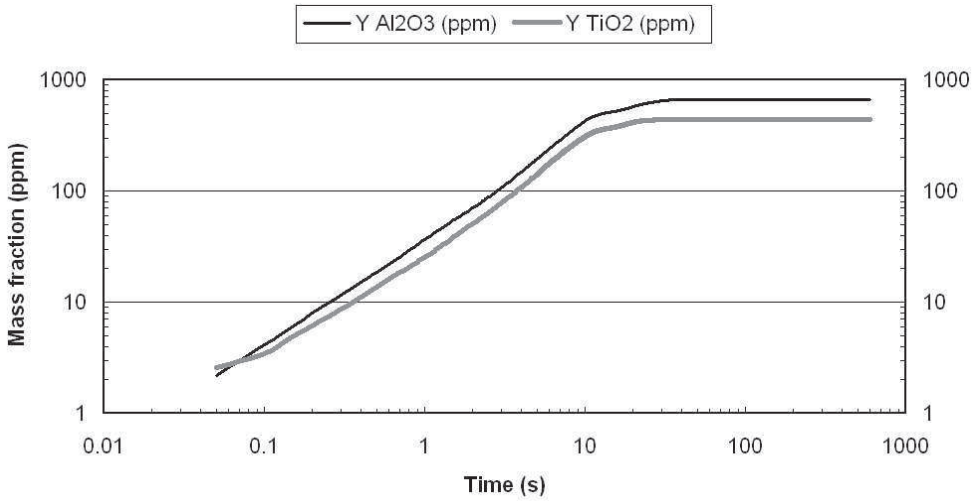
Fluid velocity field (left) and computational grid (right). The maximum velocity is about 1.3 m s^{-1}
112x106mm (96 x 96 DPI)

w only



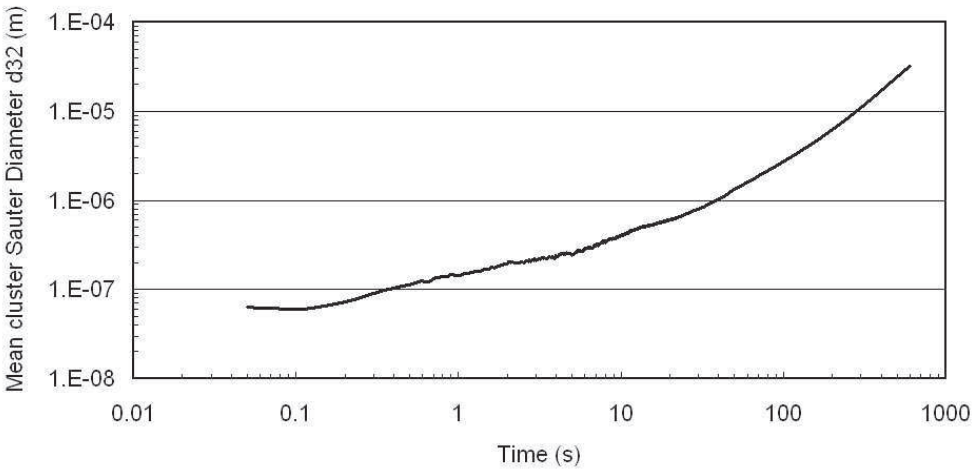
Time evolution of the mass fraction of dissolved elements.
261x136mm (96 x 96 DPI)

For review only



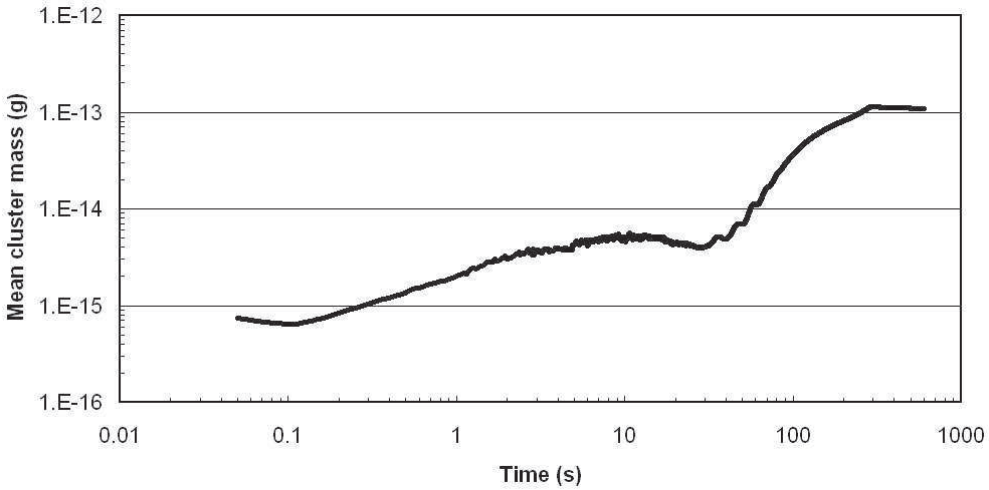
Time evolution of the mass fraction of precipitated oxides.
266x137mm (96 x 96 DPI)

For review only



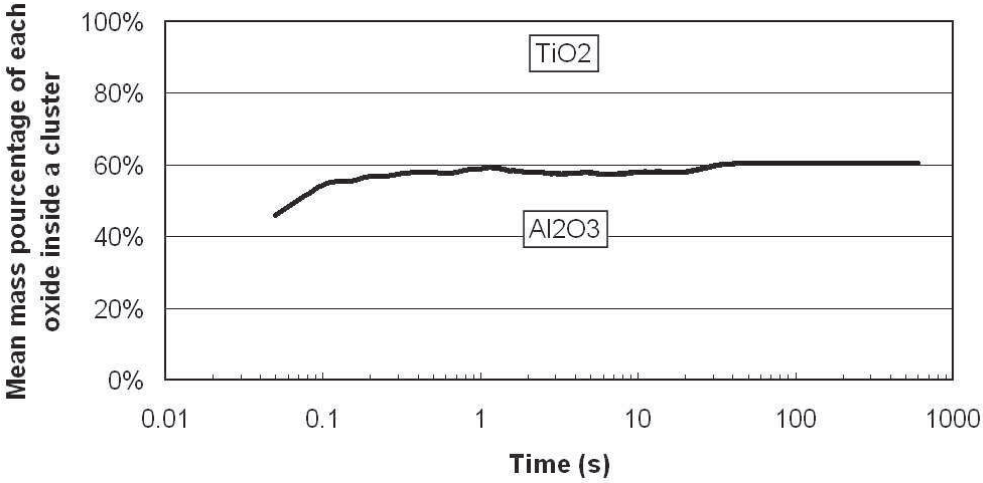
Time evolution of the Sauter mean diameter of clusters.
251x123mm (96 x 96 DPI)

For review only



Time evolution of the mean mass of clusters.
263x137mm (96 x 96 DPI)

For review only



Predicted mass fraction of each oxide inside a cluster.
263x132mm (96 x 96 DPI)

For review only

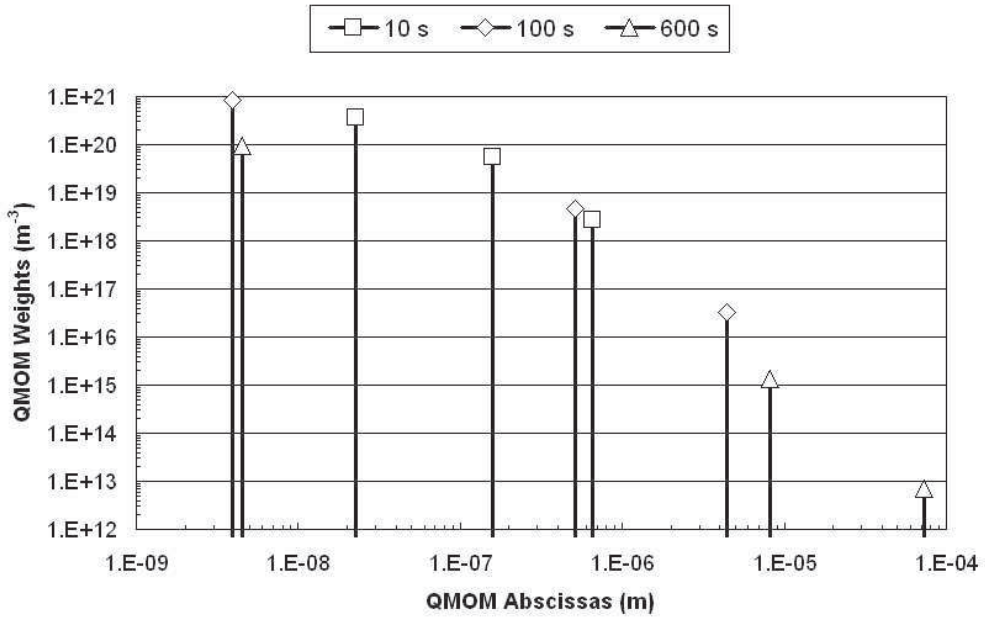


Illustration of the cluster size distribution at time t = 10 s, t = 100 s and t = 600 s
214x137mm (96 x 96 DPI)

For Review Only

Table 1

	Units	Steel
ρ	kg m^{-3}	$7.00 \cdot 10^{3}$
μ	Pa s	$6.2 \cdot 10^{-3}$
D_{Al}	m^{2}s^{-1}	$3.02 \cdot 10^{-9}$
D_{O}	m^{2}s^{-1}	$12.58 \cdot 10^{-9}$
D_{Ti}	m^{2}s^{-1}	$8.3 \cdot 10^{-9}$

For peer review only

Table 2

	Units	Al_2O_3	TiO_2
ρ	kg m^{-3}	$3.990 \cdot 10^3$	$4.250 \cdot 10^3$
ΔG	J	-1 199 869 + 393.212 T	-645 874 + 224.346 T
V_m	m^3 mol^{-1}	$2.5554 \cdot 10^{-5}$	$1.8799 \cdot 10^{-5}$
σ	J m^{-2}	0.1	0.1

For peer review only

Annexe 5 : *Steel Research International*

steel research international

Behavior of oxide inclusions in liquid steel: Multi-QMOM simulation

Journal:	*Steel Research International*
Manuscript ID:	Draft
Wiley - Manuscript type:	Full Paper
Date Submitted by the Author:	n/a
Complete List of Authors:	Claudotte, Laurent; LEMTA, ESSTIN; ArcelorMittal Maizières Research, PE Rimbert, Nicolas; LEMTA, ESSTIN Gardin, Pascal; ArcelorMittal Maizières Research, PE Simonnet, Marie; ArcelorMittal Maizières Research, PE Lehmann, Jean; ArcelorMittal Maizières Research, PE Oesterlé, Benoit; LEMTA, ESSTIN
Keywords:	CFD, Thermodynamics, Population Balance, QMOM, Mettalurgy

scholarONE™ Manuscript Central

To be submitted to Steel Research International

Behavior of oxide inclusions in liquid steel: Multi-QMOM simulation

L. Claudotte[1], N. Rimbert[2], P. Gardin[1], M. Simonnet[1], J. Lehmann[1] and B. Oesterlé[2]
[1] ArcelorMittal Global R & D - Maizières Process, 57283 Maizières-lès-Metz, Cedex, FRANCE
[2] LEMTA, Nancy-University, CNRS, ESSTIN, 54500 Vandœuvre-lès-Nancy, FRANCE

ABSTRACT: The topic of this paper is the study of inclusion properties and behavior inside a ladle containing liquid steel. A numerical tool tracks the size and the composition of inclusions during the oxygen removal and the steel refining. Commercial CFD codes (Fluent™), home-made thermo-kinetics code and population balance model have been associated to follow oxide precipitates. The long term scientific goal of this study consists in proposing actuators to prevent or to eliminate harmful inclusions based on results predicted by the numerical model.

1. INTRODUCTION

Deoxidation occurs at the end of the primary metallurgy when a deoxidizer such as aluminum, titanium or silicon [1] is introduced. This part of the Ultra Low Carbon or ULC – steel grade process produces a significant amount of oxide inclusions with a cluster size range from nanometers to micrometers due to diffusion growth and aggregation [2-4]. For example, the 500 ppm oxygen removal of a 325 tons ladle needs approximately 183 kg of aluminum. The chemical reaction generates at least 345.5 kg of alumina with the following balance equation:

$$2\underline{Al} + 3\underline{O} \rightarrow Al_2O_{3(s)} \quad (1)$$

When only few elements are present in the ladle (Fe-Al-O system) the characterization of the precipitate behavior is well known [5-6] and a thermodynamics code is generally enough to control the ladle chemical equilibrium and oxygen content. But when addition elements are introduced to obtain the desired ULC – steel grade, harmful inclusions appear [7] and a simulation with thermo-kinetics code is necessary to model particle nucleation and particle dissolution. Otherwise, as inclusions are not thermodynamically stable, the thermodynamics code would predict their total disappearance.

This study deals with the prediction of the final quality of the steel. If harmful inclusions are still present at the end of the steelmaking process, defects can be created during future processing operations (rolling or stamping). Their elimination or production limitation is a priority to obtain clean steel.

In the following Part 2, the numerical tool used to predict the inclusion size and composition is described. Then all major physical phenomena implemented for inclusion modeling are presented in Part 3. Results are shown in Part 4 and conclusions are drawn at the end of this article, in Part 5.

2. COUPLING SOLUTION

The oxygen removal simulation and steel refining process depend on three major physical phenomena (fluid motion, thermo-kinetics and population balance), which should be linked to obtain a realistic numerical tool.

2.1 Numerical coupling description

The ladle treatment study is complex due to the number of physical phenomena related to oxygen removal and steel refining. In the calculations, the ladle is first stirred by argon bubbles inducing composition homogenization and turbulence. Then, after introduction of deoxidizers into the melt, chemical reactions and fluid motion produce precipitations, diffusion growth and agglomeration. Finally inclusions are extracted from the melting bath by slag entrapment, wall adherence or bubble capture. The inclusion extraction is not developed in the present article.

For Peer Review

2.2 Fluid motion

The melting bath is stirred by an inert gas (argon) and the slag layer is replaced by a null shear stress condition. The 2D axisymmetric geometry of the simulated ladle (*Fig.* 1) has a height equal to 3.7 meters and a radius of 2 meters and no thermal variation are considered.

The fluid motion (*Fig.* 2) is produced by argon bubble injection at the ladle bottom centre with a flow rate of Q = 300 Nl/min.

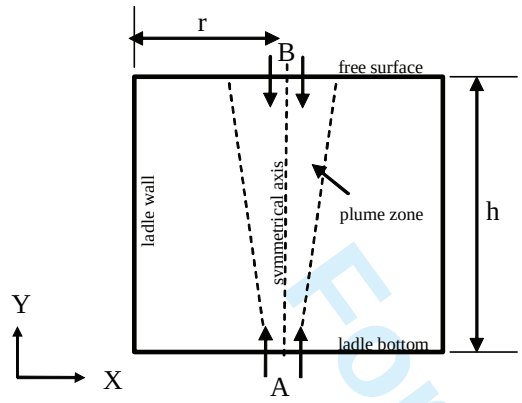


Fig. 1: The geometry represents a piecewise of the ladle reactor with its axis of revolution. The argon bubbles are injected at the centre of the bottom in A and the addition elements are introduced through the slag at the top of the ladle in B.

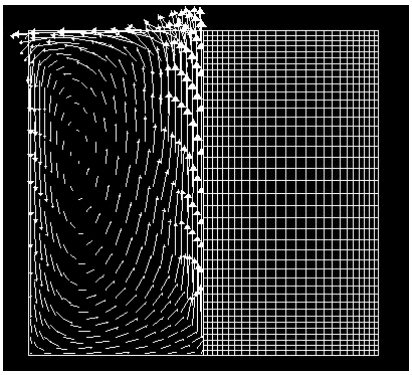


Fig. 2: 2D Axisymmetric Fluid velocity (m/s) with a wall-refined orthogonal mesh of 25 by 40 cells. The top of the ladle is considered as a free surface. The maximum ascending velocity is about V_{max} = 1.3 m/s.

Turbulent predictions for the continuous phase are computed with realizable k-ε turbulent model. Argon bubbles and addition elements are tracked by the Lagrangian Discrete Phase Model implemented in Fluent™ [8].

As soon as the fluid flow is considered in steady state, it is numerically frozen and injection of elements begins at the ladle top centre. Particles are injected during 10 s and it has been assumed than after 1 s, particles melt inside the liquid steel [9].

2.3 Thermo-kinetics

The thermo-kinetics home-made code MIPPHASOLACIDO is based on the minimization of the Gibbs free energy [10]:

$$\Delta G^{*} = \left(16\pi\sigma^{3}\right)/\left(3\Delta G_{v}^{2}\right) \qquad (2)$$

where σ is the interfacial energy and ΔG_v is obtained with:

$$\Delta G_{v} = I.(\sum_{i,j} C_{ij} X_{i}) / V_{oxide} \qquad (3)$$

where I is the driving force of precipitation, C_{ij} the number of atoms of component j in the oxide i , X_i the mole fraction and V_{oxide} the molar volume of oxide.

The composition of the critical nuclei is calculated by minimizing I. The driving force of nucleation and diffusion growth is calculated for all phases under interest as:

$$I = RT \ln\left(\frac{\left(a_{\underline{E}}\right)^{x}.\left(a_{\underline{O}}\right)^{y}}{K_{E_xO_y}.a_{E_xO_y}}\right)^{\frac{1}{x+y}} \qquad (4)$$

where R is the ideal gas constant, T the temperature, $a_{\underline{E}}$ and $a_{\underline{O}}$ are respectively the activities of element E and of oxygen referred to the 1% dilute solution, $a_{E_xO_y}$ is the activity of E_xO_y in the oxide, K_{ExOy} the solubility product of E_xO_y in liquid metal and x and y are the stoichiometric coefficients.

For Peer Review

2.4 Population Balance Equation

The population balance is a continuity statement based on the number density function. The time evolution of the Particle Size Distribution (PSD) can be described by the following Population Balance Equation (PBE) written in particle size L [11-12]:

$$\frac{\partial n(L)}{\partial t}+\langle u_i\rangle\frac{\partial n(L)}{\partial x_i}-\frac{\partial}{\partial x_i}\left[\Gamma_t\frac{\partial n(L)}{\partial x_i}\right]=-\frac{\partial}{\partial L}\left[G(L)n(L)\right]+h(L) \quad (5)$$

where $n(L)$ is the number density function, $\langle u_i\rangle$ the Reynolds-averaged velocity in the i-th direction, x_i the spatial coordinate in the i-th direction, Γ_t the turbulent diffusivity, $G(L)$ the diffusion growth rate, and $h(L)$ represents the net rate of introduction of new particles into the system [13].

New particles of size L are introduced due to three mechanisms:

$$h(L)=J(L)+B(L)-D(L) \quad (6)$$

where $J(L)$ is the nucleation rate, $B(L)$ and $D(L)$ are respectively the rate of birth and death due to particle aggregation.

2.4.1 Quadrature Method Of Moments

The Quadrature Method Of Moments (QMOM) is based on the integral approximation of the moment construction with a Gaussian quadrature:

$$m_k=\int_0^{+\infty}n(L)L^k dL\approx\sum_{i=0}^{N_q}w_iL_i^k \quad (7)$$

where m_k is the vector of moments, k is the moment order, w_i and L_i are respectively weights and abscissas of the QMOM and N_q the number of nodes. It has been developed by R. McGraw [14] as a new closure method to solve the PBE and more recently, D. L. Marchisio *et al.* [11,15] validated this method for nucleation, crystal growth and aggregation phenomena.

The PBE rewritten with QMOM approximation in particle length coordinates gives:

$$\frac{Dm_k}{Dt}=JL_0^k+k\sum_{i=1}^{N_q}G(L_i)L_i^{k-1}w_i+\frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N_q}w_i\sum_{j=1}^{N_q}w_j\left[\left(L_i^3+L_j^3\right)^{k/3}-L_i^k-L_j^k\right]\beta_{ij} \quad (8)$$

This method tracks low-ordered moments and uses Gordon's Product-Difference algorithm [16] to obtain weights and abscissas of the corresponding size population.

2.4.2 Multi-QMOM

The Multi-QMOM model has been developed to go beyond the QMOM model [17], which is limited to one internal coordinate. Instead of tracking all inclusions with one QMOM, each precipitate is tracked with its own QMOM and an additional QMOM is dedicated to cluster formation and evolution.

Thus the QMOM dedicated for elementary particles evolves only by nucleation and diffusion growth whereas the additional QMOM tracking the cluster evolution can also evolve due to aggregation. Chemical composition is only associated to elementary particle QMOM equation.

The PBE/QMOM systems are written as follows:

- Elementary particle QMOM:

$$\frac{Dm_{k,p}}{Dt}=J_pL_{0,p}^k+k\sum_{i=1}^{N_q}G_p\left(L_{i,p}\right)L_{i,p}^{k-1}w_{i,p} \quad (9)$$

- Cluster QMOM:

$$\frac{Dm_{k,c}}{Dt} = \sum_{p=1}^{N_p} J_p L_{0,p}^k + k \sum_{i=1}^{N_q} G_c(L_{i,c}) L_{i,c}^{k-1} w_{i,c} + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{N_q} w_{i,c} \sum_{j=1}^{N_q} w_{j,c} \left[\left(L_{i,c}^3 + L_{j,c}^3 \right)^{k/3} - L_{i,c}^k - L_{j,c}^k \right] \beta_{ij} \quad (10)$$

where N_p is the number of inclusion types and β_{ij} is the aggregation rate ($m^{-3}s^{-1}$).

The thermo-kinetics code gives directly the growth rate $G_p(L_i)$ of elementary particles whereas the cluster growth rate $G_c(L_i)$ is calculated to ensure volume conservation.

2.4.3 Composition and size reconstruction

QMOM moments have a physical meaning. For 1 m^3, m_0 is the number of particles, $k_l m_1$ is the cumulated particle length, $k_s m_2$ is the cumulated particle surface, $k_v m_3$ is the cumulated particle volume where k_l, k_s and k_v are respectively length, surface and volume factor. For a spherical particle shape, these factors are equal to $k_l = \pi$, $k_s = \pi/2$ and $k_v = \pi/6$. By neglecting these shape factors, the Sauter mean diameter d_{32} and the number-volume mean diameter d_{30} can be obtained for a cell i:

$$d_{32} = \frac{m_3}{m_2} \text{ and } d_{30} = \sqrt[3]{\frac{m_3}{m_0}} \quad (11\text{-}12)$$

The mean Sauter diameter defines the diameter of a sphere that has the same volume/surface ratio as the global cloud of particles. It can be applied to either cluster diameter $d_{32,c}$ or elementary particle diameter $d_{32,p}$.

Volume conservation implies that the global precipitate volume is equal to the total cluster volume. This yields the following relationship between all 3rd moments for a cell i:

$$m_{3,c_i} = \sum_{p=1}^{N_p} m_{3,p_i} \quad (13)$$

where N_p is the number of precipitates.

The p^{th} oxide volumetric percentage $\phi_{v,p}$ inside a cluster does not depend on the cluster size because all collisions are considered identical and oxide densities are similar (*Tab.* 2). Thus, they can be evaluated for a cell i as follows:

$$\phi_{v,p_i} = \frac{m_{3,p_i}}{m_{3,c_i}} \quad (14)$$

Finally the mass average in kg of a cluster for a cell i is obtained as:

$$m_{cluter_i} = \sum_{p=1}^{N_p} \phi_{v,p} \rho_p k_v \left(d_{30,c_i} \right)^3 \quad (15)$$

where ρ_p is the precipitate density.

Even if we use (N_p+1) PBE/QMOM systems to predict the size and the composition of clusters, only (N_q(N_p+1)) moments are tracked.

3. PHYSICAL PHENOMENA IMPLEMENTED FOR INCLUSION MODELLING

The present model simulates nucleation, diffusion growth and aggregation. The nucleation rate and diffusion growth rate are computed by the thermo-kinetic code whereas aggregation calculation is transferred to Multi-QMOM.

3.1 Nucleation

The rate of homogeneous nucleation of inclusions, expressed in particles per unit volume and unit time, is given by:

$$J_p = Z.\beta_n.N_s.exp\left(-\frac{\Delta G^*}{k_B T} \right) \quad (16)$$

where Z is the Zeldovitch factor, β_n a frequency factor, N_s the number of nucleation sites per unit volume and k_B the Boltzmann constant.

For Peer Review

With a spherical nucleation hypothesis, the diameter of new nuclei is calculated according to the classical nucleation theory as:

$$L_{0,p} = -4\sigma/\Delta G_v \tag{17}$$

Equation (17) links the nuclei diameter to the driving force of precipitation. When the driving force decreases the nucleation diameter increases. Consequently, at the end of the process, the nuclei become larger because the driving precipitation force decreases.

3.2 Growth

When interfacial kinetics is not a limitation factor for growth rate, the diffusion flux at surface for an inclusion p of size L_i is obtained as follows:

$$\Phi_p(L_i) = k(L_i)\left(C_p^{(l)} - C_p^{(i)}\right) \tag{18}$$

where $C_p^{(l)}$ and $C_p^{(i)}$ are, respectively, the concentrations in mol.m^{-3} in liquid steel far from the precipitate and the interfacial concentration (when the growth is controlled by diffusion, $C_p^{(i)}$ is equal to the equilibrium concentration). $k(L_i)$ is the mass transfer coefficient. In the present case, due to the size of the precipitates, the mass transfer coefficient is assumed to be:

$$k(L_i) = \frac{D_p}{L_i/2} \tag{19}$$

where D_p is the diffusion coefficient of the element p and L_i the diameter of the precipitate.

The diffusion growth rate is finally calculated:

$$G_p(L_i) = \Phi_p(L_i) V_{oxide} \tag{20}$$

where V_{oxide} is the oxide mole volume in m^3/mol.

3.3 Aggregation

The aggregation mechanism is classically assumed to be a second-order rate process, in which the rate of collision is proportional to the product of concentrations of the two colliding species [18]. Thanks to dilution, the collision between three bodies or more are neglected. Moreover when the collision time is short (here collisions are assumed to be instantaneous), a three-body collision can be considered as a succession of two-body collisions.

Three collision kernels and one collision efficiency are used. Kernels can be classified according to their range of influence:

- Brownian collisions

$$\beta_{Br}(L_i, L_j) = \frac{2k_B T}{3\mu}\frac{(L_i + L_j)^2}{L_i L_j} \tag{21}$$

where L_i and L_j are particle diameters, μ is the fluid viscosity, ε the turbulent dissipation rate and ν the fluid kinematic viscosity.

- Turbulent collisions

Zaichik et *al.* [19] have developed a turbulent model to calculate the collision rates of bidisperse inertial particles in isotropic turbulence:

$$\beta_{Turb}(L_i, L_j) = (8\pi)^{1/2}(L_i + L_j)^2 u' \left[f_{u,i} + f_{u,j} - 2 f_{u,i} f_{u,j}\left(1 - \frac{\left((L_i + L_j)/\eta\right)^2}{60^{1/2}\,\mathrm{Re}_\lambda}\right)\right]^{1/2} \tag{22}$$

where $u' \approx \sqrt{2k/3}$ is the fluid r.m.s. velocity, $\mathrm{Re}_\lambda \equiv \left(15u'^4/\varepsilon\nu\right)^{1/2}$ is the Reynolds number based

For Peer Review

on the Taylor length scale and $\eta = \left(\nu^3/\varepsilon\right)^{1/4}$ is the Kolmogorov length scale. The $f_{u,i}$ are the response coefficients, as defined in [20], of the particle *i* to the fluctuation of the fluid velocity. It is related to the correlation between the statistics of the carrier phase and the dispersed phase. In [19] the value of this coefficient is obtained through a bi-exponential approximation to the Lagrangian auto-correlation function of the fluid velocity.

By studying equation (22), it can be shown that, when the response coefficients are equal to one (i.e. the two colliding particles are perfectly following the carrier fluid flow), the Saffman & Turner formulation [21] is recovered :

$$\beta_{Turb}\left(L_i, L_j\right) = \sqrt{\frac{8\pi}{15}}\sqrt{\frac{\varepsilon}{\nu}}\left(L_i + L_j\right)^3 \tag{23}$$

And when. the response coefficients are close to zero and the turbulent collision kernel of Abrahamson [22] is found (i.e. the particles are in the inertial part of the turbulence cascade, there is no longer any correlation between the flow and the particle collision):

$$\beta_{Turb}\left(L_i, L_j\right) = \left(8\pi\right)^{1/2}\left(L_i + L_j\right)^2\left(v_i'^2 + v_j'^2\right)^{1/2} \tag{24}$$

where *v'* is the fluctuating velocity of particles.

- Stokes collisions

The Stokes collision kernel takes into account the difference of settling, or more exactly in our case, of rising velocity between small and large inclusions. It is given by:

$$\beta_{St}\left(L_i, L_j\right) = \frac{2\pi g\left(\rho - \rho_c\right)}{9\mu}\left|L_i^2 - L_j^2\right|\left(L_i + L_j\right)^2 \tag{25}$$

where ρ and ρ_p are respectively the fluid density and the estimated cluster density.

- Collision efficiency

Higashitani et al. [23] introduced a collision efficiency factor $\alpha\left(L_i, L_j\right)$, defined as the probability that two agglomerates stick together when they collide. This collision efficiency has initially been developed to calculate turbulent kernel in viscous domain (23). We have decided to apply similarly the collision efficiency to generic turbulent kernel (22). This coefficient is multiplied by the turbulent collision kernel to obtain a turbulent collision rate that takes into account the Van der Waals force and the lubrication forces needed to eliminate the liquid film between two colliding particles [24-25] :

$$\alpha\left(L_i, L_j\right) = 0.8H^{0.18}\left(36\pi\mu\dot{\gamma}\left(\frac{L_i + L_j}{2}\right)^3\right)^{-0.18} \tag{26}$$

where H is Hamaker constant. Its value is unknown for mixed oxides but a value of 2.3 10^{-20} J is referenced for pure alumina in liquid steel at 1873 K [26].

For turbulent flows, the strain rate is given by :

$$\dot{\gamma}^{Turb} = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\nu}} \tag{27}$$

The collision efficiency factor (26) has also been extended to be used with the Stokes kernel. In that case, the associated strain rate is related to the difference of terminal rising velocity by:

$$\dot{\gamma}^{St} = \frac{2g}{9\mu_F}\left|\rho_L - \rho_p\right|\left|L_i - L_j\right| \tag{28}$$

For Peer Review

Finally the aggregation kernel implemented is the sum of these three kernels:

$$\beta_{ij} = \beta_{ij}^{Br} + \alpha_{ij}^{Turb}\beta_{ij}^{Turb} + \alpha_{ij}^{St}\beta_{ij}^{St} \quad (29)$$

4. RESULTS AND DISCUSSION

The simulation has been performed for the system (Fe-Al-Ti-O) with a 2D axisymmetric mesh on two quad-core bi-processors Intel Xeon computers. The first core is dedicated to the fluid flow computation while the other computes the chemical equilibria. Only two kinds of precipitates have been tested by the thermo-kinetic code: alumina (Al_2O_3) and rutile (TiO_2). Tab. 1 and Tab. 2 present the physical and chemical properties of the steel and oxides used with the thermo-kinetic code [10].

	Steel	O	Al	Ti
ρ (kg/m^3)	7 000		2 700	4 500
μ (kg/m/s)	$6{,}2\cdot10^{-3}$			
D (m^2/s)		$12{,}58\cdot10^{-9}$	$3{,}02\cdot10^{-9}$	$8{,}3\cdot10^{-9}$

Tab. 1: Physical properties of the liquid steel

	Al_2O_3	TiO_2
ρ (kg/m^3)	3 990	4 250
ΔG (J)	-1 199 869 + 393,212 T	-645 874 + 224,346 T
V_m (m^3/mol)	$2{,}5554\cdot10^{5}$	$1{,}8799\cdot10^{5}$
σ (J/m^2)	0,1	0,1
Equilibrium equation	$2\underline{Al} + 3\underline{O} \rightarrow Al_2O_{3(s)}$	$\underline{Ti} + 2\underline{O} \rightarrow TiO_{2(s)}$

Tab. 2: Physical and chemical properties of non metallic oxides inclusions

In the following plots, at time t = 0 s, the addition elements (injected at the same time) start melting and after 10 s all the injected particles are assumed to be fully dissolved into the liquid steel.

Mass fractions of elements and precipitates are tracked by the CFD code as passive scalars on a pre-computed steady fluid flow. Figs. 3 and 4 show the gradually dissolved oxygen removal by precipitation with aluminum and titanium to form alumina and titanium oxide.

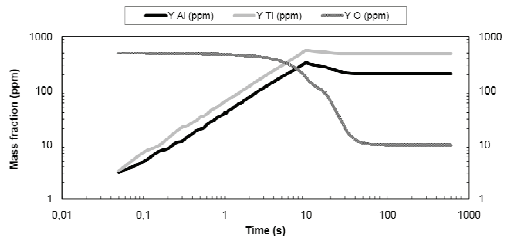


Fig. 3: Total mass fraction of dissolved element

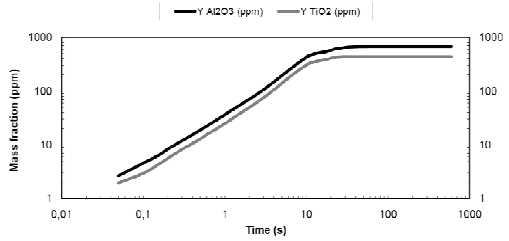


Fig. 4: Total mass fraction of precipitates

Two different behaviors are observed during the ladle treatment (Figs. 3 and 4):

- Before 10 s, addition elements melt in the liquid steel and react directly with the present dissolved oxygen.
- After 10 s, oxygen removal is limited by aluminum and titanium transport and diffusion in the entire ladle.

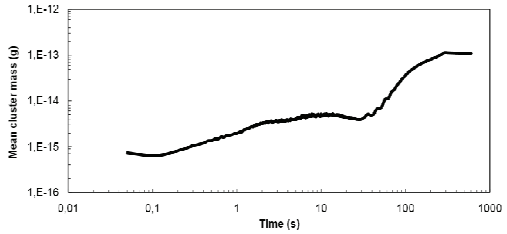


Fig. 5: Mean cluster mass

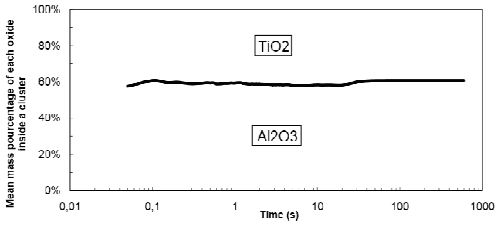


Fig. 6: Estimated mean mass percentage of each oxide inside cluster

At 60 s of treatment (Fig. 3), all dissolved oxygen has been removed by precipitation and the dissolved oxygen has reached its chemical equilibrium value. Clusters are then composed of 3/5 of alumina and 2/5 of rutile (Fig. 6). After this time, there is no more significant precipitation that could change cluster composition. Aluminum and titanium are injected in the same way and at the same time, but their densities are different enough to transport spherical particles in different area of the ladle (though their oxides have nearly the same density). This segregation effect enables dissolved oxygen to be consumed by only one element (Al or Ti). Otherwise, when aluminum and titanium are in competition for oxygen, alumina precipitation is largely preponderant.

The cluster distribution enlarges with the time (Figs. 5, 7 and 8) due to the production of very large inclusions (~ 100 μm) after 600 s of treatment. Because inclusions are kept inside the melt without any extraction possibility and since no break-up kernel has been used, the inclusion size can only increase. In fact, we consider that agglomerates have a strong cohesion in this case [24], this may not happen in industrial configuration where most large inclusions reach the slag.

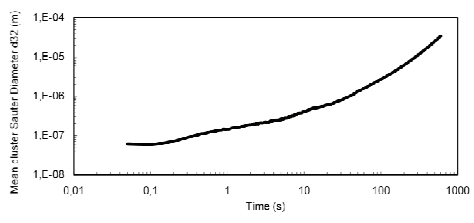


Fig. 7: Cluster Sauter Mean Diameter

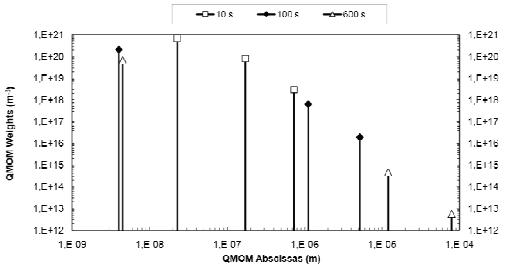


Fig. 8: Cluster Particle Size Distribution at different time

Compared to the existing model [17], we have implemented in this paper a new

turbulent kernel that extended Saffman-Turner model [21] to collision rates of bidisperse inertial particles in isotropic turbulence [19]. This modification is important since it modifies the PSD at 100 s and 600 s by producing larger clusters.

5. CONCLUSION

The cluster size and composition of a classic ULC grade (Fe-Al-Ti-O) steel was studied thanks to a new QMOM model. The Multi-QMOM allows the reconstruction of the cluster composition and the PSD resolution of the entire cluster population precipitated inside the steel ladle.

The model limitation is the computational cost and efforts will be devoted in the future to the code parallelization. Moreover, the numerical tool must be completed with an extraction model.

The next step will be a full 3D ladle modeling to study the production of harmful inclusion like titanate aluminum.

6. ACKNOWLEDGEMENT

This project is supported by the “Association Nationale de la Recherche Technique” (ANRT-France: Grant n°1064/2006).

7. REFERENCES

[1] Lange, K. W.: “Thermodynamic and kinetic aspects of secondary steelmaking processes”, *International Materials Reviews* (1988), **33**(2), 53-89.

[2] Doo, W.C., Kim, D.Y., Kang, S.C. and Yi, K.W.: “Measurement of the 2-dimensional fractal dimensions of alumina clusters formed in an ultra low carbon steel melt during RH process”, *ISIJ International* (2007), **47**(7), 1070-1072.

[3] Wakoh, M. and Sano, N.: “Behavior of alumina inclusions just after deoxidation”, *ISIJ International* (2007), **47**(5), 627-632.

[4] Zhang, L., and Thomas, B. G.: “State of the art in evaluation and control of steel cleanliness”, *ISIJ International* (2003), **43**(3), 271-291.

[5] Miki, Y and Thomas, B. G.: “Modeling of inclusion removal in a tundish”, *Metallurgical and Materials Transactions B* (1999), **30B**, 639-654.

[6] Ooi, H., Sekine, T. and Kasai G.: “On the mechanisms of alumina cluster formation in molten iron”, *Transactions ISIJ* (1975), **15**, 371-379.

[7] Ruby-Meyer, F., Lehmann, J. and Gaye, H.: “Thermodynamic analysis of inclusions in Ti-deoxidised steels”, *Scandinavian Journal of Metallurgy* (2000), **29**, 206-212.

[8] Fluent Inc.: “*FLUENT 6.3 User’s Guide*”, Lebanon, NH: Fluent Inc (2006).

[9] Gardin, P., Domgin, J.-F., Simonnet, M., Lehmann, J.: “Modeling of inclusion evolution in a steel ladle”, *La Revue de Métallurgie – CIT* (February 2008), 84-91.

[10] Lehmann, J., Rocabois, P., Gaye, H.: “Kinetic model of non metallic inclusions precipitation during steel solidification”, *Journal of Non-Crystalline Solids* (2001), **282**, 61-71.

[11] Marchisio, D.L., Pikturna, J.T., Fox, R.O., Vigil, D.R., and Barresi, A.A.: “Quadrature method of moments for population-balance equations”, *AIChE Journal* (2003), **49**(5), 1266-1276.

[12] Ramkrishna, D.: “*Population balances: theory and applications to particulate systems in engineering*”, London Academic Press (2000).

[13] Hulburt, H.M., and Katz, S.: “Some problems in particle technology”, *Chemical Engineering Science* (1964), **19**, 555-574.

[14] McGraw, R.: “Description of aerosol dynamics by the quadrature method of moments”, *Aerosol Science and Technology* (1997), **27**(2), 255-265.

For Peer Review

[15] Marchisio, D.L., Vigil, R.D., and Fox, R.O.: "Quadrature method of moments for aggregation-breakage processes", *Journal of Colloid and Interface Science* (2003), **258**(2), 322-334.

[16] Gordon, R.G.: "Error bounds in equilibrium statistical mechanics", *Journal of Mathematical physics* (1968), **9**(5), 655-663.

[17] Claudotte L., Rimbert N., Gardin P., Simonnet M., Lehmann J. and Oesterlé B.: "A multi-QMOM framework to describe multi-component agglomerates in liquid steel", accepted for pulblication in *AIChE Journal* (2009).

[18] Elimelech, M., Gregory, J., Jia, X. and Williams, R.: "*Particle deposition & aggregation: measurement, modelling and simulation*", Colloid and Surface Engineering Series, Butterworth-Heinemann (1995).

[19] Zaichik L.I., Simonin O. and Alipchenkov V.M.: "Collision rates of bidisperse inertial particles in isotropic turbulence", *Physics of Fluids* (2006), **18**, 1-13.

[20] Zaichik L.I., Simonin O. and Alipchenkov V.M.: "Two statistical models for predicting collision rates of inertial particles in homogeneous isotropic turbulence", *Physics of Fluids* (2003), **15**(10), 2995-3005.

[21] Saffman P.G., and Turner J.S.: "On the collision of drops in turbulent clouds", *Journal of Fluid Mechanics* (1956), **1**, 16-30.

[22] Abrahamson J.: "Collision rates of small particles in a vigorously turbulent clouds", *Journal of Fluid Mechanics* (1975), **30**(11), 1371-1379.

[23] Higashitani K., Yamauchi K., Matsuno Y., and Hosokawa G.: "Turbulent coagulation of particles dispersed in a viscous fluid", *Journal of Chemical Engineering of Japan* (1983), **16**, 299-304.

[24] Cournil, M., Gruy, F., Gardin, P., Saint-Raymond, H.: "Modelling of solid particle aggregation dynamics in non-wetting liquid medium", *Chemical Engineering and Process* (2006), **45**, 586-597.

[25] Vanni, M. & Baldi, G.: "Coagulation efficiency of colloidal particles in shear flow", *Advances in Colloid and Interface Science* (2002), **97**, 151-177.

[26] Taniguchi S., Kikuchi A., Ise T. and Shoji N.: "Model experimental on the coagulation of inclusion particles in liquid steel", *ISIJ International* (1996), **36**, Supplement, S117-S120.

For Peer Review

Tab. 1

	Steel	O	Al	Ti
ρ (kg/m^3)	7 000		2 700	4 500
μ (kg/m/s)	$6{,}2 \cdot 10^{-3}$			
D (m^2/s)		$12{,}58 \cdot 10^{-9}$	$3{,}02 \cdot 10^{-9}$	$8{,}3 \cdot 10^{-9}$

Tab. 1: Physical properties of the liquid steel

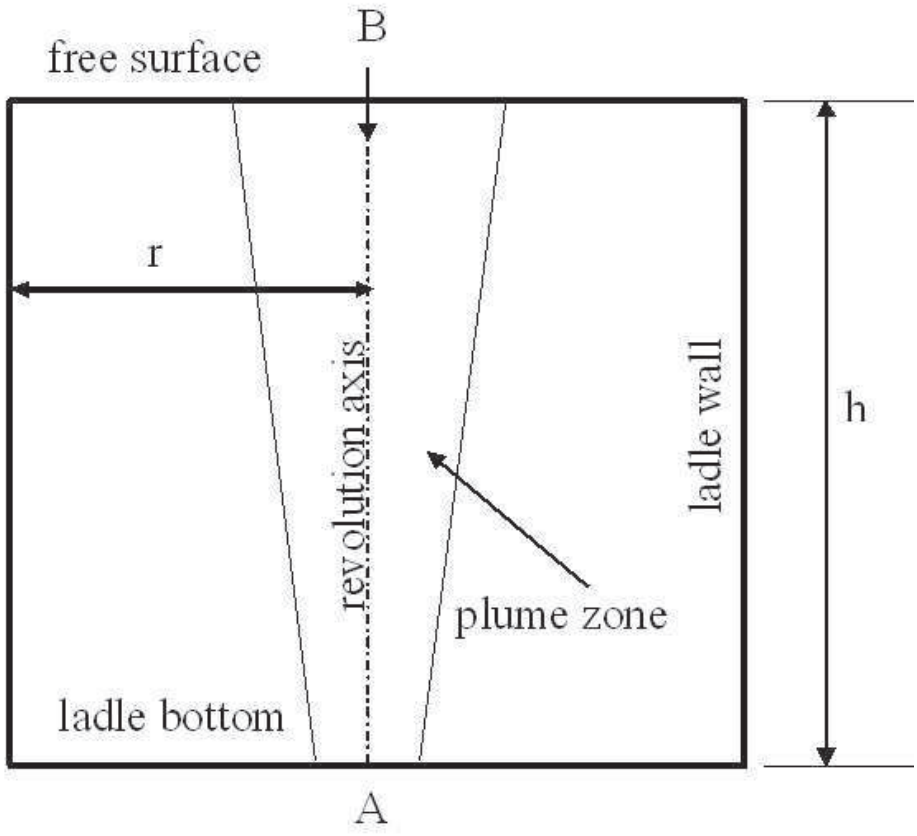
For Peer Review

Table 2

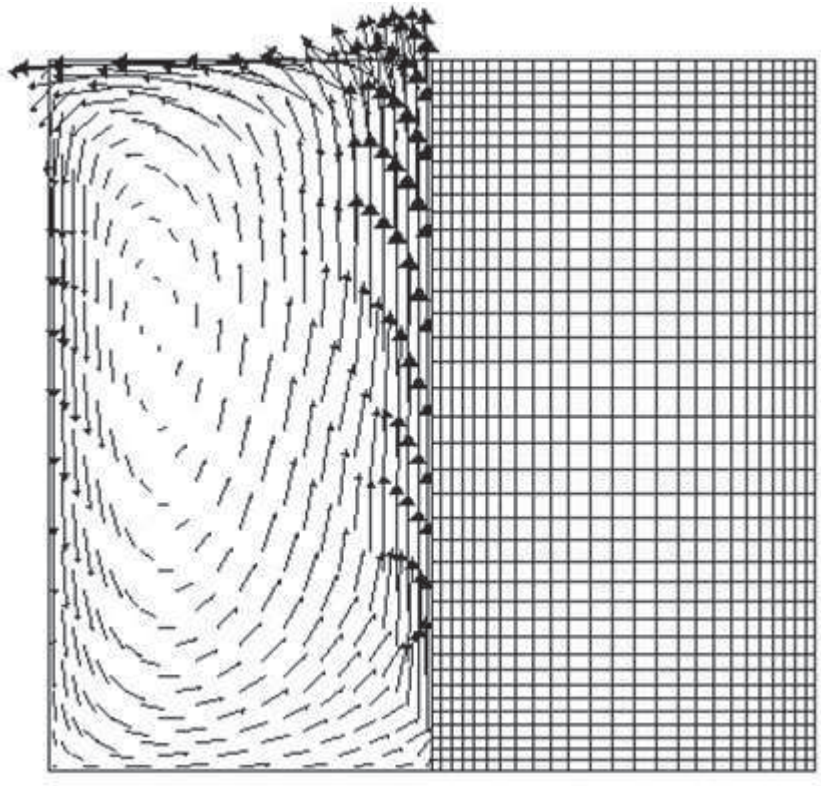
	Al_2O_3	TiO_2
ρ (kg/m^3)	3 990	4 250
ΔG (J)	-1 199 869 + 393,212 T	-645 874 + 224,346 T
V_m (m^3/mol)	$2{,}5554 \cdot 10^5$	$1{,}8799 \cdot 10^5$
σ (J/m^2)	0,1	0,1
Equilibrium equation	$2\underline{Al} + 3\underline{O} \rightarrow Al_2O_{3(s)}$	$\underline{Ti} + 2\underline{O} \rightarrow TiO_{2(s)}$

Tab. 2: Physical and chemical properties of non metallic oxides inclusions

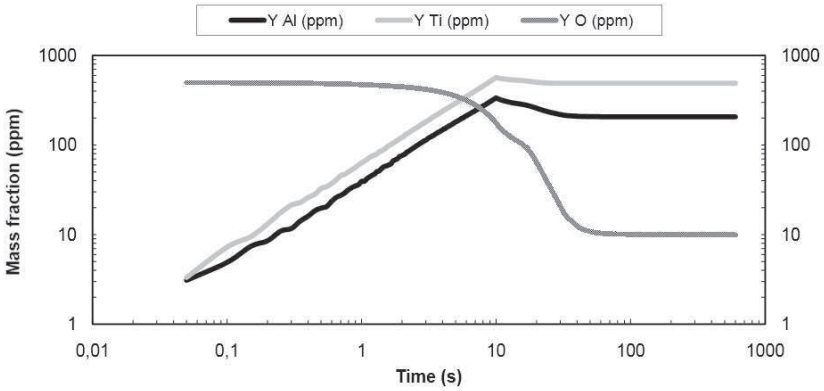
For Peer Review



The geometry represents a piecewise of the ladle reactor with its axis of revolution. The argon bubbles are injected at the centre of the bottom in A and the addition elements are introduced through the slag at the top of the ladle in B.
160x137mm (96 x 96 DPI)

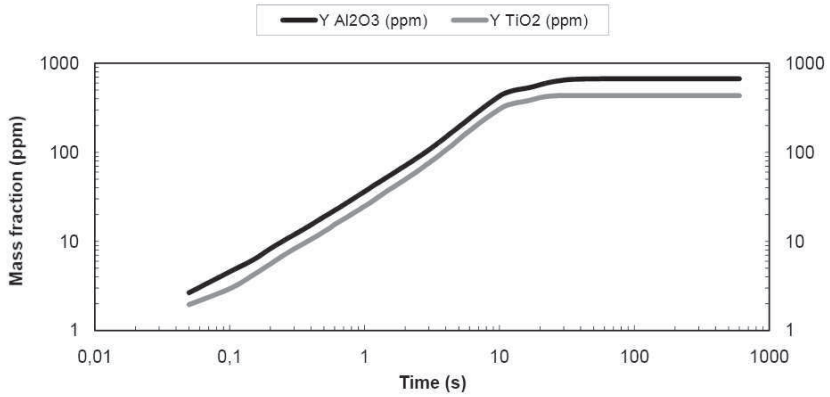


2D Axisymmetric Fluid velocity (m/s) with a wall-refined orthogonal mesh of 25 by 40 cells. The top of the ladle is considered as a free surface. The maximum ascending velocity is about Vmax = 1.3 m/s.
112x106mm (96 x 96 DPI)



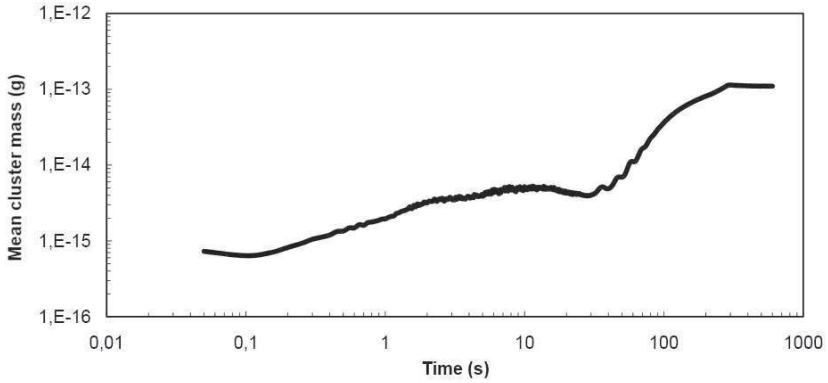
Total mass fraction of dissolved element.
296x209mm (96 x 96 DPI)

Review



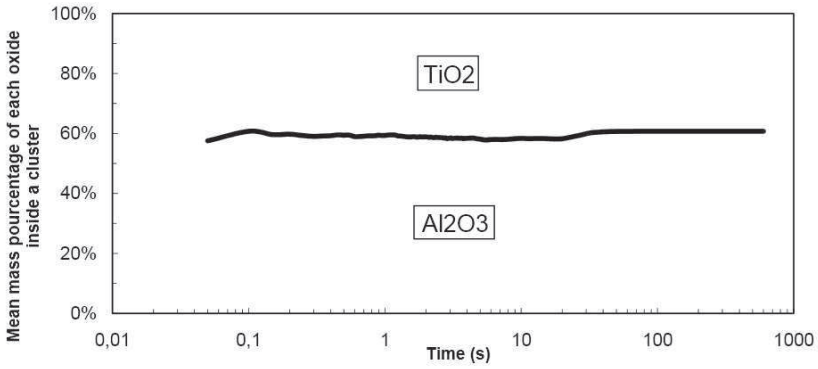
Total mass fraction of precipitates.
296x209mm (96 x 96 DPI)

For Review



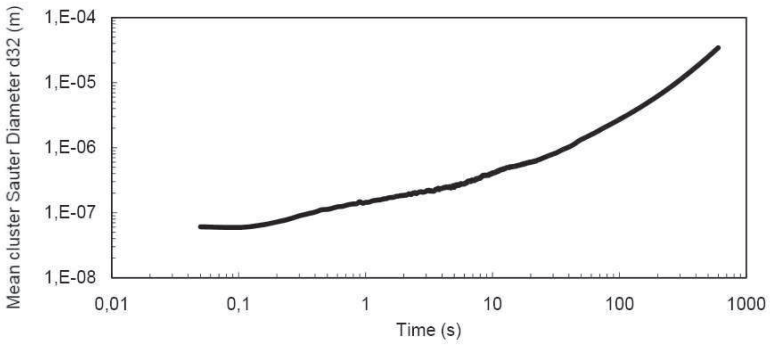
Mean cluster mass.
296x209mm (96 x 96 DPI)

Review



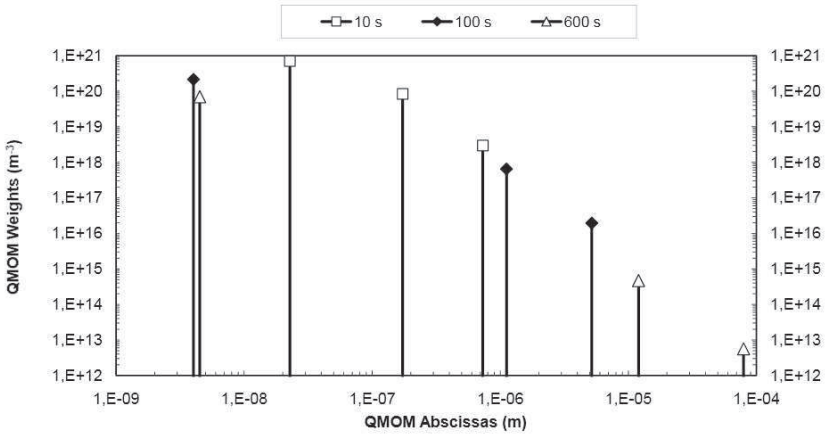
Estimated mean mass percentage of each oxide inside cluster.
296x209mm (96 x 96 DPI)

Review



Cluster Sauter Mean Diameter.
296x209mm (96 x 96 DPI)

Review



Cluster Particle Size Distribution at different time.
296x209mm (96 x 96 DPI)

Review

Résumé de la thèse

La qualité des aciers est un axe important pour ArcelorMittal. La présence d'inclusions, sous forme de précipités de compositions diverses, peut produire des défauts dans les brames (exfoliations) qui pourront se répercuter lors des opérations de laminage, en donnant un mauvais état de surface à la tôle d'acier. Afin de proposer des actionneurs permettant une élimination efficace de ces inclusions, nous devons avant tout connaître les phénomènes qui régissent leur naissance et leur vie. L'objectif de cette thèse est donc de comprendre et de pouvoir prédire les étapes de germination/croissance des inclusions solides présentes dans l'acier liquide.

Dans cette optique, un outil numérique a été mis en place. Il prend en compte non seulement la mécanique des fluides à travers l'utilisation de Fluent® mais aussi la thermodynamique avec un outil fait maison et le suivi en taille des populations d'inclusions avec une nouvelle méthode basée sur les travaux de Marchisio *et al.* (2004). Le module Multi-QMOM est un outil élégant, construit avec un nombre fini de méthode QMOM (Quadrature Method Of Moments), utilisé pour suivre l'évolution en taille d'une population multiple. Il représente l'innovation majeure de cette thèse.

L'outil numérique dont les résultats ont été confrontés à des cas analytiques et industriels permet de modéliser les phénomènes de précipitation, de croissance, d'agrégation et d'extraction de diverses inclusions solides et il permet l'étude de différents paramètres et leurs impacts sur la population inclusionnaire.

Mots clé : CFD, thermodynamique, réacteur, acier liquide, bilan de population, Multi-QMOM

Thesis summary

The steel quality is an important focus for ArcelorMittal. The presence of inclusions in the form of precipitates of different composition can produce defects in the slab (exfoliation) which can affect rolling operations and giving a poor surface sheet of steel. To provide actuators for efficient removal of these inclusions, we must first know the phenomena that govern their birth and their lives. The objective of this thesis is to understand and to predict the stages of germination / growth of solid inclusions present in liquid steel.

In this context, a numerical tool has been implemented. It takes into account not only the mechanics of fluid through the use of Fluent® but also thermodynamics with a homemade tool called MIPPHASOLACIDO and an inclusions population size tracking with a new method based on the work of Marchisio *et al.* (2004). Multi-QMOM is an elegant tool built with a finite number of QMOM (Quadrature Method Of Moments) used to monitor changes of population size. It represents the major innovation of this thesis.

The numerical tool whose results were compared to analytical and industrial cases can model the phenomena of precipitation, growth, aggregation and extraction of various solid inclusions. It allows the study of different parameters and their impacts on inclusions population.

Keywords: CFD, thermodynamics, reactor, molten steel, population balance, Multi-QMOM