



HAL
open science

Etude de la propreté inclusionnaire des lingots VAR - Application aux alliages de titane

Ghassan Ghazal

► **To cite this version:**

Ghassan Ghazal. Etude de la propreté inclusionnaire des lingots VAR - Application aux alliages de titane. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2010. Français. NNT : 2010INPL016N . tel-01748825

HAL Id: tel-01748825

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748825v1>

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>

Etude de la propreté inclusionnaire dans les lingots VAR - Application aux alliages de titane

THESE

Présentée et soutenue publiquement le 15 avril 2010

Pour l'obtention du grade de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine
(Science et Ingénierie des Matériaux)

par

Ghassan GHAZAL

Composition du jury :

Président	Monsieur P. Archambault (<i>Directeur de recherche CNRS, Institut Jean Lamour</i>)
Rapporteurs	Madame J. Etay (<i>Directeur de recherche CNRS, SIMAP-EPM</i>) Monsieur F. Gruy (<i>Maître assistant, SPIN - Ecole des Mines de St-Etienne</i>)
Examineurs	Monsieur P. Chapelle (<i>Chargé de recherche CNRS, Institut Jean Lamour</i>) Monsieur A. Jardy (<i>Chargé de recherche CNRS, Institut Jean Lamour</i>) Monsieur Y. Millet (<i>Ingenieur R&D, Timet Savoie</i>)
Invité	Monsieur A. Wilson (<i>Ingenieur R&D, Timet UK</i>)

Remerciements

Cette thèse a été effectuée au sein de l'équipe "Procédés d'Elaboration" de l'Institut Jean Lamour à Nancy. Le travail n'aurait pas abouti sans le soutien précieux et permanent de plusieurs personnes dont je tiens à remercier dans ces quelques lignes.

Pour commencer, je tiens à exprimer ma sincère reconnaissance à mes directeurs de thèse Alain Jardy et Pierre Chapelle qui, bien au-delà de leur encadrement scientifique m'ont témoigné beaucoup de gentillesse et de qualités humaines. Merci Alain pour tes explications, ta confiance et tes conseils pour la rédaction de ce manuscrit. Merci Pierre pour tes réflexions et tes remarques qui concernaient surtout la partie expérimentale de la thèse.

Je remercie vivement Julien Jourdan, ingénieur d'études à l'IJL, pour son aide indispensable à la mise en œuvre et au traitement des expériences, sa sympathie et sa bonne humeur qui ont rendu la réalisation des essais de dissolution très agréable malgré les difficultés rencontrées.

Je voudrais aussi assurer mon amitié à l'ensemble du personnel du Laboratoire chercheurs, techniciens et secrétaires. J'exprime particulièrement ma gratitude à Jean Pierre Bellot, professeur à l'Ecole des Mines de Nancy et Bernard Dussoubs, ingénieur de calcul, pour leur disponibilité tout au long des trois années de thèse.

Cette thèse a été réalisée en étroite collaboration avec Timet Savoie et Timet UK. Mes remerciements vont à Yvon Millet, directeur R&D Europe de Timet, pour sa confiance et pour m'avoir permis de réaliser ce travail dans de très bonnes conditions. Je remercie aussi Andrew Wilson, ingénieur qualité à TIMET UK, qui a toujours montré un grand intérêt pour mon travail et pour avoir fait le déplacement de Birmingham afin d'assister à ma soutenance.

Merci aux membres du jury d'avoir accepté de juger mon travail et plus particulièrement les rapporteurs, Jacqueline Etay et Frederic Gruy, pour leurs remarques enrichissantes dont j'ai essayé de tenir compte dans la version finale du manuscrit.

Je dédie ce travail à mon père, à ma mère et à ma sœur pour leur affection et soutien constants.

Finalement, je voudrais évidemment remercier tous mes amis du laboratoire pour tous les moments partagés dans et en dehors du labo. Un grand MERCI à Andrea, Benoit, Ismael, J.F, Julien, Mathieu, Miha, Natacha, Olivier, Paolo, Parham, Rebecca, Valerio, Yannick et Yilin.

Nomenclature

Lettres romaines

B	constante de la force de lift de <i>Mei</i>	
C_D	coefficient de trainée dans un écoulement turbulent	
C_{D0}	coefficient de trainée dans un fluide stagnant	
C_{m_a}	constante de la force de masse ajoutée	
d	distance entre le centre de la particule et le front de solidification	m
d_i	diamètre initial du cylindre	m
d_f	diamètre final du cylindre	m
d_{moy}	diamètre moyen du cylindre	m
$D_{N,i}$	coefficient de diffusion de l'azote dans la phase i	$m^2.s^{-1}$
$Dir_e(i)$	condition à la limite de type Dirichlet imposée sur l'interface "est" de la phase i	$kg.m^{-3}$
$Dir_w(i)$	condition à la limite de type Dirichlet imposée sur l'interface "ouest" de la phase i	$kg.m^{-3}$
d_p	diamètre de la particule	m
d_r	rapport entre la masse volumique de l'inclusion et celle du métal à la température de liquidus	
f	coefficient de correction due à la présence de la paroi	
$f_{//}$	coefficient de correction dans la direction parallèle	
f_{\perp}	coefficient de correction dans la direction perpendiculaire	
f_g	frottement de glissement	N
f_R	frottement de roulement	N
$F_{gravité}$	force de gravité	N
F_{lift}	force de portance	N
$F_{masse_ajoutée}$	effet de masse ajoutée	N
$F_{Saffman}$	force de portance de Saffman	N
$F_{trainée}$	force de trainée	N
FO	nombre de Fourier	
g	accélération gravitationnelle	$m.s^{-2}$
h	hauteur	m
I_R	intensité de turbulence relative	
J	moment d'inertie	$kg.m^2$
k	coefficient de transfert de masse	$m.s^{-1}$
k_R	coefficient de frottement de roulement	

k_1, k_2, k_3	constantes pour le calcul du coefficient de traînée	
L	longueur caractéristique	m
m_p	masse de l'inclusion	kg
Δm	masse dissoute	kg
r	coordonnée radiale	m
R	constante universelle des gaz parfaits	J.K ⁻¹ .mol ⁻¹
r_p	rayon de la particule	m
Re_p	nombre de Reynolds particulaire	
S	surface de l'interface entre deux phases	m ²
S_{moy}	surface à travers laquelle la masse a été dissoute	m ²
Sc	nombre de Schmidt	
Sh	nombre de Sherwood	
t	temps	s
Δt	pas de temps (modèle de dissolution et SOLAR)	s
Δt_{traj}	pas de temps du modèle trajectographique	s
T	température	K
T_m	température de liquidus	K
T_L	échelle temporelle intégrale	s
u'	fluctuation turbulente	m.s ⁻¹
u_f	vitesse du fluide	m.s ⁻¹
u_p	vitesse absolue de l'inclusion	m.s ⁻¹
u_s	vitesse de sédimentation	m.s ⁻¹
u_t	vitesse terminale de sédimentation dans un fluide au repos	m.s ⁻¹
V	vitesse de dissolution	m.s ⁻¹
ΔV	variation de volume due au déplacement de l'interface pendant un pas de temps Δt	m ³
V_{rel}	vitesse relative entre l'inclusion et le fluide	m.s ⁻¹
z	coordonnée axiale	m

Lettres grecques

α	diffusivité thermique	m ² .s ⁻¹
α_{crit}	angle de déviation critique	rad
α_i	inclinaison du front de solidification	rad
β	coefficient d'expansion thermique volumique	K ⁻¹

δ_i^-	fraction massique d'azote dans la phase i à l'équilibre à l'interface entre les phases i et i+1	
δ_i^+	fraction massique d'azote dans la phase i à l'équilibre à l'interface entre les phases i et i-1	
ε	taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente	$\text{m}^2.\text{s}^{-3}$
ε_p	taux de pores infiltrés par le métal	
ε_v	taux de porosité résiduel	
η_i	position de l'interface entre les phases i et i+1	m
λ	échelle de Kolmogorov	m
μ	coefficient de frottement de glissement	
μ_f	viscosité dynamique du fluide	$\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}$
μ_t	viscosité dynamique turbulente	$\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}$
ν_f	viscosité cinématique du fluide	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
ρ_f	masse volumique du fluide	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_p	masse volumique de la particule	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_s	masse volumique du titane nitruré	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_N	concentration massique en azote	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_i	masse volumique de la phase i	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_m	masse volumique du fluide à la température T_m	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_w	masse volumique du tungstène	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
ρ_S	masse volumique du défaut solide	$\text{kg}.\text{m}^{-3}$
τ_p	temps de relaxation	s
φ_i	densité de flux d'azote	$\text{kg}.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
ω	vitesse rotationnelle de la particule	$\text{rad}.\text{s}^{-1}$
ω_f	rotationnel de la vitesse du fluide	s^{-1}
ω_N	titre massique en azote	
ω_S	titre massique en soluté (W ou Mo) dans la phase liquide en équilibre avec le solide	
ω_∞	titre massique en soluté (W ou Mo) dans le bain	

Table des matières

Chapitre I Introduction générale	5
<i>I.1. Les alliages de titane</i>	<i>5</i>
I.1.1. Généralités	5
I.1.2. Elaboration et mise en forme	5
<i>I.2. Le procédé de refusion à l'arc sous vide VAR.....</i>	<i>6</i>
I.2.1. Description générale du procédé	6
I.2.2. Modélisation mathématique du procédé VAR	7
<i>I.3. Les défauts inclusionnaires dans les alliages de titane.....</i>	<i>8</i>
I.3.1. Inclusions hard- α	9
I.3.2. Inclusions HDI.....	10
<i>I.4. Objectifs du travail de thèse et plan du manuscrit</i>	<i>12</i>
Chapitre II Dissolution des défauts de titane nitruré dans Ti liquide - Modélisation	13
<i>II.1. Introduction.....</i>	<i>13</i>
<i>II.2. Le modèle mathématique.....</i>	<i>13</i>
II.2.1. Principe du modèle.....	13
II.2.2. Hypothèses	15
II.2.3. Equations résolues et conditions aux limites.....	16
II.2.4. Détermination des conditions aux limites de Dirichlet	19
II.2.5. Résolution numérique et procédure de calcul	20
<i>II.3. Résultats et étude de sensibilité.....</i>	<i>21</i>
II.3.1. Dissolution d'une particule sphérique de titane nitruré	21
II.3.2. Influence de la vitesse de l'écoulement.....	24
II.3.3. Influence de la température	25
II.3.4. Influence de l'état initial du défaut	28
II.3.5. Influence du choix des concentrations à l'équilibre.....	29
<i>II.4. Conclusions</i>	<i>30</i>
Chapitre III Simulation du comportement des inclusions hard-α dans le puits liquide	31
<i>III.1. Introduction et hypothèses du modèle complet.....</i>	<i>31</i>
<i>III.2. Le modèle trajectographique</i>	<i>32</i>
III.2.1. Equations résolues	33
III.2.2. Prise en compte de la turbulence	35
<i>III.3. Couplage trajectoire-dissolution et implémentation dans le code SOLAR</i>	<i>37</i>
III.3.1. Changement de repère.....	37
III.3.2. Principe du couplage.....	37
III.3.3. Evolution de la masse volumique du fluide	39
<i>III.4. Données nécessaires au modèle.....</i>	<i>40</i>
<i>III.5. Résultats des simulations</i>	<i>41</i>

III.5.1. Introduction.....	41
III.5.2. Influence du comportement hydrodynamique et thermique du bain	42
III.5.3. Influence des caractéristiques initiales de l'inclusion.....	46
III.5.4. Application à une triple refusion.....	52
III.6. Conclusions.....	55
Chapitre IV Dissolution de défauts HDI dans Ti liquide – Etude expérimentale	57
IV.1. Introduction.....	57
IV.2. Expériences de dissolution.....	58
IV.2.1. Description des expériences	58
IV.2.2. Zone d'immersion des défauts au sein du bain métallique.....	59
IV.2.3. Conditions opératoires et paramètres des expériences réalisées.....	60
IV.2.4. Procédure de dépouillement	61
IV.3. Vitesse de dissolution du tungstène et du molybdène dans Ti pur et Ti allié.....	63
IV.3.1. Dissolution du tungstène.....	63
IV.3.2. Dissolution du molybdène	67
IV.4. Etude de la zone de diffusion : Evolution des teneurs en tungstène et en molybdène	68
IV.5. Simulation de la dissolution de défauts HDI dans du titane liquide.....	71
IV.5.1. Présentation du modèle.....	72
IV.5.2. Exemple de résultats	74
IV.6. Conclusions et perspectives	76
Chapitre V Dissolution des défauts de titane nitruré dans Ti liquide – Etude expérimentale	79
V.1. Introduction.....	79
V.2. Elaboration des plaquettes de titane nitruré	79
V.3. Expériences de dissolution	82
V.3.1. Description des expériences.....	82
V.3.2. Zone d'immersion des plaquettes au sein du bain métallique	83
V.3.3. Difficultés expérimentales	83
V.4. Résultats expérimentaux.....	85
V.5. Validation du modèle : Simulation numérique des expériences de dissolution	88
V.5.1. Données du modèle.....	88
V.5.2. Résultats de simulation	90
V.6. Conclusions et perspectives.....	92
Conclusion générale et perspectives.....	95
Références	99
Annexe A Effet de la turbulence sur la trajectoire des inclusions	107
A.1. Généralités	107

<i>A.2. Domaine supercritique</i>	107
<i>A.3. Domaine sous-critique</i>	108
<i>A.4. Conclusions</i>	111
Annexe B Détermination du front de solidification par SOLAR et calcul de la distance particule-paroi	113
Annexe C Etablissement d’abaques taille/densité/comportement	115
<i>C.1. Principe du modèle</i>	115
<i>C.2. Résultats</i>	117
<i>C.3. Conclusions</i>	118
Annexe D Interaction particule – front de solidification	119
<i>D.1. Comportement d’une inclusion sphérique à proximité d’une paroi</i>	120
D.1.1. Introduction	120
D.1.2. Mouvement perpendiculaire à la paroi.....	121
D.1.3. Mouvement parallèle à la paroi.....	122
D.1.4. Exemple d’application	123
D.1.5. Conclusions	127
<i>D.2. Roulement sur le front de solidification</i>	127
D.2.1. Introduction.....	127
D.2.2. Présentation du modèle	128
D.2.3. Exemples de résultats.....	132
D.2.4. Conclusions et perspectives	134
Annexe E Diagrammes de phase Ti-W et Ti-Mo	137

Chapitre I

Introduction générale

I.1. Les alliages de titane

I.1.1. Généralités

Le titane, dont le nom provient des "Titans" de la mythologie grecque, fut découvert en 1794 par le moine anglais William Gregor. Neuvième élément sur Terre par ordre d'abondance, on le trouve dans la croûte terrestre sous forme de plusieurs minerais, principalement le rutile (TiO_2) et l'ilménite (FeTiO_3). Sa métallurgie extractive étant difficile, ce n'est qu'en 1949 que l'industrie du titane a réellement débuté, suite à la mise au point d'un procédé d'extraction convenable par Wilhelm Justin Kroll.

Le titane est souvent utilisé sous forme d'alliages. Les éléments d'addition stabilisent soit la phase α (éléments alphas tels que l'aluminium, le carbone ou l'azote), soit la phase β (éléments bêta tels que le molybdène et le vanadium). Les éléments alphas élèvent la température de transition β alors que les éléments bêta abaissent cette dernière.

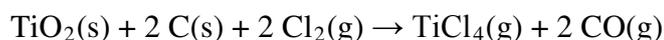
Les propriétés tout-à-fait intéressantes du titane ont fait de ce métal un matériau de choix dans l'industrie aéronautique en particulier. En effet, le titane et ses alliages associent de hautes performances mécaniques, qu'ils conservent à température élevée, et une bonne résistance à la corrosion à une faible masse volumique (environ 60% de celle de l'acier). En dehors de son intérêt dans l'industrie aéronautique et aérospatiale, le titane est principalement utilisé dans les secteurs naval et automobile, l'industrie chimique et l'industrie militaire. Il trouve également bon nombre d'applications médicales du fait de sa biocompatibilité.

Malgré le développement de l'industrie du titane et l'accroissement de la demande, les alliages de titane restent des métaux coûteux en raison des difficultés soulevées par leur élaboration. L'optimisation des procédés d'élaboration et l'amélioration de la qualité des lingots sont, par conséquent, un enjeu majeur pour les producteurs.

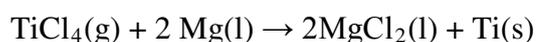
I.1.2. Elaboration et mise en forme

La filière d'élaboration du titane est généralement constituée de trois étapes principales :

- 1) L'éponge de titane est obtenue par réduction du minerai, en opérant tout d'abord une carbochloration du dioxyde de titane, à une température d'environ 800 °C, sur un lit fluidisé, selon la réaction suivante :



Le tétrachlorure de titane est récupéré par condensation puis décanté, filtré et purifié. Le procédé de réduction qui s'ensuit, appelé procédé Kroll, consiste alors à faire réagir ce tétrachlorure en phase gazeuse avec du magnésium liquide selon la réaction :



- 2) L'éponge obtenue est broyée sous forme de granules et les éléments d'alliage y sont ajoutés. Le lot est compacté sous forme de cylindres denses appelés compacts. Une électrode primaire est ensuite constituée par empilement de ces compacts et soudage entre eux par plasma ou faisceau d'électrons. L'électrode est fondue une première fois pour obtenir un lingot qui peut être refondu à une ou deux reprises selon la pureté désirée. Le procédé de refusion à l'arc sous vide reste le procédé le plus largement utilisé malgré l'apparition de nouvelles techniques telles que la fusion par plasma en creuset froid (PAR, Plasma Arc Remelting), le procédé "Skull Melting", ou la fusion par bombardement électronique en creuset froid (EBCHR, Electron Beam Cold Hearth Melting). Le principe du fonctionnement du procédé VAR qui fait l'objet de cette thèse est détaillé dans la section suivante.
- 3) Les lingots produits subissent ensuite plusieurs opérations telles que le forgeage à chaud et l'usinage pour obtenir des demi-produits sous forme de brames, blooms ou billettes. Suivant le produit final envisagé (feuilles, bobines, barres, plaques, câbles etc.), les lingots passent de plus par différents stades de transformation (laminage, forgeage, extrusion, usinage etc.).

I.2. Le procédé de refusion à l'arc sous vide VAR

I.2.1. Description générale du procédé

Le procédé de refusion à l'arc sous vide (VAR, Vacuum Arc Remelting) a été le premier procédé de refusion utilisé pour la production industrielle de lingots de superalliages pour l'aéronautique, à la fin des années 50. A l'heure actuelle, il est largement utilisé pour l'élaboration de plusieurs types d'alliages métalliques destinés à des applications de haute qualité, où l'homogénéité chimique, l'élimination des défauts et la bonne tenue mécanique du lingot sont nécessaires. Les aciers spéciaux, les superalliages base nickel et les alliages de titane et de zirconium sont les matériaux couramment élaborés par ce procédé.

Le principe du procédé, schématisé sur la *Figure 1*, consiste à fondre sous un vide poussé (0,1 à 1 Pa) une électrode consommable par l'intermédiaire d'une source de chaleur apportée par un arc électrique de faible voltage et forte intensité (30 à 40 V ; 20 à 40 KA). L'arc est créé entre le bas de l'électrode et un creuset en cuivre refroidi par circulation d'eau au début de l'opération, puis entre l'électrode et le lingot secondaire au cours de la fusion. L'extrémité de l'électrode s'échauffe et fond ; les gouttelettes de métal liquide tombent alors dans le creuset et forment progressivement un lingot secondaire. Ce dernier se solidifie au contact du creuset refroidi et se compose de trois zones distinctes : le puits liquide en tête, alimenté par les gouttes de métal, le lingot solidifié, et une zone intermédiaire (mi-liquide/mi-solide) appelée zone pâteuse. Un gaz neutre tel que l'hélium est parfois (en particulier pour l'élaboration d'alliages base nickel) injecté dans l'espace entre le lingot et la paroi du creuset causé par le retrait à la solidification, pour augmenter la vitesse de refroidissement du lingot.

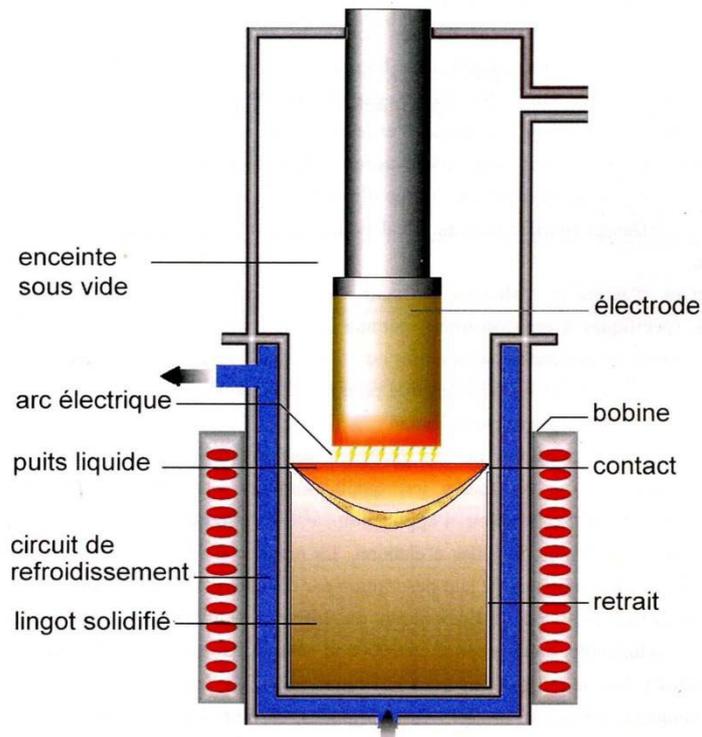


Figure 1. Représentation schématique du procédé VAR.

La vitesse de fusion est contrôlée principalement par l'intensité du courant électrique. L'arc est généralement confiné par un champ magnétique créé par un inducteur externe afin de lui assurer une bonne stabilité. Ce champ permet également de brasser le métal liquide en lui conférant un mouvement dans la direction orthoradiale. En inversant périodiquement le courant dans l'inducteur, le brassage peut être alterné. Ceci est souvent le cas pour les alliages de titane où la durée de la période de brassage peut varier, de quelques secondes jusqu'à plusieurs minutes, selon le producteur.

Les lingots de qualité supérieure sont refondus plusieurs fois, une triple refusion étant le plus fréquemment utilisée pour les lingots de titane. A chaque refusion, le diamètre du lingot augmente; le lingot final a couramment une masse comprise entre 3 et 10 tonnes, pour un diamètre de l'ordre de 0,5 à 1 m.

I.2.2. Modélisation mathématique du procédé VAR

Les industries utilisatrices des produits finis, notamment l'aéronautique, exigent constamment des lingots d'excellente qualité. Par ailleurs, le coût élevé du procédé rend difficile la réalisation de refusions tests. Afin de pouvoir maîtriser les phénomènes physiques complexes mis en jeu lors de l'élaboration, et à terme optimiser le procédé, un modèle numérique simulant la croissance et la solidification d'un lingot VAR a été développé à l'Institut Jean Lamour (IJL) depuis plusieurs années.

Ce code de calcul, nommé SOLAR (Solidification d'un Lingot refondu à l'ARc), est basé sur la résolution de 9 équations différentielles représentant les différents phénomènes physiques mis en jeu. Il décrit ainsi les forces électromagnétiques, l'écoulement turbulent du fluide, le

transfert de chaleur et de solutés. Les différentes équations de transfert sont résolues en régime transitoire par la méthode des volumes finis. La géométrie est axisymétrique, ce qui réduit le problème à deux coordonnées spatiales (radiale et axiale). Le maillage évolue au cours du temps et permet ainsi de tenir compte de l'apport continu de matière provenant de l'électrode. Cette évolution est réalisée en ajoutant des nœuds au cours de la simulation par scission périodique des volumes de contrôle sur une ligne de maillage. Le modèle est capable de simuler une double ou triple refusion en utilisant le lingot secondaire hétérogène comme une électrode pour la refusion suivante. Pour toute information complémentaire sur le code SOLAR, nous invitons le lecteur à se reporter aux précédentes thèses et publications issues des recherches réalisées au sein de l'équipe "Procédés d'Elaboration" à l'IJL et notamment les références [1-3].

A chaque instant au cours de la refusion ou du refroidissement, SOLAR calcule la densité de courant de fusion, le champ de forces électromagnétiques, l'écoulement tridimensionnel (r,θ,z) dans le liquide et la zone pâteuse, l'intensité de la turbulence de cet écoulement, la température et la fraction liquide, et la carte de composition de tous les solutés. Par conséquent, il permet de relier les paramètres opératoires au profil du puits liquide, au comportement hydrodynamique du métal liquide, aux conditions locales de solidification et à la macroségrégation dans le lingot.

Depuis sa création [1], le logiciel a été constamment amélioré ; citons les travaux de P. Chapelle [2], T. Quatravaux [3], H. El Mir [4] et A. Soller [5]. Il est aujourd'hui utilisé par plusieurs industriels (Timet, Cezus, Aubert&Duval), ce qui a conduit à mettre en place un Club d'Utilisateurs du logiciel.

Plusieurs études ont permis de valider le modèle en comparant les profils de puits liquide et les cartes de compositions expérimentales à ceux obtenus par le calcul et ceci pour divers matériaux (aciers, superalliages, titane et zirconium [6-9]).

La présente étude s'inscrit dans le cadre de ce projet de recherche. Elle est effectuée en collaboration avec la société TIMET, un des plus grands producteurs mondiaux de titane. La simulation numérique représente un outil performant que TIMET utilise pour mieux comprendre les différents phénomènes physiques ayant lieu au cours d'une refusion, et par conséquent améliorer sa production.

I.3. Les défauts inclusionnaires dans les alliages de titane

Plusieurs défauts sont susceptibles d'apparaître lors de l'élaboration des lingots de titane. Ces défauts sont généralement liés à des hétérogénéités chimiques à diverses échelles (macroségrégation, freckles, tree-rings, white spots). Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons exclusivement à la problématique des inclusions exogènes. Plus spécifiquement, nous nous focalisons sur deux types d'inclusions : les inclusions hard- α et les inclusions HDI.

I.3.1. Inclusions hard- α

Connus également sous le nom de HID (High Interstitial Defects), ces défauts se présentent sous la forme de petits volumes de métal, enrichis en éléments interstitiels alphas tels que l'oxygène et surtout l'azote qui stabilisent le domaine contaminé en phase α . Il n'existe pas de définition chimique précise d'un défaut hard- α [10] mais les inclusions retrouvées dans les lingots industriels peuvent contenir jusqu'à 14 % en masse en azote [11].

Ces défauts se caractérisent par un accroissement de la dureté par rapport à la matrice de titane, ce qui favorise l'apparition de fissures dans le voisinage direct du défaut pendant les opérations de mise en forme. Ces fissures peuvent être détectées par ultrasons si elles sont de taille suffisante. Une inclusion hard- α typique observée dans un lingot refondu à l'arc sous vide après forgeage est représentée sur la *Figure 2*.

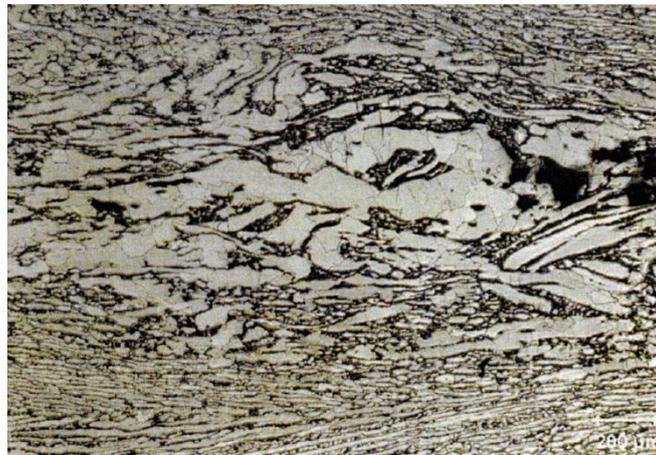


Figure 2. Défaut hard- α retrouvé dans un lingot industriel après forgeage [11].

Malgré leur faible fréquence d'apparition (une inclusion pour 500 tonnes [12]), la présence d'un HID peut être catastrophique et provoquer la rupture des pièces en titane utilisées par exemple dans les moteurs d'avions.

La littérature fournit plusieurs origines possibles de ces défauts [13,14]. La plus probable est liée aux premières étapes de la filière d'élaboration, et provient de l'utilisation d'éponge de titane contaminée par l'air lors de sa réduction dans le procédé Kroll [15]. Même après un tri très soigné de l'éponge élaborée, il y a toujours un risque de contamination.

Signalons que la masse volumique des inclusions hard- α est très variable et dépend essentiellement du niveau de porosité, de la teneur en éléments interstitiels et du type de l'alliage de titane (les pores étant infiltrés par du métal liquide). Hans [16] a montré ainsi que la masse volumique de l'inclusion peut être inférieure ou supérieure à celle du métal liquide.

Comme le montre le diagramme de phase Ti-N présenté dans le *chapitre II*, la présence d'azote, même en faible quantité, augmente considérablement la température de fusion du titane. Ceci rend impossible l'élimination d'un tel défaut par fusion (effet thermique). Le processus éventuel de dissolution sera par conséquent gouverné par les mécanismes de diffusion de l'élément interstitiel de l'intérieur de l'inclusion vers l'extérieur. Cette diffusion se traduit par l'apparition de couches successives en accord avec le diagramme de phase Ti-N.

Dissolution des inclusions hard- α dans le titane liquide

La dissolution des inclusions hard- α dans les alliages de titane a reçu beaucoup d'attention à la fin des années 80 et dans les années 90, surtout au niveau expérimental [12,17-23]. Les expériences menées ont consisté à réaliser la dissolution partielle de défauts de titane nitruré en les immergeant dans un bain de titane liquide. La plupart des essais reportés dans la littérature ont traité la dissolution de défauts synthétiques. Ce type de défaut a l'avantage de ne pas présenter de porosité, ce qui favorise la reproductibilité des expériences et la quantification des phénomènes. En outre, l'interface solide/liquide étant plane, les échanges de matière s'effectuent dans une direction bien déterminée. Les cinétiques de dissolution mesurées par les différents auteurs varient toutefois dans de grandes proportions (entre 0,7 $\mu\text{m/s}$ [19] et 44 $\mu\text{m/s}$ [20] par exemple pour des barreaux de titane nitruré). Les larges différences observées peuvent s'expliquer par les conditions opératoires très variables (type de four, puissance transmise au métal, teneur en azote initiale du défaut). En particulier, et comme nous le détaillerons dans le *chapitre II*, la dissolution d'un défaut de titane nitruré est largement dépendante de la vitesse et de la température du métal liquide.

Hans [16] a étudié le comportement de défauts réels poreux (éponge de titane nitruré). Ses travaux ont montré que le mécanisme de dissolution d'une éponge est similaire à celui d'une particule dense. En effet, les pores de l'éponge sont infiltrés par le métal qui se solidifie rapidement à cause du transport local d'azote. Ce phénomène cause une densification du défaut et une homogénéisation de sa teneur en azote. Le processus général de dissolution est ainsi similaire à celui des défauts synthétiques dans la mesure où il est gouverné par le transfert de matière.

En se basant sur les différentes observations expérimentales, un modèle numérique simulant la dissolution d'un défaut hard- α a été développé à l'IJL au cours du travail de thèse d'Eric Hess [23], dans le but de quantifier les cinétiques de dissolution et d'étudier l'influence du comportement hydrodynamique et thermique du bain liquide. Ce code a été par la suite couplé à un modèle trajectographique pour modéliser le comportement d'inclusions hard- α sphériques dans le four à surverse du procédé EBCHR.

I.3.2. Inclusions HDI

Les défauts HDI (High Density Inclusions), dont un exemple est montré sur la *Figure 3*, sont constitués de métaux lourds réfractaires tels que le tungstène, le molybdène, le niobium etc. Ils proviennent principalement de fragments d'outils ou d'éléments d'alliages non dissous [24]. Ces inclusions demeurent solides à la température de fusion du titane (cf. *Tableau 1*) ; leur élimination ne pourra donc s'effectuer, comme pour les défauts hard- α , que par dissolution et non par fusion.

Comme leur nom l'indique, la densité de ces défauts est largement supérieure à celle du titane. Par conséquent, si leur taille est assez importante (supérieure à 500 μm , cf. *Figure 3*), ils ont tendance à couler rapidement au fond du puits liquide dès leur introduction dans le lingot, ce qui rend leur élimination très difficile pendant une refusion VAR. Par ailleurs, mentionnons que les HDI sont facilement détectables par rayons X à cause de cette large différence de masse volumique.



Figure 3. Inclusion de tungstène pur retrouvée dans une billet de TA6V [11].

Tableau 1. Température de fusion et masse volumique (à température ambiante) de quelques défauts HDI.

Elément	Température de fusion (°C)	Densité (g/cm ³)
W	3410	19,25
WC	2870	15,8
Mo	2610	10,2
Nb	2477	8,57
V	1900	6,11

Dissolution des défauts HDI dans le titane liquide

Si la littérature [25-29] est riche en ce qui concerne la dissolution de particules métalliques solides dans un bain de métal liquide où les phénomènes de transport de matière régissent la dissolution (cuivre dans des alliages de plomb ou d'aluminium, fer dans des alliages d'aluminium ou de cuivre ...), elle est beaucoup plus limitée dans le cas spécifique des défauts propres aux alliages de titane.

Garrat et Neal [24] ont réalisé la dissolution partielle de barreaux de tungstène, de molybdène et de niobium dans des bains de TA6V et ont calculé leurs vitesses de dissolution en mesurant les diamètres des barreaux avant et après l'expérience. Les valeurs obtenues ont été ensuite introduites dans un code de calcul simple pour évaluer la capacité d'une double ou triple refusion VAR à éliminer les inclusions HDI. De leur côté, Yamanaka et Ichihashi [30] ont ensemencé un lingot VAR de 100 mm de diamètre avec des particules de vanadium, de molybdène et de tantale et ont étudié leur cinétique de dissolution après une refusion. Un modèle a été développé pour décrire la dissolution d'une particule sphérique immergée dans du métal liquide en considérant que la dissolution est gouvernée par le transfert de masse convectif à l'interface solide-liquide. Ce modèle a été utilisé pour simuler les expériences et un bon accord a pu être obtenu.

I.4. Objectifs du travail de thèse et plan du manuscrit

L'un des objectifs principaux de cette thèse est le développement d'un modèle capable de prédire le comportement d'un défaut hard- α pendant sa présence dans le bain de titane liquide d'un lingot élaboré par refusion à l'arc sous vide. Ce modèle a pour finalité d'aider à améliorer la propreté inclusionnaire des lingots VAR. En parallèle aux travaux de modélisation, une étude expérimentale vise à mesurer les cinétiques de dissolution des défauts de titane nitruré ainsi que de certains défauts HDI (notamment le tungstène) dans les alliages de titane.

A la suite de cette introduction, le manuscrit comporte deux chapitres qui traitent principalement des modèles développés au cours de cette étude, et deux chapitres consacrés aux travaux expérimentaux. Dans le *chapitre II*, le modèle de dissolution de défauts hard- α est décrit, puis des exemples de simulations sont présentés afin de quantifier l'influence des différents paramètres sur les cinétiques de dissolution. La simulation du comportement des inclusions hard- α dans le puits liquide d'un lingot VAR fait l'objet du *chapitre III*. Les équations mathématiques résolues et le principe du couplage entre le modèle trajectographique et le modèle de dissolution sont tout d'abord présentés. Ensuite, une étude de l'influence des conditions opératoires de la refusion et des caractéristiques de l'inclusion sur son comportement global est exposée. Dans le *chapitre IV*, nous décrivons le protocole des expériences de dissolution réalisées dans le cadre de cette étude, puis nous présentons les résultats relatifs à la dissolution de défauts de tungstène et de molybdène dans les alliages de titane liquide. Les résultats relatifs à la dissolution des plaquettes de titane nitruré sont exposés dans le *chapitre V*. Ce manuscrit s'achève par une conclusion rappelant les résultats importants obtenus au cours des études expérimentales et numériques, à l'issue de laquelle plusieurs extensions possibles de ce travail de thèse sont proposées.

Chapitre II

Dissolution des défauts de titane nitruré dans Ti liquide – Modélisation

II.1. Introduction

Dans le but (cf. *chapitre III*) de simuler précisément le comportement d'une inclusion hard- α dans le puits liquide d'un lingot VAR, un premier modèle numérique est développé dans ce chapitre. Il a pour but de prédire l'évolution de la taille et de la concentration d'un tel défaut pour des conditions hydrodynamiques et thermiques du métal liquide données.

Pour cela, le modèle de dissolution développé initialement à l'IJL dans le cadre de la thèse de Hess [23] a été réécrit et amélioré au niveau de l'algorithme numérique pour assurer la conservation de la masse totale du système. Ce modèle décrit le phénomène de transfert de masse au sein d'une inclusion immergée dans un bain de titane liquide en prenant en compte les variations de la température du métal liquide et de la vitesse relative de l'écoulement à proximité de la particule.

Dans de ce chapitre, nous nous focaliserons sur le processus de dissolution d'un défaut immobile immergé dans un bain de titane liquide dont la température et la vitesse à proximité de la particule sont connues tout au long du calcul.

II.2. Le modèle mathématique

II.2.1. Principe du modèle

Comme le montre le diagramme de phase Ti-N représenté sur la *Figure 4*, la présence d'azote dans le titane, même en faible teneur, entraîne une élévation considérable de son point de fusion. Par conséquent, les procédés d'élaboration des métaux, et plus spécifiquement le procédé VAR, seront incapables d'éliminer un tel défaut par fusion car la température du métal liquide n'atteint pas une valeur suffisamment élevée.

Plusieurs travaux expérimentaux précédents [12,15,16,21,23], complétés par les expériences réalisées dans le cadre de cette étude (cf. *chapitre V*), ont montré que la dissolution d'un défaut hard- α immergé dans un bain de titane liquide est gouvernée par la diffusion de l'azote du centre du défaut vers le liquide. Ce processus se traduit par l'apparition de couches successives, en accord avec le diagramme de phase titane – azote : le défaut étant constitué initialement de phase α , une couche périphérique de titane β se forme au cours du processus global de dissolution. L'apparition de cette couche est causée par la diffusion de l'azote qui

entraîne la solidification d'une partie du liquide périphérique. La couche de titane β se transforme, pendant le refroidissement, en une phase α aciculaire que nous appellerons par la suite phase β par souci de simplification. En se basant sur ces observations, un modèle mathématique a pu être développé.

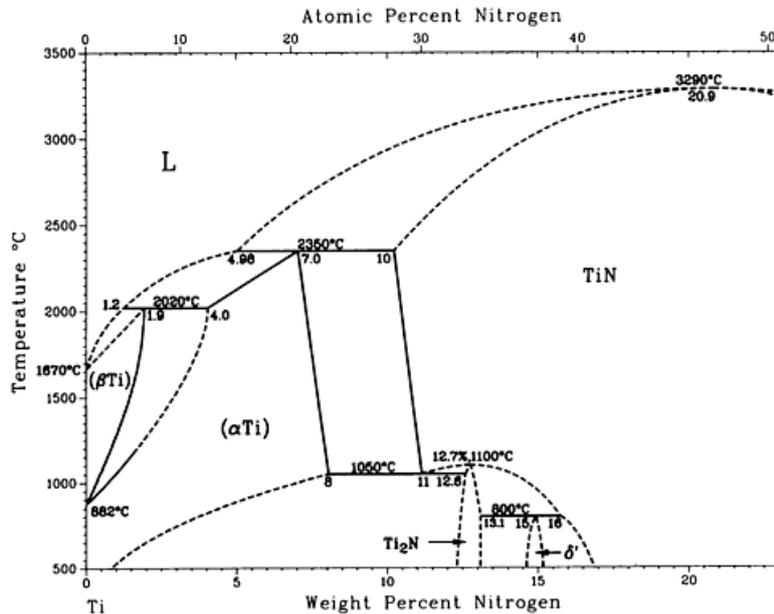


Figure 4. Diagramme de phase Ti-N [31].

Ce modèle décrit le transfert de masse dans un défaut dense, de température égale à celle du métal liquide qui l'entourne. Le domaine de calcul est décomposé en deux zones dont les dimensions varient en fonction du temps : une zone centrale représentant le défaut initial (phase α), et une zone périphérique (phase β). Deux types de géométrie (sphérique ou cartésienne) peuvent représenter le défaut. La géométrie sphérique est utilisée pour modéliser le comportement d'inclusions hard- α dans le lingot VAR, alors que la géométrie cartésienne correspond à la dissolution des défauts synthétiques expérimentaux qui ont la forme de plaquettes (cf. *chapitre V*). Pour chacune de ces géométries, le transport de matière est assimilé à un transfert monodirectionnel, perpendiculaire à l'interface de la manière schématisée sur la *Figure 5*.

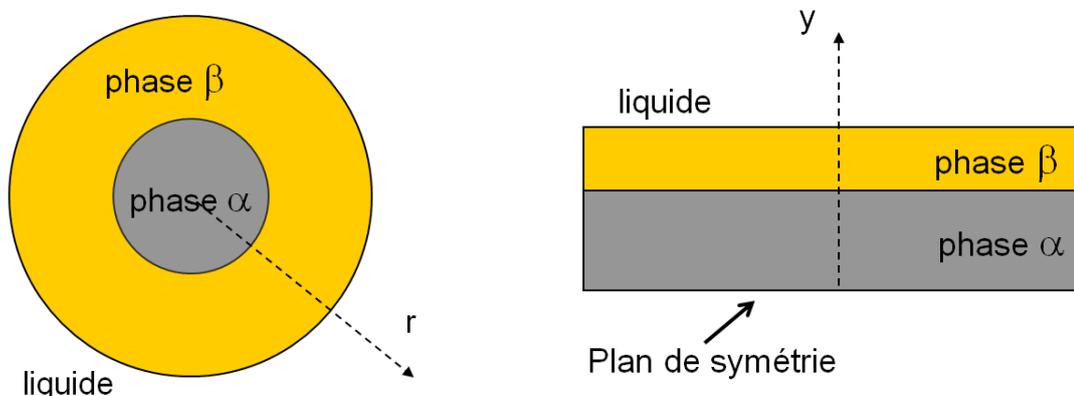


Figure 5. Schémas des géométries prises en compte par le modèle de dissolution.

Notons que, tout au long de ce manuscrit, nous considérons que les défauts sont constitués initialement d'une phase α du fait que la plupart des inclusions retrouvées dans les lingots industriels se présentent sous cette forme. Cependant, il est également possible de simuler la dissolution d'un défaut constitué de phase γ (TiN "stœchiométrique", cf. *Figure 4*). Dans ce cas, le système est formé de trois zones (γ , α et β).

Les phénomènes physiques gouvernant la dissolution, et pris en compte dans les calculs, sont les suivants :

- la diffusion de l'azote dans chacune des phases, causée par la différence de concentration entre les deux extrémités de chaque zone monophasée,
- le transport convecto-diffusif dans le titane liquide,
- les variations de taille de chacune des phases, liées à l'équilibre thermodynamique local que nous supposons atteint à chaque instant aux interfaces.

II.2.2. Hypothèses

- La composition de l'inclusion ainsi que celle du liquide appartiennent au système binaire titane-azote. Aucun élément d'alliage n'est pris en considération dans le modèle. Or, la présence des éléments d'alliages pourrait influencer, d'une part les coefficients de diffusion de l'azote et d'autre part les concentrations à l'équilibre (cf. § II.2.3).
- La température de l'inclusion est supposée uniforme et égale à celle du liquide environnant. Une justification de cette hypothèse est la simple comparaison des nombres adimensionnels de Fourier thermique Fo_T et Fourier Fo_M matière à 1700 °C, qui permet d'évaluer la rapidité de la diffusion thermique dans la particule, comparée à la diffusion de l'azote en phase solide :

$$\frac{Fo_T}{Fo_M} = \frac{\alpha}{D_{N,\beta}} > 10^3$$

α est le coefficient de diffusivité thermique et D_N le coefficient de diffusion de l'azote dans le titane solide (phase β).

- Aux interfaces solide/solide et solide/liquide, la coexistence de deux phases implique une variance nulle (système binaire biphasé à pression et température constantes). Le modèle suppose que cet équilibre thermodynamique est établi instantanément sur chacune des interfaces, ce qui se traduit par des concentrations interfaciales qui peuvent être directement déduites du diagramme binaire Ti-N.
- Le défaut est supposé dense (non poreux). Les défauts poreux réels ont un comportement similaire aux inclusions synthétiques non poreuses [12,16], dans la mesure où leur mécanisme de dissolution est identique. En effet, le titane infiltré dans les pores cause une densification partielle du défaut ainsi qu'une homogénéisation du taux d'azote au sein de la particule. La dissolution intervient alors en première

approximation uniquement à la surface externe de l'inclusion, par transport de l'azote vers le métal liquide.

- La zone liquide est suffisamment étendue pour pouvoir poser l'hypothèse d'un milieu infini dont le titre global en azote, responsable de la force motrice de dissolution, reste constant (considéré comme nul dans le cas général) tout au long du processus de dissolution.

II.2.3. Equations résolues et conditions aux limites

Diffusion de l'azote dans les phases solides

L'équation de transfert de matière par diffusion est résolue dans une géométrie monodimensionnelle dans chacune des phases, indépendamment des phases voisines. La méthode utilisée est celle des volumes finis, en régime transitoire et suivant une formulation totalement implicite. Cette équation (2^{ème} loi de Fick) s'écrit simplement :

$$\frac{\partial \rho_N}{\partial t} = \text{div} (D_{N,i} \text{grad } \rho_N)$$

$D_{N,i}$ est le coefficient de diffusion de l'azote dans la phase i et ρ_N la concentration massique en azote, donnée par :

$$\rho_N = \rho_i \omega_N$$

où ρ_i est la masse volumique de la phase correspondante et ω_N le titre massique en azote.

Les valeurs des coefficients de diffusion de l'azote dans chacune des phases solides dépendent de la température (*Figure 6*). Elles obéissent à des lois d'Arrhénius dont les paramètres sont issus d'une analyse de la littérature réalisée par Bellot et al. [12].

$$D_{N,\alpha} = 3.1 \cdot 10^{-7} \exp\left(-\frac{168 \cdot 10^3}{RT}\right) \quad (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$$

$$D_{N,\beta} = 4.6 \cdot 10^{-5} \exp\left(-\frac{185 \cdot 10^3}{RT}\right) \quad (\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$$

Signalons que ces valeurs ont été obtenues en extrapolant les mesures expérimentales réalisées à des températures inférieures à la température de fusion du titane. La diffusivité dans la phase β est ainsi environ 50 fois plus élevée qu'en phase α . La structure hexagonale de la phase α , plus compacte que la structure cubique centrée de la phase β , est la cause de cette importante différence.

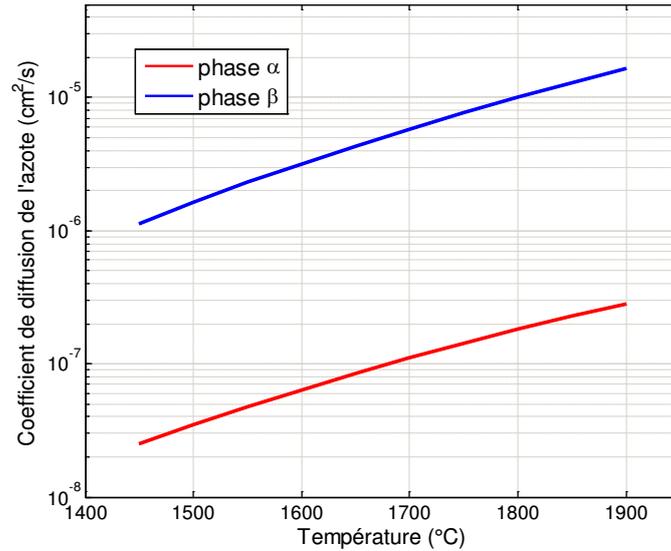


Figure 6. Coefficients de diffusion dans les phases α et β en fonction de la température selon la référence [12].

Conditions aux limites

Les différentes conditions aux limites imposées au centre et aux interfaces du système sont schématisées sur la Figure 7.

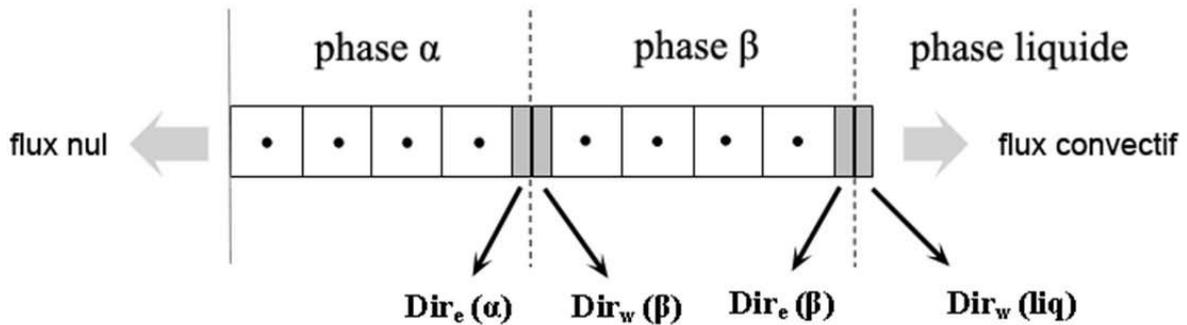


Figure 7. Conditions aux limites du système considéré.

1) Au centre du défaut ($r = 0$), une condition de type flux nul (condition à la limite de type Neumann) est appliquée :

$$\left(\frac{\partial \rho_N}{\partial r} \right)_{r=0} = 0$$

2) Aux frontières de chacune des phases ($r = \eta_i$, qui est la position de l'interface entre la phase i et la phase $i+1$), les conditions aux limites sont de type Dirichlet. En effet l'hypothèse d'équilibre thermodynamique local (cf. § II.2.2) implique que les compositions ($\text{Dir}_e(\alpha)$, $\text{Dir}_w(\beta)$, $\text{Dir}_e(\beta)$, $\text{Dir}_w(\text{liq})$) sont déterminées à partir du diagramme de phase titane-azote. Elles doivent être mises à jour dans le modèle à chaque pas de temps en fonction de la température. Une détermination précise de ces valeurs fait l'objet du *paragraphe II.2.4*.

$$\begin{aligned} \text{Dir}_e(i) &= \rho_N(r = \eta_i^-) = \rho_i \delta_i^- \\ \text{Dir}_w(i+1) &= \rho_N(r = \eta_i^+) = \rho_i \delta_{i+1}^+ \end{aligned}$$

où δ_i est la fraction massique d'azote à l'équilibre de la phase i (Figure 8).

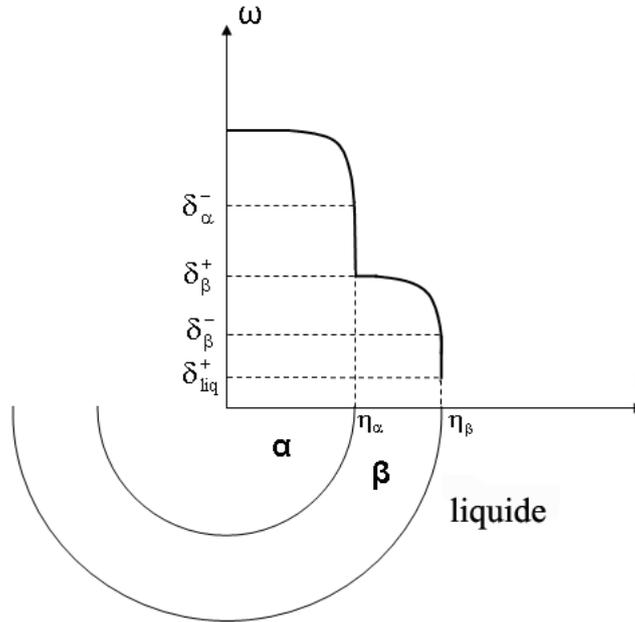


Figure 8. Représentation schématique des profils d'azote dans les zones α et β et des conditions aux limites imposées.

Déplacement des interfaces

Après détermination des profils de concentration dans les différents domaines, la variation de taille de chaque phase est calculée à partir des bilans interfaciaux de masse en azote. Le déplacement des interfaces permet d'équilibrer ces bilans :

$$S(\varphi_i^+ - \varphi_i^-)\Delta t = \Delta V(\rho_{N,i}^+ - \rho_{N,i}^-)$$

Δt est le pas de temps, S l'aire de l'interface, $\Delta V = S \Delta \eta_i$ la variation de volume qui résulte du déplacement de l'interface, $\rho_{N,i}^+, \rho_{N,i}^-$ les concentrations de part et d'autre de l'interface et φ_i^+, φ_i^- les densités de flux massique de part et d'autre de l'interface, calculées par :

$$\begin{aligned}\varphi_i^- &= -D_{N,i}(\text{grad } \rho_N)_{\eta_i^-} \\ \varphi_i^+ &= -D_{N,i}(\text{grad } \rho_N)_{\eta_i^+}\end{aligned}$$

Ces expressions de la densité de flux sont valables à chaque interface solide/solide, ainsi qu'à l'interface solide/liquide (côté solide). A l'interface solide/liquide, le flux convecto-diffusif du côté liquide est estimé par une relation du 1^{er} ordre:

$$\varphi = k[Dir_w(liq) - \rho_{N,liq}]$$

$Dir_w(liq)$ est la concentration en azote à l'interface du côté liquide, déduite également du diagramme de phases, et $\rho_{N,liq}$ la concentration en azote au sein du bain liquide (nulle par hypothèse). La valeur du coefficient de transfert de masse k dépend de l'agitation du bain liquide à proximité du défaut. On peut le représenter sous la forme :

$$k = \frac{D_{N,liq}}{L} Sh$$

où L est une longueur caractéristique (diamètre dans le cas d'une sphère et longueur dans le sens de l'écoulement pour une plaquette) et Sh le nombre adimensionnel de Sherwood calculé à partir de l'une des corrélations suivantes :

$$\begin{aligned} Sh &= 2,0 + 0,6 Re^{1/2} Sc^{1/3} && \text{pour une sphère [32]} \\ Sh &= 0,664 Re^{1/2} Sc^{1/3} && \text{pour une plaquette [33]} \end{aligned}$$

Re et Sc sont les nombres adimensionnels de Reynolds et Schmidt définis par :

$$Re = \frac{\rho_f V_{rel} L}{\mu_f} ; Sc = \frac{\mu_f}{\rho_f D_{N,liq}}$$

Dans l'expression du nombre de Reynolds, V_{rel} correspond à la vitesse relative entre l'inclusion et le liquide. Dans ce chapitre, elle est égale à la vitesse du fluide du fait que le défaut est supposé immobile. Le coefficient de diffusion de l'azote dans le titane liquide a été déterminé par Pasturel [34].

$$D_{N,liq} = 5,13 \cdot 10^{-9} (m^2 \cdot s^{-1})$$

Dans le cas d'un fluide au repos ($V_{rel} = 0$), le transfert de matière s'effectue uniquement par diffusion (cf. § V.5.2). Une autre méthode est alors utilisée pour le calcul du flux à l'interface du côté liquide. Cette méthode consiste à mailler la zone fluide au voisinage de l'inclusion et à résoudre l'équation de transfert par diffusion de l'azote dans tout le système.

II.2.4. Détermination des conditions aux limites de Dirichlet

Comme nous l'avons vu, le modèle de dissolution suppose que le défaut "suit" instantanément la température du bain liquide. Pour chaque variation de température du titane liquide, il est ainsi nécessaire de réactualiser les valeurs des coefficients de diffusion ainsi que les conditions aux limites aux extrémités de chacune des phases. Ces dernières sont égales, comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe précédent, aux valeurs des concentrations en azote à l'équilibre, qui doivent être intégrées comme données du modèle. Pour les résultats présentés dans ce chapitre et dans le reste de ce manuscrit, elles ont systématiquement été déterminées à partir du diagramme de phase Ti-N disponible dans la littérature [31]. Les valeurs des concentrations à l'équilibre ont été représentées par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} Dir_e(\alpha) &= -4,8035 \cdot 10^{-10} T^3 - 1,1873 \cdot 10^{-7} T^2 + 6,9925 \cdot 10^{-3} T - 5,6673 \\ Dir_w(\beta) &= -5,782 \cdot 10^{-10} T^3 + 1,255 \cdot 10^{-6} T^2 + 1,831 \cdot 10^{-3} T - 2,158 \\ Dir_e(\beta) &= 5,352 \cdot 10^{-3} T - 8,91126 \\ Dir_w(liq) &= 6,1919 \cdot 10^{-6} T^2 - 1,9690 \cdot 10^{-2} T + 15,731 && \text{si } T > 1700 \text{ }^\circ\text{C} \\ Dir_w(liq) &= 4,2857 \cdot 10^{-3} T - 7,1357 && \text{si } T \leq 1700 \text{ }^\circ\text{C} \end{aligned}$$

Une alternative à ces équations interpolées, consiste à utiliser des codes de calcul thermodynamique (THERMO-CALC, PANDAT) pour déterminer les valeurs de ces conditions aux limites.

La *Figure 9* représente les limites des phases α , β et liquide prédites par THERMO -CALC. Sur le même graphe sont aussi indiquées quelques valeurs tirées du diagramme de phase de la littérature [31]. Nous pouvons observer clairement des différences importantes entre ces deux

sources de données, surtout au niveau de la fraction massique d'azote à l'interface β /liquide δ_{liq}^+ . Cette dernière est un paramètre important pour le calcul de la cinétique de dissolution, puisqu'elle gouverne le transfert à l'interface. A 1700°C par exemple, la valeur de δ_{liq}^+ calculée par THERMO-CALC est de $6 \cdot 10^{-3} \%$ alors que celle provenant de [31] s'élève à environ 0,15 %.

Les résultats du logiciel PANDAT (fournis par Timet Henderson) ont été aussi comparés au diagramme de la littérature. Bien que moins prononcées, des différences non négligeables subsistent également.

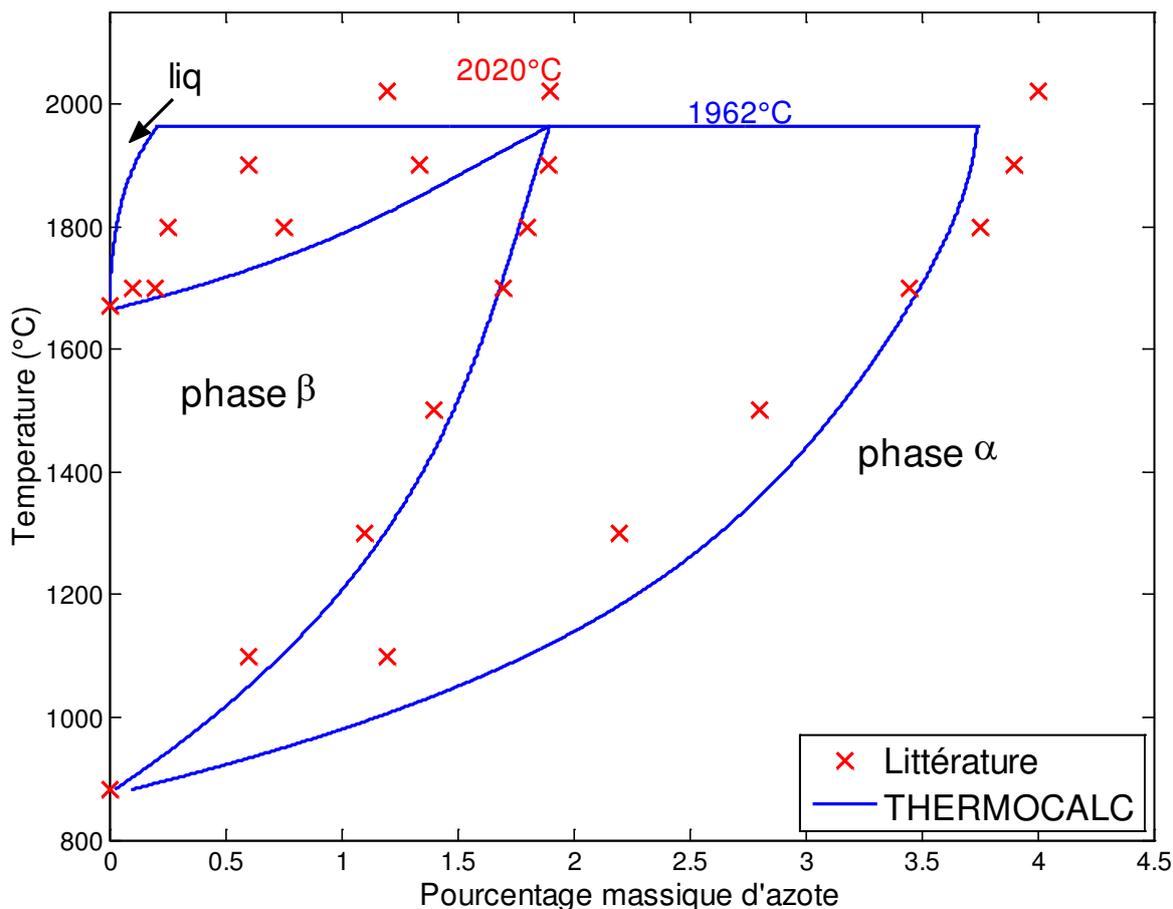


Figure 9. Comparaison entre les résultats des calculs effectués à l'aide de THERMO-CALC et le diagramme de phase Ti-N disponible dans la littérature [31].

Le choix de la source de données conditionne de manière très importante la vitesse de dissolution calculée. En effet, les calculs ont montré, que pour une température donnée, la dissolution d'un défaut peut être considérablement plus lente si le modèle intègre les valeurs calculées par THERMO-CALC, plutôt que celles issues de l'examen du diagramme de phase [31]. Un exemple illustrant ces différences est présenté dans la *section II.3.5*.

II.2.5. Résolution numérique et procédure de calcul

Le calcul est décomposé en deux étapes. A chaque pas de temps, l'équation de transfert de matière est résolue dans chacune des phases. Les conditions interfaciales de Dirichlet

permettent de résoudre cette équation dans chaque phase de manière indépendante de la phase voisine. L'écriture de la conservation de masse à chaque interface permet de calculer son déplacement.

Les phases solides sont discrétisées en mailles de volume identique. Comme la dimension de chaque zone monophasée évolue en fonction du temps, un remaillage du système doit être réalisé à chaque pas de temps. Le nombre de mailles évolue lorsque le volume total varie de façon importante, pour conserver des dimensions de mailles du même ordre de grandeur. Afin d'assurer la conservation de la masse dans le système, il est nécessaire de redéterminer, lors du remaillage, la valeur de la concentration en chaque nœud par un calcul barycentrique. Des bilans massiques globaux sont calculés, là aussi à chaque pas de temps, pour vérifier la conservation de la masse totale de soluté dans le système

Le modèle calcule par conséquent l'évolution de l'épaisseur de chacune des zones constituant le défaut (et évidemment de la taille totale de la particule), ainsi que le profil de composition en azote à chaque pas de temps.

II.3. Résultats et étude de sensibilité

Au cours de son séjour dans le puits liquide du lingot VAR, une inclusion hard- α peut être soumise à des températures et des vitesses d'écoulement variées, et ces deux paramètres pourront exercer une grande influence sur sa cinétique globale de dissolution. Par ailleurs, la taille initiale du défaut ainsi que sa concentration initiale en azote jouent aussi un rôle important dans la détermination du temps requis pour assurer la dissolution totale.

Le but de ce paragraphe est de présenter les résultats obtenus à l'aide du modèle de dissolution et de déterminer l'influence de différents paramètres relatifs au comportement du bain ou à l'état initial de la particule.

Signalons que ce modèle a été également utilisé pour simuler les expériences de dissolution de défauts de titane nitruré qui ont été réalisées dans le cadre de notre étude. Ces expériences, ainsi que leur simulation, feront l'objet du *chapitre V* de ce manuscrit.

II.3.1. Dissolution d'une particule sphérique de titane nitruré

Une sphère de rayon initial 1 mm et de composition initiale homogène en azote (5% massique) est supposée immergée dans du titane pur à une température constante de 1700°C. La vitesse de l'écoulement est de 1 cm/s et les autres données d'entrée du modèle sont résumées dans le *Tableau 2*. Dans les paragraphes suivants, cet exemple sera utilisé comme référence.

Signalons qu'une phase β d'épaisseur très faible est supposée exister initialement avant le début de tout calcul, pour permettre au modèle de simuler son évolution sans avoir à la "créer numériquement".

Tableau 2. Paramètres du calcul.

	Phase α	Phase β	Liquide
Taille initiale (m)	1.10^{-3}	1.10^{-5}	
Masse volumique (kg.m^{-3})	4520	4370	4100
Fractions massiques d'azote aux limites (%)	10 - 3,5	1,7 - 0,2	0,15 - 0
Coefficient de diffusion ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$)	Voir § II.2.3		
Titre initial en azote (%)	5	1,5	0
Viscosité dynamique du liquide ($\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$)			
	3,1.10 ⁻³		
Vitesse de l'écoulement (m.s^{-1})			
	0,01		
Température du liquide (°C)			
	1700		

La *Figure 10* représente l'évolution au cours du temps de la position de chacune des interfaces α/β et $\beta/\text{liquide}$ (cette dernière interface correspond au rayon total de la particule). La *Figure 11* montre le profil de composition en azote au sein de l'inclusion à trois instants différents du calcul. Le modèle prédit une augmentation initiale du diamètre, due à la croissance de la phase β périphérique. En effet, dans les premiers instants, le gradient de composition dans la phase β au voisinage de l'interface implique un flux de soluté dans cette phase beaucoup plus important que le flux convectif dans le liquide. Comme le montre schématiquement la *Figure 12*, la différence entre ces deux flux se traduit par un déplacement "vers la droite" de l'interface, causant la croissance de la phase β . Quand la diffusion homogénéise la concentration d'azote dans la phase β , le processus de rétrécissement de cette phase commence. L'inclusion atteint ainsi un rayon maximal de 1075 μm après 20 s et la dissolution complète, qui correspond à la disparition des phases α et β , intervient après environ 400 s.

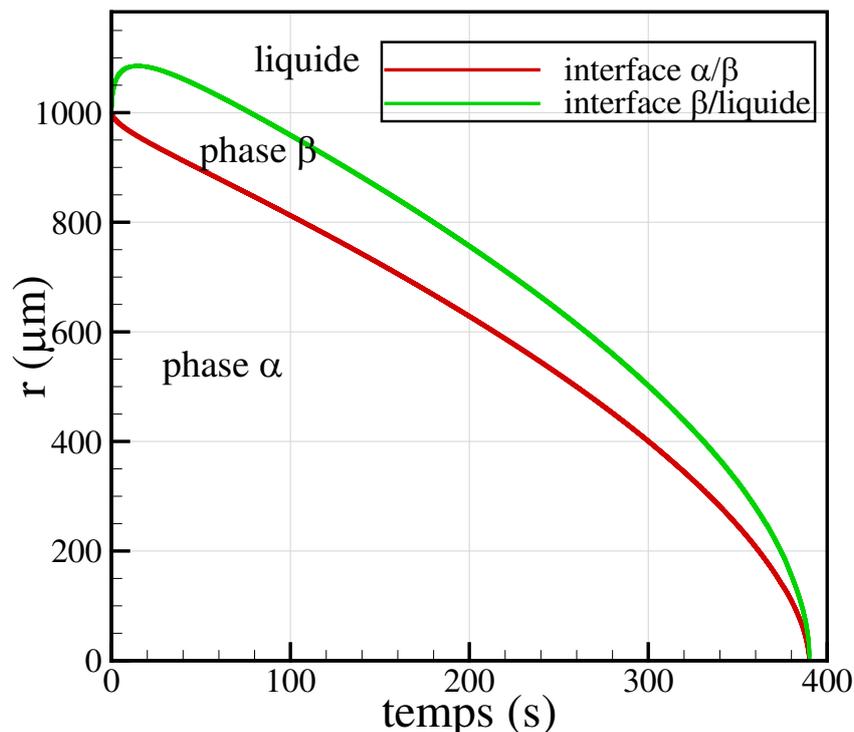


Figure 10. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps.

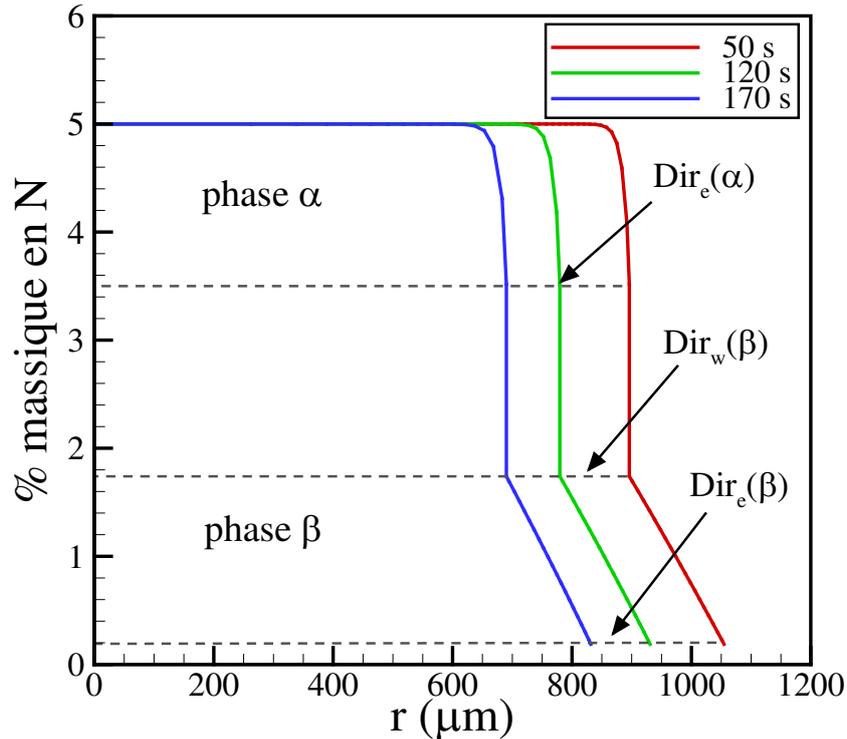


Figure 11. Profil de titre massique en azote à trois moments de la dissolution.

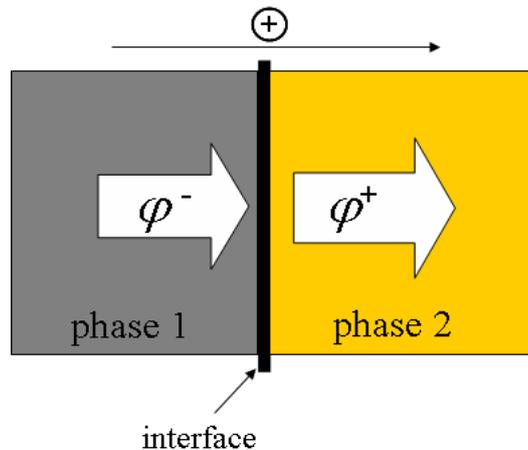


Figure 12. Schéma représentant le transfert de masse à une interface:
l'interface se déplace vers la droite si $\varphi^+ < \varphi^-$.

Sur la *Figure 11*, on remarque que le profil de concentration est pratiquement uniforme dans la phase α (et donc faiblement affecté par la dissolution), sauf au voisinage de l'interface α/β où apparaît un gradient de composition important. Au contraire, dans la phase β , l'azote diffuse beaucoup plus. Ceci est expliqué par le fait que le coefficient de diffusion dans la phase β est environ 50 fois plus important que dans la phase α . Les limites des phases sont indiquées par les lignes horizontales en pointillés, qui correspondent aux valeurs des fractions massiques à l'équilibre (conditions aux limites).

II.3.2. Influence de la vitesse de l'écoulement

Les mêmes conditions sont reprises dans la simulation suivante, exceptée la vitesse de l'écoulement qui passe brusquement de 1 à 10 cm/s après 100 s d'immersion. De manière identique au paragraphe précédent, les *Figures 13 et 14* montrent respectivement l'évolution de la taille des différentes phases et le profil de composition dans le défaut à trois instants différents. Comme l'indique la *Figure 13*, et comme on pouvait s'y attendre, l'augmentation de la vitesse de l'écoulement accélère fortement la cinétique de dissolution. En effet, une agitation accrue du bain liquide accentue le transfert convectif de matière à l'interface par l'intermédiaire du coefficient d'échange, ce qui se traduit par un flux de soluté plus grand quittant le défaut, et donc une accélération globale de la cinétique de dissolution.

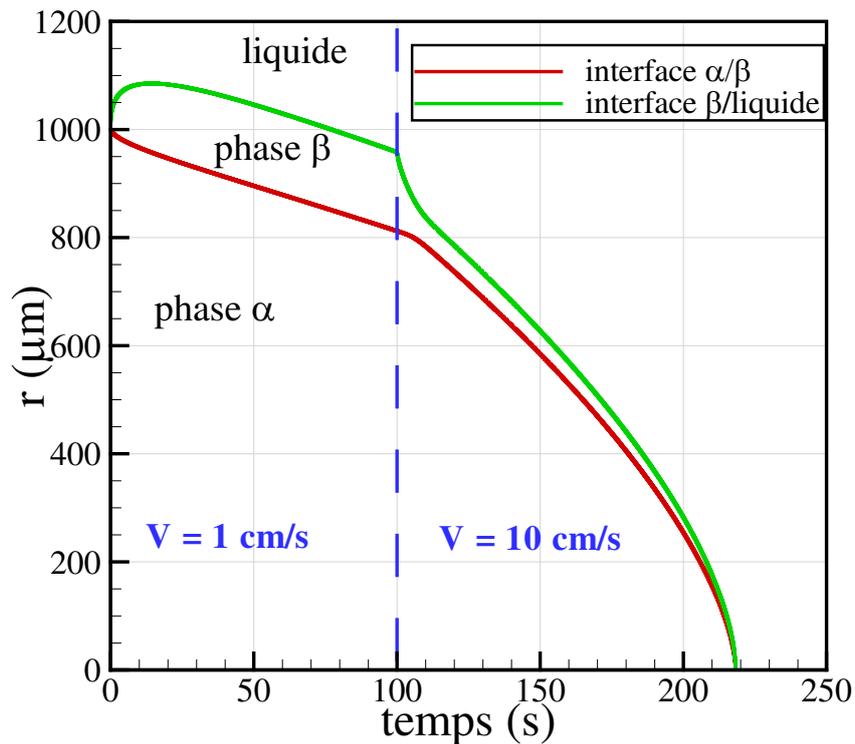


Figure 13. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps.

Le profil dans la phase β est fortement modifié lors du changement de conditions hydrodynamiques (alors que, dans la phase α , il garde la même allure) : le déplacement rapide de l'interface β /liquide réduit la taille de la phase β et provoque par conséquent un gradient de composition plus important. L'épaisseur de la phase β est donc fortement liée à la vitesse de l'écoulement.

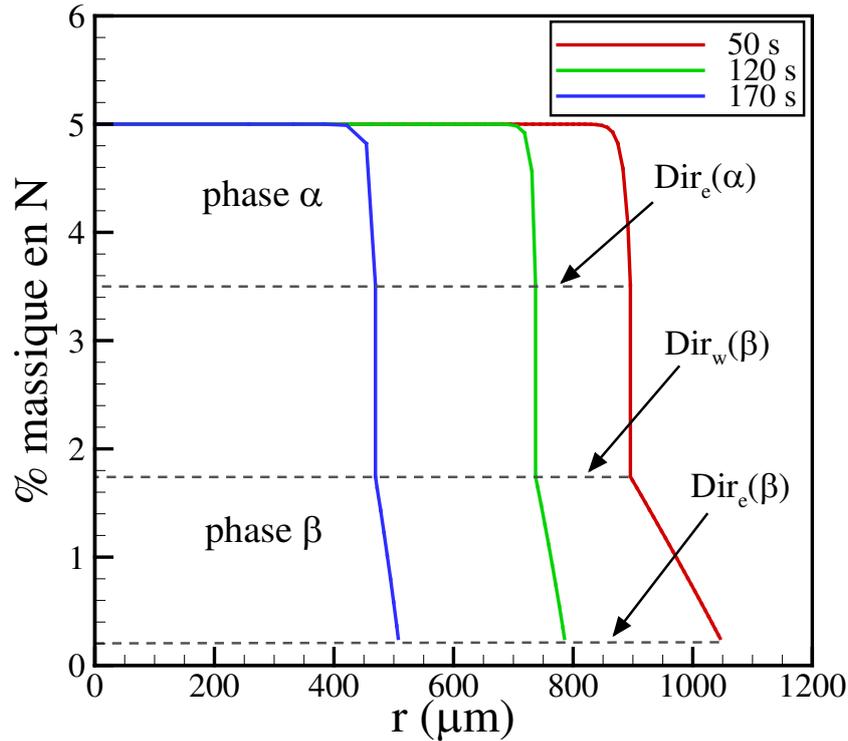


Figure 14. Profil de titre massique en azote à trois moments de la dissolution.

II.3.3. Influence de la température

Nous avons réalisé un second jeu de simulations en augmentant cette fois la température du métal liquide de 1700°C à 1800°C, 100 secondes après le début de la dissolution, la vitesse de l'écoulement étant maintenue constante (1 cm/s).

La vitesse globale de dissolution, dont l'évolution fait l'objet de la *Figure 15*, est obtenue en calculant la fonction dérivée de la position de l'interface solide/liquide. L'explication de l'influence de la variation de température est moins simple que celle de la vitesse de l'écoulement. En effet, la dissolution est une fonction des valeurs des densités de flux d'azote au niveau des différentes interfaces, dont les expressions associent à la fois les coefficients de diffusion, les gradients de composition au voisinage des interfaces et les conditions de Dirichlet. Une augmentation de température se traduit d'une part par une augmentation générale des concentrations aux interfaces (comme le montre le diagramme de phase), surtout de $Dir_w(liq)$ qui conditionne le transfert convectif, et d'autre part par des coefficients de diffusion plus élevés.

La *Figure 15* permet de visualiser l'accroissement de la cinétique avec l'augmentation de la température. Les vitesses de dissolution très élevées à la fin du calcul sont dues à la diminution de la taille de l'inclusion; en effet, le coefficient de transfert à l'interface est inversement proportionnel à $d_p^{1/2}$.

Dans ce cas aussi, on observe un grossissement initial de la particule (*Figure 16*), pour les raisons évoquées au paragraphe précédent. Notons enfin que l'allure générale des profils de composition, qui font l'objet de la *Figure 17*, ne varie pas avec la température. Cependant, les

conditions aux limites sont modifiées par l'accroissement de température, à cause de l'application de nouvelles conditions d'équilibre thermodynamique local.

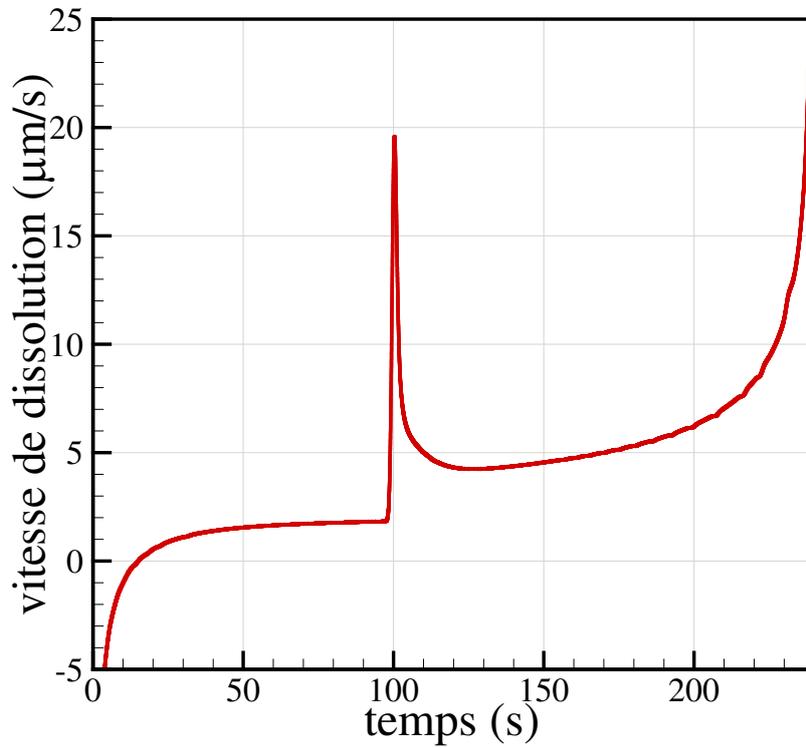


Figure 15. Evolution temporelle de la vitesse de dissolution.

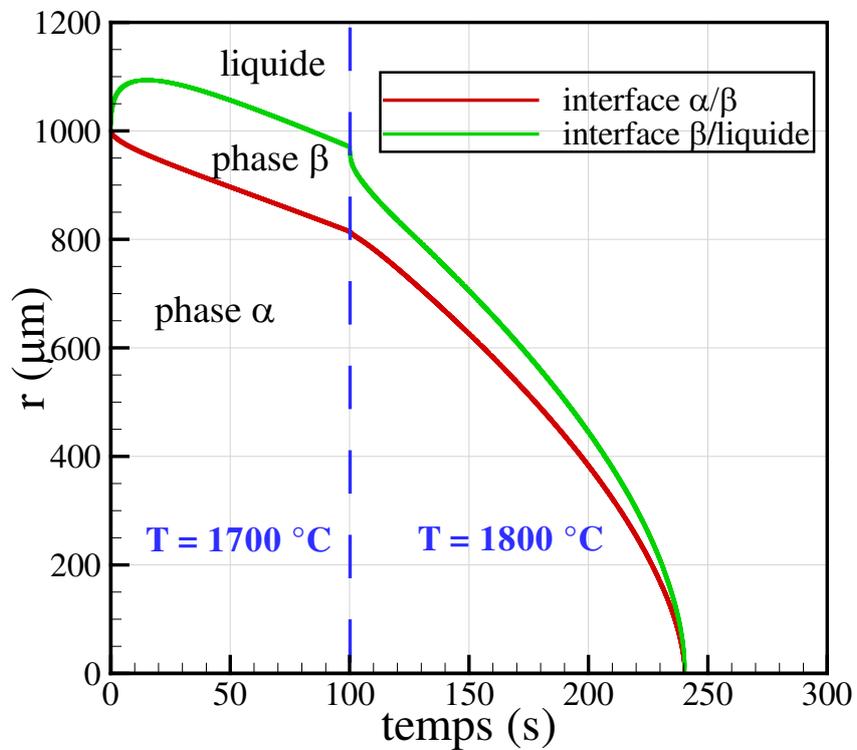


Figure 16. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps.

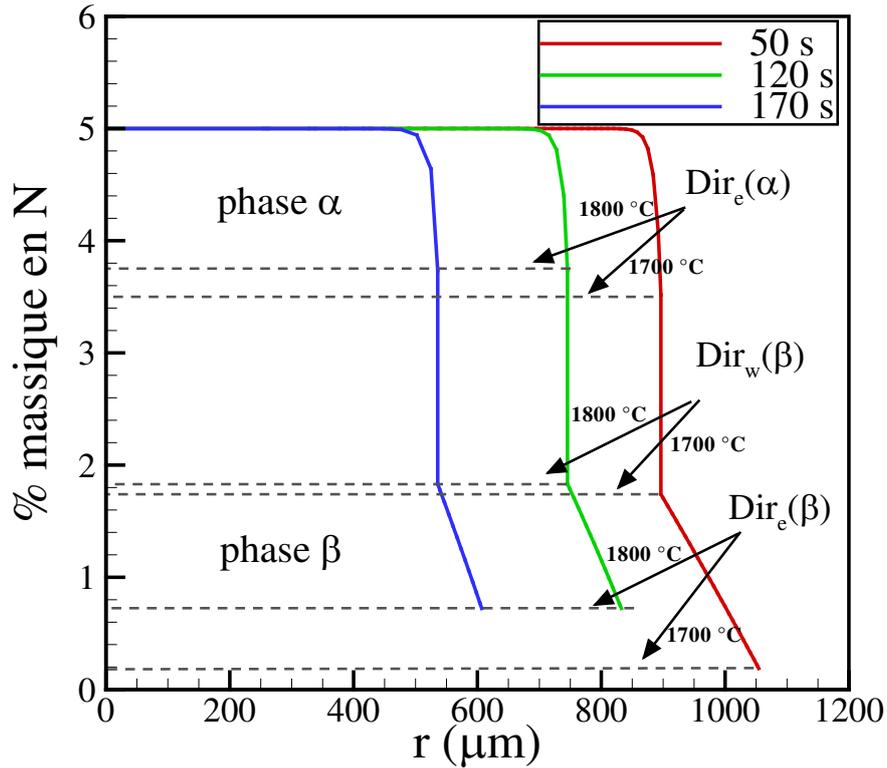


Figure 17. Profil de titre massique en azote à trois moments de la dissolution.

Une diminution de température aura évidemment un effet contraire, et pourra dans certains cas causer un accroissement temporaire de la taille du défaut (Figure 18).

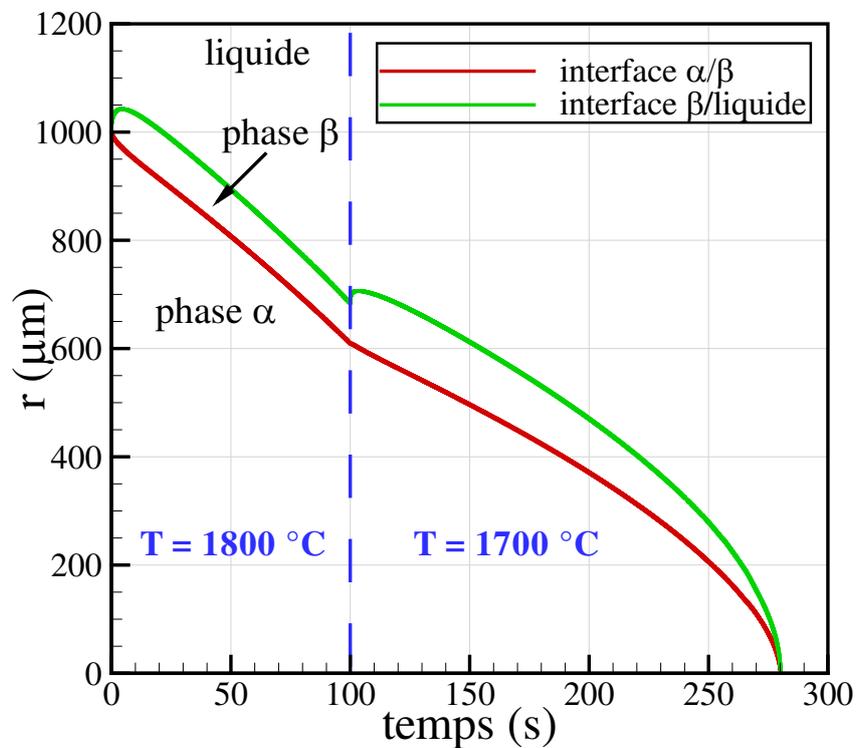


Figure 18. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps.

Ce phénomène s'explique de manière similaire à la croissance observée au début de la dissolution. En effet, une diminution brusque de la concentration à l'interface β /liquide implique l'augmentation du gradient de concentration au voisinage de cette interface, et par conséquent une augmentation du flux diffusif ("à gauche" de l'interface), alors que le flux convectif dans le liquide reste pratiquement constant.

II.3.4. Influence de l'état initial du défaut

La cinétique de dissolution d'une inclusion hard- α est également fonction de ses caractéristiques propres. Le temps requis pour la dissolution totale d'un défaut est fortement lié à sa taille initiale. Par ailleurs, le modèle prédit logiquement qu'une variation de la teneur initiale en azote aura une influence directe sur la durée totale de dissolution. La *Figure 19* montre ainsi l'accroissement du temps de dissolution pour un défaut possédant une concentration massique de 7 % en azote. Les profils de concentration sont représentés sur la *Figure 20*.

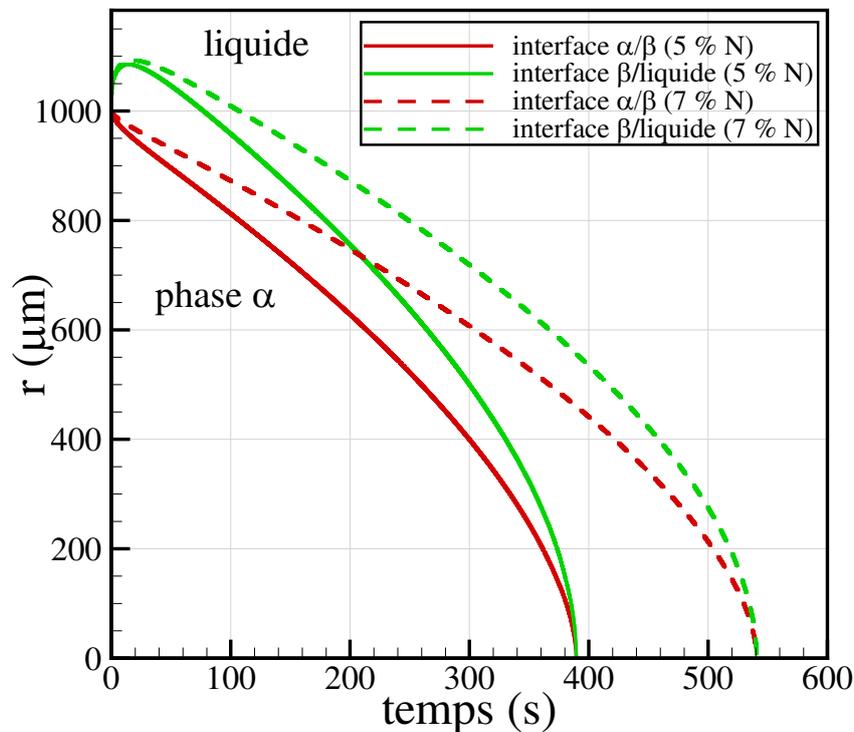


Figure 19. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps ($\omega_N = 5\%$: traits pleins, $\omega_N = 7\%$: pointillés).

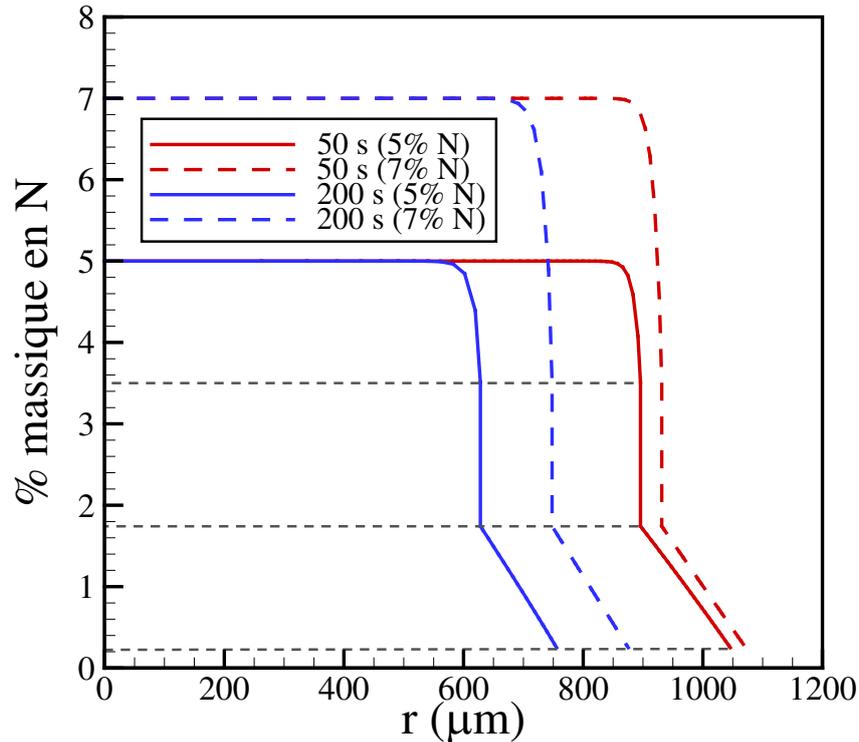


Figure 20. Profils de concentration à deux moments différents
 ($\omega_N = 5\%$: traits pleins, $\omega_N = 7\%$: pointillés).

II.3.5. Influence du choix des concentrations à l'équilibre

Le but de ce paragraphe est de mettre en évidence la grande sensibilité du modèle aux valeurs des concentrations en azote à l'équilibre et d'illustrer les larges variations des résultats si nous choisissons d'adopter des valeurs de $Dir_e(\alpha)$, $Dir_w(\beta)$, $Dir_e(\beta)$ et $Dir_w(liq)$ provenant d'une source différente de celle utilisée jusqu'à présent.

Dans la *Figure 21*, nous comparons le cas de base aux calculs réalisés dans les mêmes conditions mais avec des conditions aux limites fournies par THERMO-CALC. Le modèle prédit un temps de dissolution total environ 3 fois plus long. De plus, puisque la valeur de $Dir_w(liq)$ de THERMO-CALC est très faible, la disparition de la phase α intervient avant celle de la phase β .

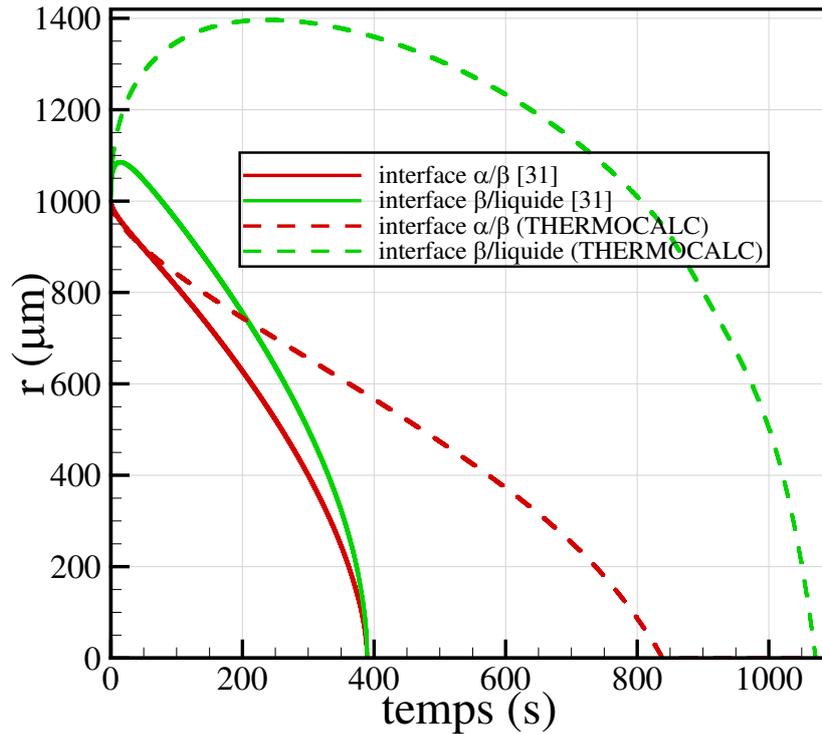


Figure 21. Evolution de la taille des différentes phases au cours du temps (Diagramme de phase de la référence [31] : traits pleins, THERMO-CALC : pointillés).

II.4. Conclusions

Un modèle monodimensionnel de la dissolution d'un défaut de titane nitruré immergé dans un bain de titane liquide a été développé. Il décrit le transfert d'azote de l'inclusion vers le bain, qui se traduit par l'évolution de phases successives en accord avec le diagramme de phase Ti-N. Les calculs ont confirmé que la dissolution est souvent précédée d'un grossissement initial du défaut. Le modèle a été appliqué pour simuler la dissolution de sphères de titane nitruré. Les tests réalisés ont montré l'influence de la température du métal liquide et de la vitesse de l'écoulement sur les cinétiques de dissolution. En effet, l'augmentation de l'une ou l'autre entraîne une réduction du grossissement initial du défaut et une accélération de la vitesse globale de dissolution.

En revanche, de grosses incertitudes sont apparues au niveau de la détermination des conditions aux limites tirées du diagramme de phase titane-azote, pour une faible concentration en azote et une température élevée. Il apparaît que ces conditions influencent fortement les résultats. Une connaissance précise de ces données est donc nécessaire pour une bonne prédiction des cinétiques de dissolution. Des études supplémentaires seront nécessaires afin de clarifier ce point.

Chapitre III

Simulation du comportement des inclusions hard- α dans le puits liquide

III.1. Introduction et hypothèses du modèle complet

Comme nous l'avons vu dans le *chapitre II*, la cinétique de dissolution d'un défaut hard- α dépend fortement de la température du métal environnant et de la vitesse relative entre l'inclusion et l'écoulement. Ces deux paramètres ne sont pas constants, ils varient en fonction du temps et selon la position de l'inclusion dans le puits liquide du lingot VAR. Le temps de résidence de l'inclusion dans le métal liquide joue également un rôle primordial dans la détermination de la probabilité de dissolution complète de l'inclusion, puisque la diffusion de l'azote à l'état solide, après que le défaut ait été piégé dans la zone pâteuse, est très faible. Par ailleurs, la trajectoire d'une inclusion, fortement liée au comportement hydrodynamique du bain, dépend a priori de sa taille, qui évolue évidemment durant le processus de dissolution. Ainsi, plusieurs phénomènes physiques sont couplés et la prédiction du risque de contamination d'un lingot nécessite le développement d'un code de calcul prenant en compte la totalité de ces phénomènes.

Ceci a été réalisé en couplant le modèle de dissolution décrit dans le chapitre précédent à un modèle trajectographique. Le modèle global implémenté dans le code CFD SOLAR permet de prédire le chemin suivi par l'inclusion, tout en calculant l'évolution de sa taille et de sa composition en fonction du temps.

Le modèle trajectographique adopté est présenté au début du chapitre. La méthode utilisée pour réaliser le couplage et la procédure de calcul sont exposées par la suite. Dans la section consacrée aux résultats, nous réalisons tout d'abord une étude paramétrique pour quantifier l'influence de certaines données. Ensuite, nous présentons les résultats relatifs à l'ensemble du comportement d'une inclusion durant une triple refusion.

Avant d'entrer dans les détails du modèle, il est important de mentionner les principales hypothèses simplificatrices adoptées dans les calculs :

- 1- Le modèle suppose que les inclusions sont parfaitement sphériques et denses, alors que les défauts réels peuvent avoir des formes géométriques fort éloignées de cette idéalisation.
- 2- La densité de l'inclusion est considérée constante tout au long du calcul. Dans la réalité, des variations de masse volumique peuvent avoir lieu au cours de la présence du défaut hard- α dans le puits. Ces variations proviennent de plusieurs phénomènes:

- l'évolution de la température du liquide, et par conséquent de celle du défaut (rappelons qu'une inclusion hard- α est considérée en équilibre thermique avec le fluide environnant),
- l'évolution de la concentration locale en azote, du fait du processus de diffusion de l'azote vers le bain de titane,
- l'évolution de la porosité de l'inclusion à cause de l'infiltration du métal dans ses pores.

La masse volumique d'une inclusion peut ainsi s'écrire :

$$\rho_p = \varepsilon_p \rho_f + (1 - \varepsilon_p - \varepsilon_v) \rho_s$$

où ε_p est le taux de pores infiltrés par le métal, ε_v le taux de porosité résiduel, ρ_f la masse volumique du métal infiltré, et ρ_s celle du titane nitruré.

Dans sa version actuelle, le modèle suppose que ρ_p reste constante.

3- La présence de l'oxygène dans les défauts hard- α et son influence sur la dissolution ne sont pas modélisées.

4- Comme nous l'avons mentionné dans le *chapitre II*, les concentrations à l'équilibre du système titane-azote, pour des températures élevées et des teneurs en azote faibles, sont mal connues. L'utilisation de données provenant de différentes sources (THERMO-CALC, PANDAT, diagramme de phase Ti-N de la littérature) conduit à des résultats différents, en termes de cinétique de dissolution. Ce point constitue l'un des inconvénients majeurs du modèle puisque les évolutions de taille prédites sont directement liées au choix des concentrations à l'équilibre entre les phases α , β et liquide.

5- Les calculs (trajectoire et dissolution) sont arrêtés dès que l'inclusion est piégée dans le métal solide. Les transformations de phase survenant pendant la solidification ne sont pas modélisées.

6- Les effets de tension superficielle à la surface du bain ne sont pas pris en compte et constituent également un des développements futurs du modèle.

III.2. Le modèle trajectographique

Les modèles trajectographiques décrivant la trajectoire d'inclusions solides dans des écoulements sont abondants dans la littérature et couvrent plusieurs domaines d'application tels que la métallurgie, les réacteurs chimiques et nucléaires, le transport de polluants etc.

Concernant le procédé VAR, Zhang et al. [35] se sont intéressés au comportement des white spots pendant la refusion d'un lingot d'INCONEL 718. Leur modèle associe l'étude de la dissolution du défaut et sa trajectoire dans le puits liquide caractérisé par un écoulement laminaire. En utilisant une approche similaire, Soller [5] a développé un modèle qui a été implémenté dans SOLAR. Le modèle trajectographique de Quatravaux [3], également implémenté dans SOLAR, est basé sur une approche stochastique et est capable de prédire la

dispersion des inclusions d'oxyde de tailles très faibles pendant une refusion VAR, due à la turbulence de l'écoulement.

En se basant sur ces modèles déjà implémentés dans SOLAR, nous avons développé un modèle de suivi trajectographique spécifique aux inclusions hard- α .

III.2.1. Equations résolues

Le couplage est de type "one way", ce qui signifie que la présence de la phase particulaire a des effets négligeables sur le comportement du métal liquide. De même, il n'existe aucune interaction (coalescence, agglomération) entre plusieurs inclusions et le code traite chaque particule de manière isolée. Ces hypothèses sont bien justifiées dans le cas de la refusion des alliages de titane, où le nombre d'inclusions est très faible (une inclusion pour plusieurs lingots [12]). La trajectoire d'une inclusion est décrite en utilisant une approche lagrangienne, qui consiste à suivre le chemin de la particule en calculant son accélération, puis sa vitesse, et donc sa position à tout instant.

L'accélération de la particule est déterminée à l'aide du principe fondamental de la dynamique appliqué au cas d'une sphère solide se déplaçant dans un liquide, qui s'écrit [36]:

$$\frac{d(m_p \mathbf{u}_p)}{dt} = \sum \mathbf{F}$$

soit, en explicitant les forces subies par la particule et en négligeant la force de séparation électromagnétique, la force de gradient de pression et le terme historique de Basset :

$$m_p \frac{d\mathbf{u}_p}{dt} = \mathbf{F}_{gravité} + \mathbf{F}_{trainée} + \mathbf{F}_{masse_ajoutée} + \mathbf{F}_{lift}$$

Quatre forces s'exerçant sur la particule sont ainsi prises en compte :

- Les forces liées à la gravité regroupent le poids de la particule et la poussée d'Archimède :

$$\mathbf{F}_{gravité} = \frac{\pi}{6} (\rho_p - \rho_f) d_p^3 \mathbf{g}$$

- La force de trainée traduit la résistance (frottement visqueux) qu'oppose le fluide au mouvement de la particule. Pour une particule sphérique, cette force s'écrit :

$$\mathbf{F}_{trainée} = -\frac{\pi}{8} \rho_f d_p^2 C_D \|\mathbf{V}_{rel}\| \mathbf{V}_{rel}$$

où \mathbf{V}_{rel} est la vitesse relative de l'inclusion par rapport à l'écoulement liquide :

$$\mathbf{V}_{rel} = \mathbf{u}_p - \mathbf{u}_f$$

Cette relation utilise le coefficient de trainée C_D qui dépend du nombre de Reynolds particulaire Re_p . Pour une sphère solide en régime d'écoulement de Stokes ($0 \leq Re_p \leq 0.2$), le coefficient de trainée peut être calculé analytiquement [37]. Dans ce cas il est égal à $24/Re_p$. L'étude du coefficient de trainée dans des régimes caractérisés par des nombres de Reynolds plus élevés a fait l'objet de plusieurs études. Les expressions de Morsi et Alexander [38] sont adaptées pour une large gamme de valeurs du nombre de Reynolds et sont utilisées dans notre étude pour calculer le coefficient de trainée dans un fluide stagnant :

$$C_{D_0} = \frac{k_1}{Re_p} + \frac{k_2}{Re_p} + k_3$$

avec

$$Re_p = \frac{\rho_f d_p \|V_{rel}\|}{\mu_f}$$

Les valeurs des coefficients k_1 , k_2 et k_3 sont tirées du *Tableau 3* ci-dessous :

Tableau 3. Valeurs des coefficients k_1 , k_2 et k_3 pour le calcul de C_{D_0} [38].

	k_1	k_2	k_3
$Re_p < 1$	22,73	0,0903	3,69
$Re_p < 10$	29,167	-3,889	1,222
$Re_p < 100$	46,5	-116,67	0,6167
$Re_p < 1000$	98,33	-2778	0,3644
$Re_p < 5000$	148,62	-47500	0,357
$Re_p > 5000$	-490,546	578700	0,46

Pour prendre en compte l'effet de la turbulence de l'écoulement sur la trajectoire des inclusions, le coefficient de traînée doit être corrigé. Ce point fait l'objet du paragraphe suivant.

- *La force de masse ajoutée* représente l'effet d'inertie virtuelle provoqué par une variation de la vitesse relative entre le fluide porteur et la particule. En effet, si la vitesse relative est modifiée, la particule entraîne une certaine quantité de fluide qui devra elle-même être accélérée.

$$F_{masse_ajoutée} = -C_{m_a} \frac{\pi d_p^3}{6} \rho_f \frac{dV_{rel}}{dt}$$

C_{m_a} est une constante souvent prise égale à 0,5 [37,39].

- *La force de portance* (ou force de lift) traduit l'effet de rotation de la particule dans un écoulement cisailé. Cette force, orthogonale à la direction du mouvement, est calculée selon Saffman [40] par la relation suivante :

$$F_{Saffman} = 1,61 d_p^2 (\mu_f \rho_f)^{\frac{1}{2}} \|\omega_f\|^{\frac{1}{2}} (\omega_f \times V_{rel})$$

où $\omega_f = \nabla \times V_f$ est le rotationnel de la vitesse du fluide.

Cette relation a été développée pour des nombres de Reynolds particulières inférieurs à l'unité. Mei [41] a proposé une correction empirique pour étendre son application à des valeurs plus élevées du nombre de Reynolds :

$$\begin{aligned} \frac{F_{lift}}{F_{Saffman}} &= \left(1 - 0,3314 B^{\frac{1}{2}}\right) \exp\left(-\frac{Re_p}{10}\right) + 0,3314 B^{\frac{1}{2}} & Re_p \leq 40 \\ &= 0,0524 (B Re_p)^{\frac{1}{2}} & Re_p > 40 \end{aligned}$$

où

$$B = \frac{d_p}{2\|\mathbf{V}_{rel}\|} \|\boldsymbol{\omega}_f\|$$

Notons que les calculs ont systématiquement montré que l'effet de la force de portance, dans le cas des inclusions traitées dans ce mémoire, est bien moins important que celui des forces de traînée et de gravité.

III.2.2. Prise en compte de la turbulence

L'influence de la turbulence de l'écoulement d'un fluide sur la trajectoire d'une inclusion peut se traduire de manière différente selon leur taille. En effet, pour une particule de diamètre inférieur à l'échelle de Kolmogorov λ (cas 1 dans la *Figure 22*), l'effet de la turbulence est de conférer à la particule un mouvement stochastique dispersif. Pour les inclusions de taille largement supérieure à λ (cas 2), ce qui est le cas des inclusions hard- α (hormis durant les derniers stades de la dissolution), l'effet de la turbulence est de modifier l'écoulement au voisinage de la particule, ce qui entraîne une modification de la force de traînée [37].

Rappelons que l'échelle de Kolmogorov, qui est la taille des plus petites structures tourbillonnaires, peut être déterminée par la relation :

$$\lambda = \left(\frac{\nu^3}{\varepsilon} \right)^{\frac{1}{4}}$$

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

Le modèle trajectographique implémenté dans SOLAR par Quatravaux [3] est spécifique aux inclusions dont la taille est inférieure à celle des plus petits tourbillons de l'écoulement. Il n'est par conséquent pas adapté pour notre étude.

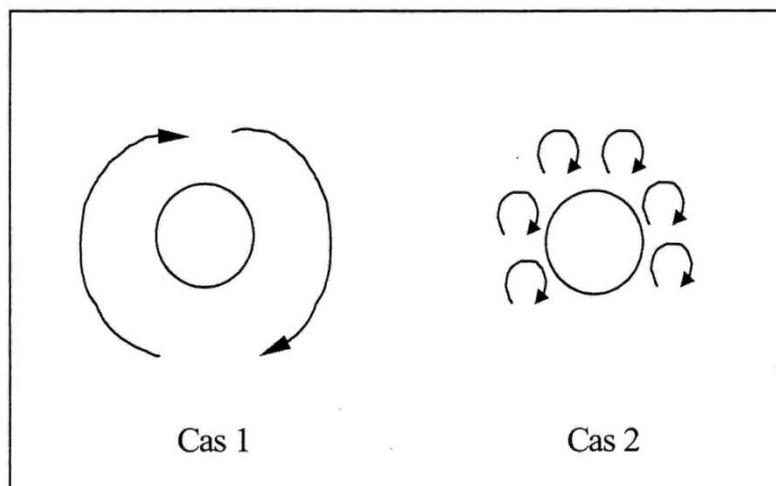


Figure 22. Représentation schématique de l'interaction particule/tourbillon.

Une étude bibliographique résumée dans *l'annexe A* de ce manuscrit nous a amené à adopter la corrélation proposée par Brucato et al. [42] pour corriger le coefficient de traînée. Cette corrélation a été développée à partir de mesures expérimentales sur des inclusions de dimensions similaires aux inclusions propres à notre étude. Le coefficient de traînée

"standard" (obtenu dans un fluide stagnant) est ainsi modifié en fonction du rapport entre le diamètre de l'inclusion et l'échelle de Kolmogorov, de la manière suivante :

$$\frac{C_D - C_{D_0}}{C_{D_0}} = 8,67 \cdot 10^{-4} \left(\frac{d_p}{\lambda} \right)^3$$

où C_{D_0} est le coefficient de traînée dans un fluide stagnant, d_p le diamètre de l'inclusion et λ l'échelle de Kolmogorov.

A cause de sa dissolution, la taille d'une inclusion pourra éventuellement diminuer jusqu'à atteindre une taille proche de celle des plus petits tourbillons. Dans ce cas, l'approche ci-dessus n'est plus valable puisque le mouvement stochastique sera prédominant. Cependant, la dissolution complète intervient très rapidement quand la taille de l'inclusion est faible, ce qui justifie notre choix de ne pas traiter ce cas dans le modèle. Par ailleurs, la nocivité d'une inclusion diminue considérablement lorsqu'elle est de petite taille.

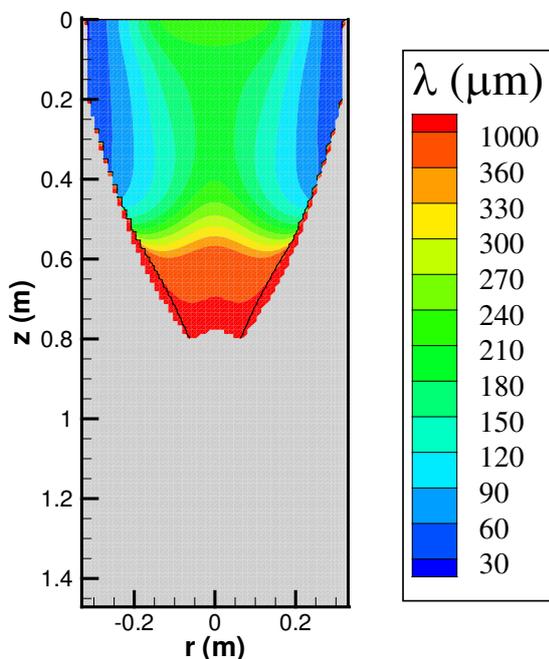


Figure 23. Calcul d'une carte caractéristique de l'échelle de Kolmogorov dans le puits liquide d'un lingot VAR.

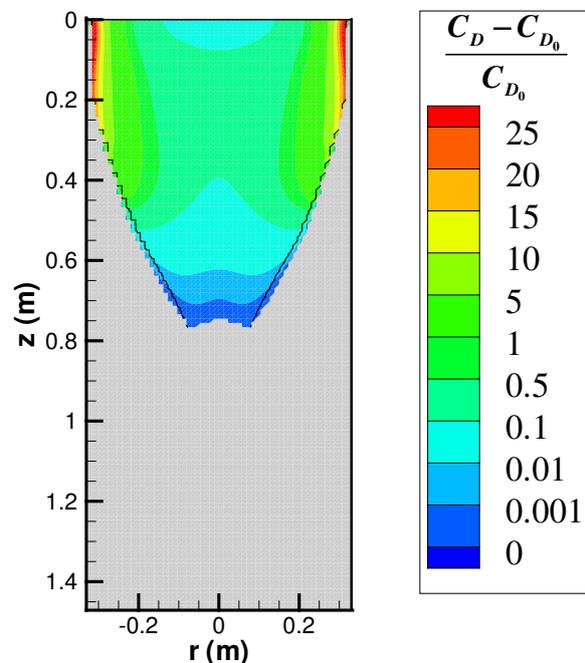


Figure 24. Calcul d'une carte de correction apportée au coefficient de traînée pour prendre en compte la turbulence ($d_p = 1$ mm).

Dans la *Figure 23*, nous représentons la carte de l'échelle de Kolmogorov locale dans un puits liquide prédite par SOLAR lors de la refusion d'un alliage de titane (refusion 2 dans le *Tableau 5* du *paragraphe III.5.1*). Les valeurs les plus faibles correspondent aux fortes intensités de turbulence et sont situées à proximité de la paroi latérale. Dans cette région, nous obtenons les coefficients de traînée les plus élevés puisque le rapport d_p/λ est maximal, comme le montre la *Figure 24* où est représentée la carte de correction correspondant à une inclusion de diamètre 1 mm. L'effet de la turbulence se traduit ainsi par un retard apporté au mouvement de la particule.

L'échelle de Kolmogorov, et par conséquent la correction apportée au coefficient de traînée, sont liées aux conditions opératoires. Elles ne sont pas constantes au cours d'une même

refusion et varient aussi d'une refusion à une autre. Cependant, ces deux paramètres gardent des valeurs du même ordre de grandeur que celles des *Figures 23* et *24*.

Signalons que l'utilisation de l'expression de Brucato est justifiée pour des inclusions dont les caractéristiques sont proches de celles utilisées dans les expériences qui ont servi à développer la corrélation. Elle ne convient pas en toute rigueur pour des particules de taille largement supérieure ou possédant des masses volumiques beaucoup plus élevées.

Pour appliquer cette corrélation à d'autres types d'inclusions, le coefficient dans l'équation de Brucato pourrait être modifié, comme l'ont suggéré Khopkar et Ranade [43]. Cependant la variation de ce terme en fonction de la masse volumique ou du diamètre reste encore inconnue.

III.3. Couplage trajectoire-dissolution et implémentation dans le code SOLAR

III.3.1. Changement de repère

Les grandeurs caractéristiques de l'écoulement sont calculées par SOLAR dans un repère 2D cylindrique. Or, la trajectoire des inclusions est pour sa part calculée dans un repère cartésien tridimensionnel. Afin d'implémenter le modèle trajectographique dans SOLAR, un changement de repère doit être ainsi effectué à chaque pas de temps. Les deux repères ont leur origine située au sommet du lingot, et se déplacent en translation verticale avec la croissance du lingot.

Notons aussi que, bien que SOLAR soit un code bidimensionnel, il peut calculer la vitesse orthoradiale de fluide causée, lors des refusions des alliages de titane, par le brassage électromagnétique. Ceci permet de calculer la composante de l'accélération de l'inclusion dans cette direction.

III.3.2. Principe du couplage

L'organigramme de la *Figure 25* représente le principe du couplage et résume les étapes successives du calcul.

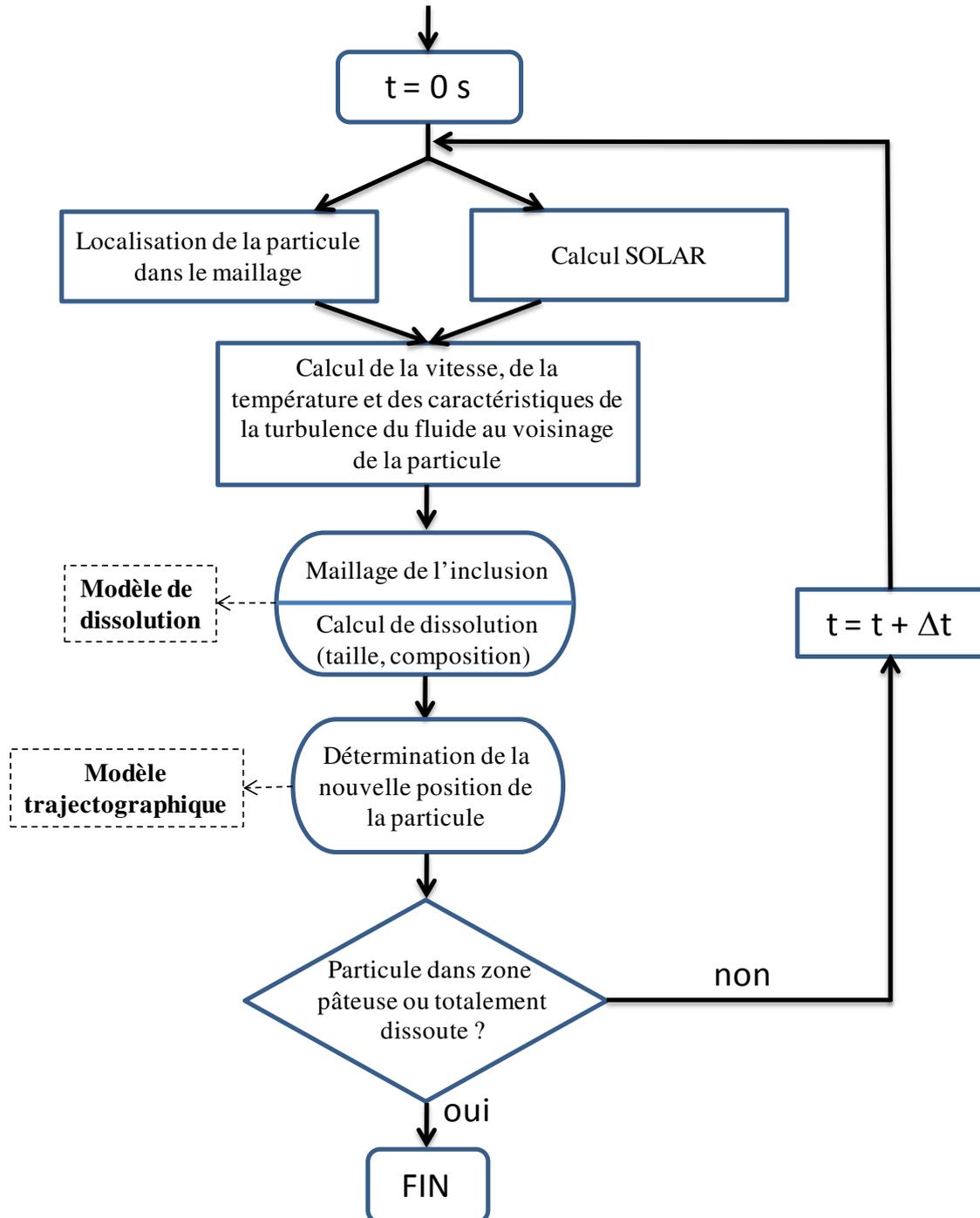


Figure 25. Organigramme représentant les différentes étapes du calcul.

A chaque pas de temps, la vitesse et la position de la particule sont connues. Les caractéristiques du fluide à cet endroit sont déduites des résultats du calcul CFD de SOLAR : les trois composantes de la vitesse du fluide, la température, le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente sont calculés à l'emplacement précis de la particule en effectuant une interpolation bilinéaire (interpolation entre les valeurs aux quatre nœuds voisins, (cf. *Figure 26*). Toute grandeur Φ_p caractéristique du fluide au voisinage de la particule est ainsi calculée à partir des valeurs de Φ aux quatre nœuds adjacents selon la relation :

$$\Phi_p = \frac{dr_n}{dr} \frac{dz_e}{dz} \Phi(i, j) + \frac{dr_n}{dr} \frac{dz_w}{dz} \Phi(i+1, j) + \frac{dr_s}{dr} \frac{dz_e}{dz} \Phi(i, j+1) + \frac{dr_s}{dr} \frac{dz_w}{dz} \Phi(i+1, j+1)$$

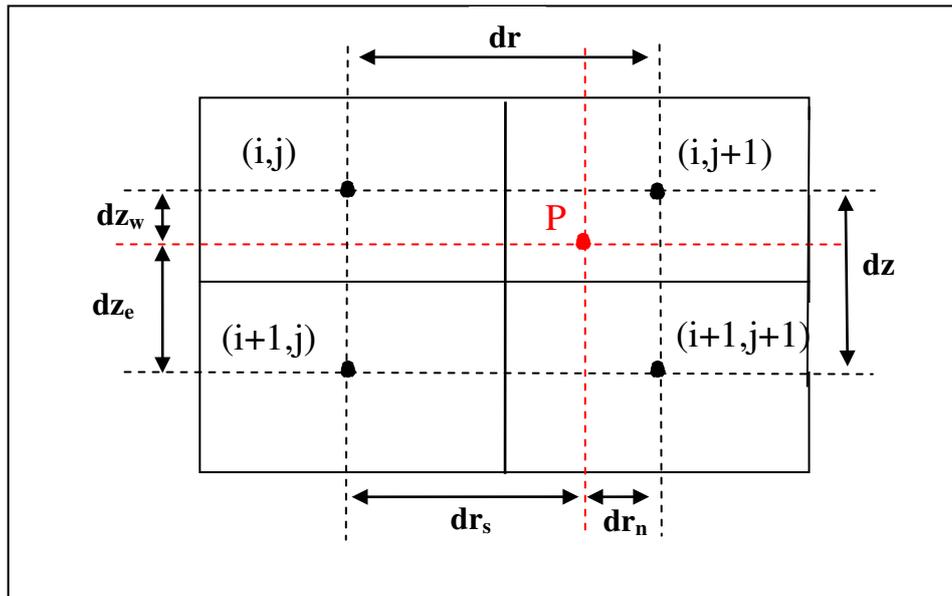


Figure 26 : Localisation P de l'inclusion dans le maillage de SOLAR.

A partir de la température et de la vitesse relative de l'inclusion par rapport au métal liquide, un calcul de dissolution est effectué et la nouvelle taille de l'inclusion ainsi que sa composition sont calculées. Ensuite, en utilisant la valeur du diamètre calculée, le modèle trajectographique détermine la vitesse et la position de l'inclusion. Toutes ces étapes sont répétées à chaque pas de temps jusqu'à dissolution complète, ou lorsque la particule atteint le solide. Afin de déterminer exactement le moment de l'impact avec le front de solidification, la distance entre l'inclusion et le front est calculée à chaque pas de temps. La méthode employée pour réaliser ce calcul est décrite dans l'annexe B.

L'équation différentielle qui exprime le bilan de forces s'exerçant sur la particule est résolue à l'aide d'un schéma explicite. Pour assurer une bonne stabilité des calculs, le pas de temps du modèle trajectographique Δt_{traj} doit être inférieur à τ_p , le temps de relaxation de la particule. τ_p (ou temps de réponse dynamique) représente le temps nécessaire à la particule pour réagir aux sollicitations du fluide environnant. Il prend la forme suivante :

$$\tau_p = \left(\frac{\rho_p}{\rho_f} + \frac{1}{2} \right) \frac{4d_p}{3C_D V_{rel}}$$

Si $\Delta t_{traj} > \tau_p$ on risque de ne pas prendre en compte correctement l'effet de l'inertie de la particule sur sa trajectoire. Le temps de relaxation des inclusions hard- α dans le puits liquide du procédé VAR est largement inférieur au pas de temps de SOLAR (typiquement de l'ordre de 10^{-1} s) qui s'avère par contre généralement suffisant pour les calculs de dissolution. Plusieurs calculs trajectographiques doivent par conséquent être réalisés pour un seul calcul de dissolution.

III.3.3. Evolution de la masse volumique du fluide

L'influence non négligeable de la densité relative (entre la particule et le fluide) sur la trajectoire d'une inclusion hard- α sera mise en évidence dans le paragraphe III.5.3. Il est

donc nécessaire de représenter correctement ce paramètre en tenant spécifiquement compte de la variation de la masse volumique du métal liquide avec la température.

Pendant la refusion, la carte de température dans le puits liquide, dont un exemple typique est représenté sur *Figure 27*, montre une différence d'environ 50°C entre la surface chauffée par l'arc (à environ 1720 °C) et le front de solidification, à une température proche du liquidus (1670 °C). La *Figure 28* illustre l'évolution de la masse volumique du titane entre ces deux limites.

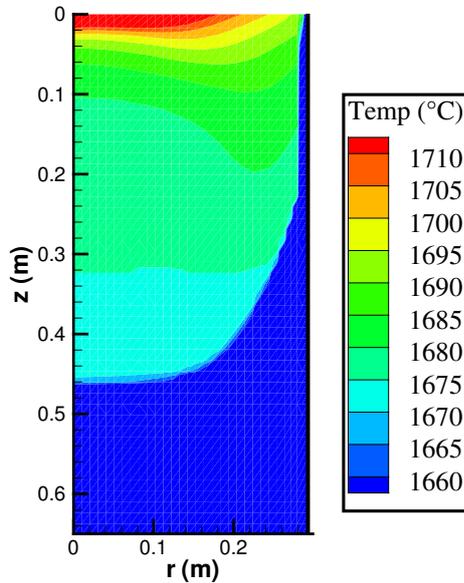


Figure 27. Carte de température dans le puits d'un lingot VAR.

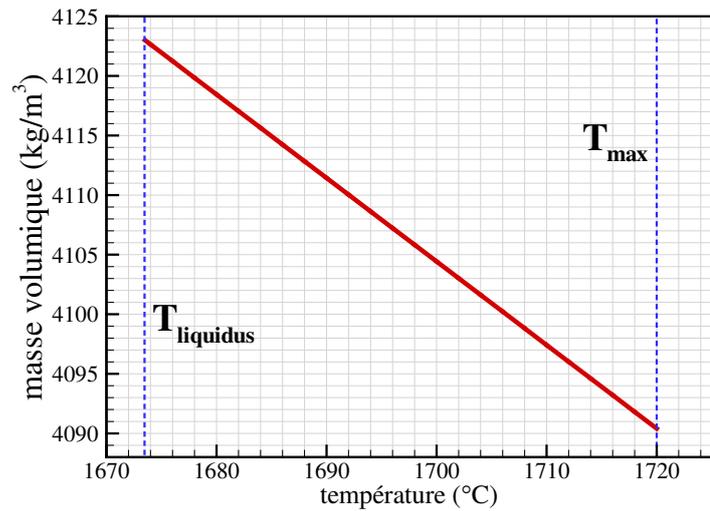


Figure 28. Evolution de la masse volumique du titane.

Pour les calculs de trajectoire, la masse volumique du fluide sera ainsi déterminée à chaque pas de temps en fonction de la température de la maille où se trouve l'inclusion à l'aide de l'expression suivante:

$$\rho_f = \rho_m (1 - \beta(T - T_m))$$

ρ_f est la densité de l'alliage à la température T , ρ_m est la densité de l'alliage à la température de liquidus T_m (prise comme référence) et β le coefficient d'expansion thermique volumique. Dans les calculs présentés ci-dessous, nous avons utilisé les valeurs suivantes pour ces paramètres : $\rho_m = 4123 \text{ kg/m}^3$, $T_m = 1673,5 \text{ °C}$ et $\beta = 1,7 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. Ils correspondent au cas du titane liquide pur.

III.4. Données nécessaires au modèle

Les données principales du modèle couplé dissolution-trajectoire peuvent être divisées en deux catégories : les propriétés initiales de l'inclusion, introduites par l'utilisateur au début du calcul, et les caractéristiques thermo-hydrodynamiques du bain liquide, fournies par SOLAR en cours de calcul. Ces données sont résumées dans le *Tableau 4*.

Tableau 4. Principales données du modèle trajectoire-dissolution.

Données provenant des calculs SOLAR	Données introduites par l'utilisateur:
Température du métal liquide	Épaisseur de chacune des phases constituant le défaut initial
Vitesse du métal liquide	Densité de l'inclusion
Taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente	Titre initial en azote de l'inclusion
Position du front de solidification	Concentrations à l'équilibre des phases α , β et liquide en fonction de la température
	Coefficients de diffusion de l'azote dans chacune des phases en fonction de la température
	Masse volumique de chacune des phases
	Position radiale d'immersion
	Moment précis de l'immersion

Pour toute information concernant le code SOLAR et ses données d'entrée, qui regroupent les propriétés physiques de l'alliage refondu, les conditions opératoires de la fusion et les paramètres numériques de la simulation, nous conseillons au lecteur de se référer aux thèses de Hans [1] et de Quatravaux [3].

III.5. Résultats des simulations

III.5.1. Introduction

Dans ce paragraphe, nous présentons des résultats du modèle illustrant le comportement de différentes inclusions HID provenant de l'électrode et immergées dans le puits liquide d'un lingot VAR. Les inclusions sont donc introduites "numériquement" à la surface du lingot secondaire avec une vitesse nulle.

Les simulations réalisées sont basées sur des conditions opératoires correspondant à une triple refusion industrielle, dont les principales caractéristiques sont résumées dans le *Tableau 5*.

Tableau 5. Conditions opératoires de la triple refusion simulée.

	Refusion 1	Refusion 2	Refusion 3
Rayon Electrode (m)	0,2413	0,292	0,3302
Rayon Lingot (m)	0,292	0,3302	0,381
Hauteur Lingot (m)	2,714	2,123	1,595
Brassage	alterné, 20 s	alterné, 60 s	alterné, 20 s

Comme nous le verrons, le comportement d'une inclusion dépend à la fois de ses caractéristiques propres (taille, masse volumique, titre en azote, position initiale) et de celles du bain de titane liquide.

Dans la première partie de cette section, nous réaliserons une étude paramétrique sur une refusion unique, choisie parmi les trois refusions du *Tableau 5*. Ensuite, nous présenterons les résultats des calculs effectués pour prédire le comportement d'une inclusion au cours du cycle complet des trois refusions successives.

III.5.2. Influence du comportement hydrodynamique et thermique du bain

La densité des inclusions étant proche de celle du titane, leur trajectoire sera globalement dictée par le mouvement du métal liquide et dépendra ainsi largement des conditions opératoires. Bien que le mouvement centrifuge à la surface libre soit généralement prédominant, les boucles de recirculation qui apparaissent dans le lingot ne gardent pas le même sens et la même forme tout au long de la fusion à cause du brassage électromagnétique alterné. En effet, le comportement hydrodynamique du bain dépend de l'action conjuguée de trois forces : la convection naturelle, les forces électromagnétiques et la force centrifuge due au mouvement orthoradial créé par le brassage [44-48]. Ainsi, une inclusion peut avoir une trajectoire différente selon le moment où elle pénètre dans le puits.

Pour illustrer cet effet, nous avons représenté les trajectoires de trois inclusions similaires (inclusion 1, inclusion 2 et inclusion 3) introduites à la même position mais à trois instants différents t_1 , t_2 et t_3 séparés par des intervalles de 2 secondes. Les conditions opératoires utilisées sont celles de la refusion 1, caractérisée par un brassage alterné de courte période, ce qui implique une évolution rapide de l'écoulement du bain. Les trois inclusions possèdent un diamètre initial de 1 mm, une densité relative de 1,02 et une composition initiale homogène en azote s'élevant à 5% en masse. Elles sont introduites à 12 cm du centre du lingot. Notons que la densité relative est définie comme le rapport entre la masse volumique de l'inclusion et celle du liquide, à la température de liquidus.

Les *Figures 29, 31 et 33* représentent la trajectoire projetée dans le plan (r,z) de chaque inclusion, depuis son arrivée à la surface du puits jusqu'à sa capture dans la zone pâteuse. Dans ces figures, seule la partie liquide du lingot est représentée et la zone pâteuse est indiquée par les deux iso-contours de fraction liquide 0,1 et 0,99. Le champ des vecteurs vitesses dans le plan (r,z) au moment de l'introduction des inclusions dans le lingot est aussi visible. Les différences spectaculaires observées entre les trois écoulements instantanés sont dues à la force centrifuge périodique associée au brassage alterné.

Les *Figures 30, 32 et 34* sont pour leur part des "vues de dessus" des trajectoires tridimensionnelles. Dans ces schémas, ainsi que dans les schémas montrant la trajectoire dans le plan (r,z) , les symboles correspondent à des positions de l'inclusion séparées par un intervalle de 2 secondes.

Le changement du sens de la trajectoire de l'inclusion observé sur les *Figures 30 et 34* est dû au brassage électromagnétique. En effet, l'inclusion 1, par exemple, subit 2 fois l'alternance du brassage et donc l'inversion du sens du mouvement orthoradial du fluide, environ 10 secondes puis 30 secondes après son introduction. Ce n'est pas le cas de l'inclusion 2 qui est capturée très rapidement (8 s) au niveau de la paroi latérale. L'inclusion 3, qui possède un temps de résidence de 25 secondes subit une seule fois l'inversion de l'écoulement orthoradial.

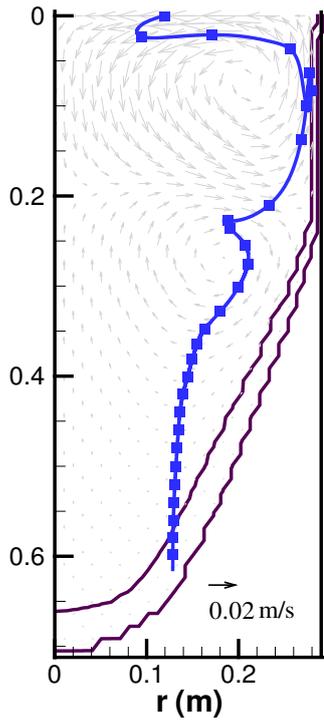


Figure 29. Trajectoire de l'inclusion 1 projetée dans le plan (r, z) et champ de vitesse de fluide au moment de l'introduction.

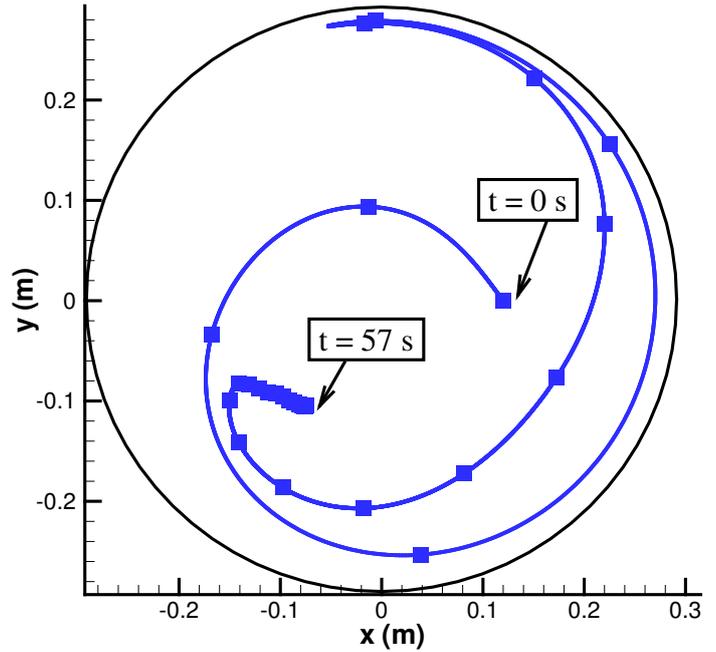


Figure 30. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion 1.

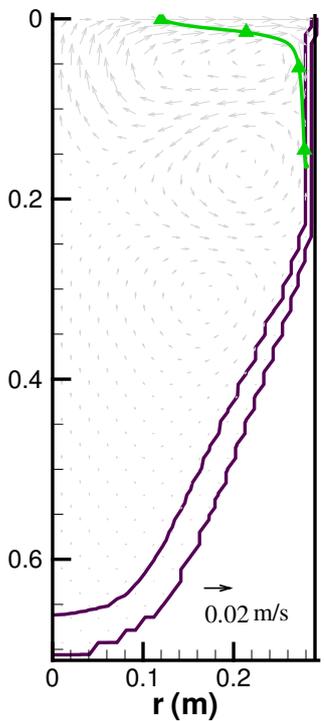


Figure 31. Trajectoire de l'inclusion 2 projetée dans le plan (r, z) et champ de vitesse de fluide au moment de l'introduction.

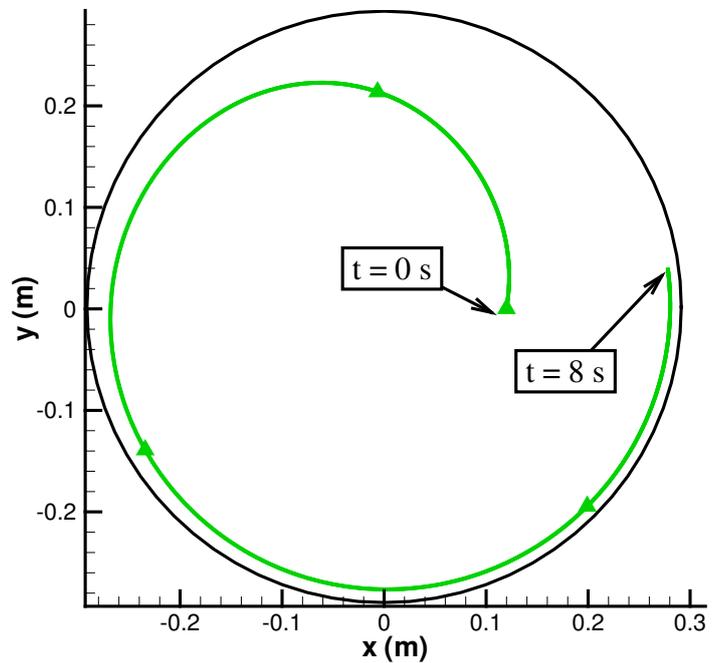


Figure 32. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion 2.

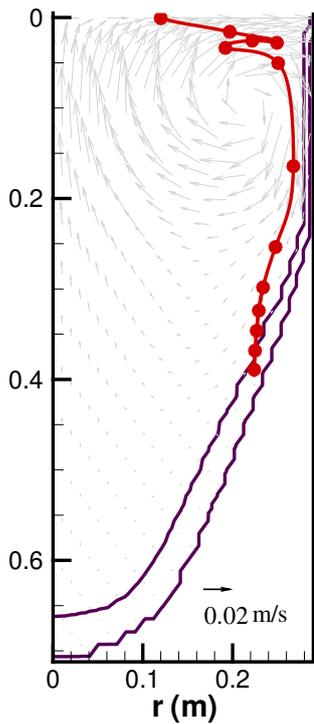


Figure 33. Trajectoire de l'inclusion 3 projetée dans le plan (r,z) et champ de vitesse de fluide au moment de l'introduction.

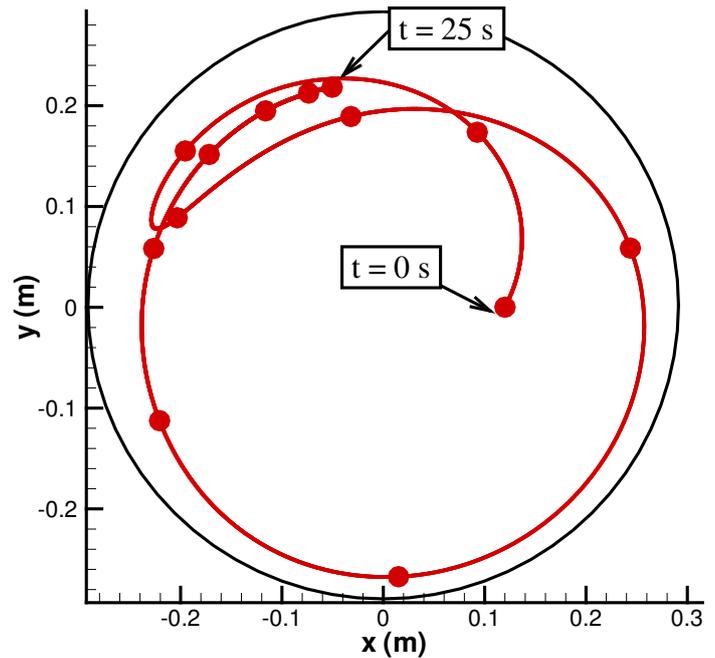


Figure 34. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion 3.

L'évolution, au cours du temps, du diamètre de chacune de ces inclusions est tracée sur la *Figure 35*. Les premiers instants correspondent à une augmentation de la taille des inclusions due à la croissance de la phase périphérique. On peut remarquer que, dans ce cas, aucune inclusion ne subit une grande variation de taille et que les 3 inclusions ont des diamètres finaux supérieurs à leur diamètre initial.

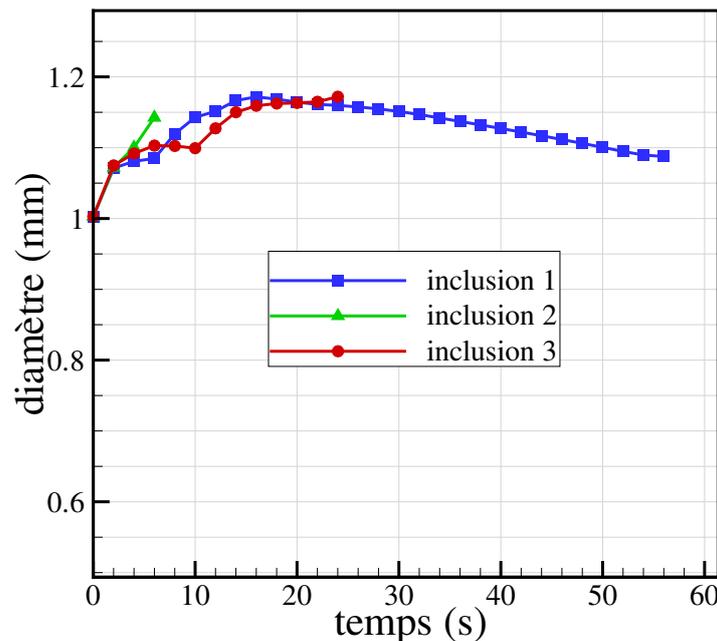


Figure 35. Evolution du diamètre des inclusions en fonction du temps.

Les *Figures 30 à 35* permettent de visualiser clairement la différence de comportement entre ces trois inclusions, tant au niveau de leur trajectoire dans le puits liquide, que de leur dimension finale. Comme on peut le constater, il est très difficile de prédire le comportement d'une inclusion lorsqu'un brassage électromagnétique alterné est appliqué, surtout si la période d'alternance est faible. L'utilisation d'un brassage unidirectionnel ou alterné avec une période d'alternance plus longue impliquerait une moindre importance sur le comportement d'une inclusion (et la détermination de sa position finale) du moment exact de son introduction dans le bain.

Par ailleurs, la position radiale d'immersion de l'inclusion qui provient de l'électrode et parvient au sommet du puits a aussi une grande influence sur sa trajectoire puisque le champ de vitesses n'est pas homogène. Sur la *Figure 36*, nous avons représenté la trajectoire projetée dans le plan (r,z) , de trois inclusions similaires (diamètre initial de 1 mm, densité relative de 1,02 et composition initiale homogène en azote s'élevant à 5% en masse) introduites à trois positions différentes de la surface, au même instant t_2 . Les positions initiales ainsi que le temps total de résidence sont indiqués dans le *Tableau 6*.

Une inclusion en provenance, par exemple, du bourrelet de l'électrode ou de la collerette (inclusion 6) sera entraînée par le mouvement centrifuge et parviendra très rapidement à proximité de la paroi latérale. Les inclusions 4 et 5 présentent un comportement différent puisqu'elles ont le temps de "plonger" dans le liquide et d'échapper au mouvement centrifuge à la surface (dans le cas d'une densité relative supérieure à 1).

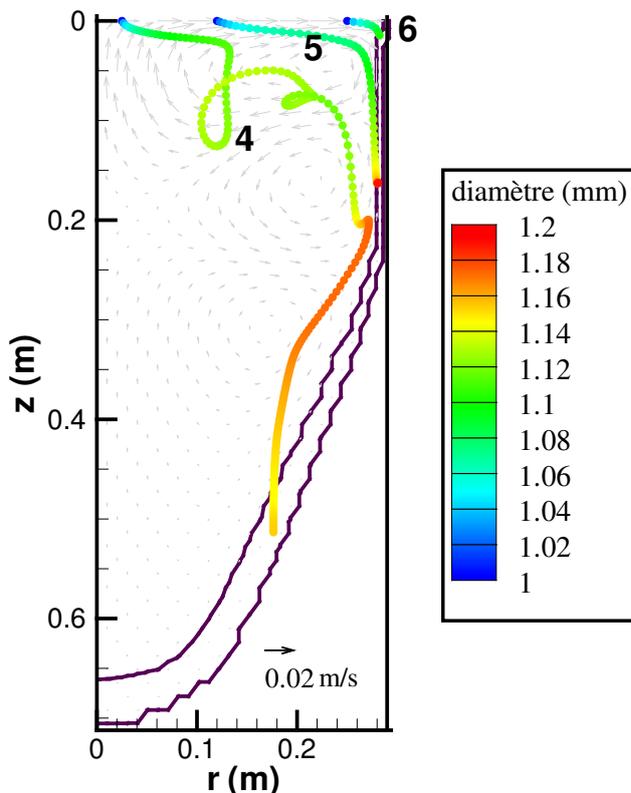


Tableau 6. Propriétés des inclusions simulées.

Inclusion	Position radiale initiale (cm)	Temps de résidence (s)
4	2	56
5	12	8
6	25	2

Figure 36. Trajectoire de trois inclusions similaires introduites en trois positions radiales différentes.

D'autres paramètres relatifs à la croissance et à la solidification du lingot peuvent aussi déterminer en partie la position finale de la particule. Citons en particulier la profondeur et la forme du front de solidification qui dépendent à leur tour des conditions opératoires et en particulier de la vitesse de fusion.

III.5.3. Influence des caractéristiques initiales de l'inclusion

Les caractéristiques initiales de l'inclusion influencent à la fois sa trajectoire dans le puits liquide et sa cinétique de dissolution. En effet, le diamètre et la masse volumique jouent un rôle déterminant dans l'expression des différentes forces s'appliquant sur l'inclusion, alors que la teneur en azote est un paramètre important dans les calculs de dissolution. Nous avons par conséquent réalisé une étude paramétrique de l'influence de la densité, du diamètre initial et de la composition initiale de l'inclusion. Dans cette section, les conditions opératoires correspondent à la refusion 2 du *Tableau 5*.

Densité relative

La densité relative du défaut est un paramètre primordial pour l'estimation de la trajectoire puisqu'elle va déterminer la possibilité de flottaison ou de chute de la particule.

Comme nous l'avons vu plus haut, la densité d'une inclusion réelle est fonction de sa porosité, de la proportion de pores infiltrés par du métal liquide, de la masse volumique de la partie dense de la particule et de la masse volumique du métal liquide. Hans [16] a caractérisé la densité relative d'un défaut hard- α poreux en calculant l'évolution de la masse volumique de trois éponges (faiblement poreuse, moyennement poreuse ou très poreuse) en fonction de leur teneur en azote. Il a estimé ces valeurs sur la base des mesures de porosité et des masses volumiques de l'alliage liquide et du titane nitruré solide. La *Figure 37* représente l'évolution de la densité relative de ces éponges immergées dans du Ti liquide à 1700°C. Cette figure met clairement en évidence qu'un défaut réel peut être plus léger, plus lourd ou de masse volumique très proche de celle du bain liquide. Dans les simulations, nous avons décidé de faire varier la densité entre les limites établies par Hans.

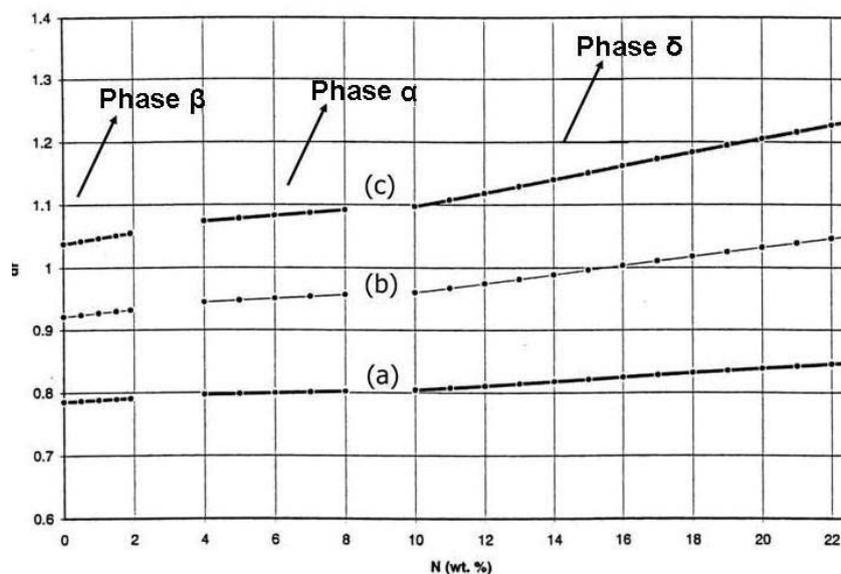


Figure 37. Evolution de la densité relative de trois inclusions de porosité différente en fonction de la teneur en azote, ((a) : particule très poreuse, (b) : particule de porosité moyenne, (c) : particule dense) [16].

Ci-dessous, nous présentons les résultats obtenus pour quatre inclusions possédant la même taille, mais de densités relatives différentes, variant entre 0,99 et 1,04, comme indiqué dans le *Tableau 7*.

Tableau 7. Caractéristiques des inclusions simulées.

	Densité Relative	Diamètre initial (mm)	Teneur initiale en N (% massique)
Inclusion 7	1,04	1	7
Inclusion 8	1,02	1	7
Inclusion 9	1,00	1	7
Inclusion 10	0,99	1	7

La *Figure 38* présente la trajectoire de chaque inclusion, projetée dans le plan (r,z) . L'inclusion 10, de densité relative inférieure à 1, demeure à la surface et est entraînée par le fluide jusqu'à atteindre la paroi latérale du lingot après 28 secondes. L'alternance du brassage est responsable du changement de sens de sa trajectoire (cf. *Figure 40*). Le comportement des inclusions de densité relative inférieure à 0,99, étant similaire, n'a pas été représenté.

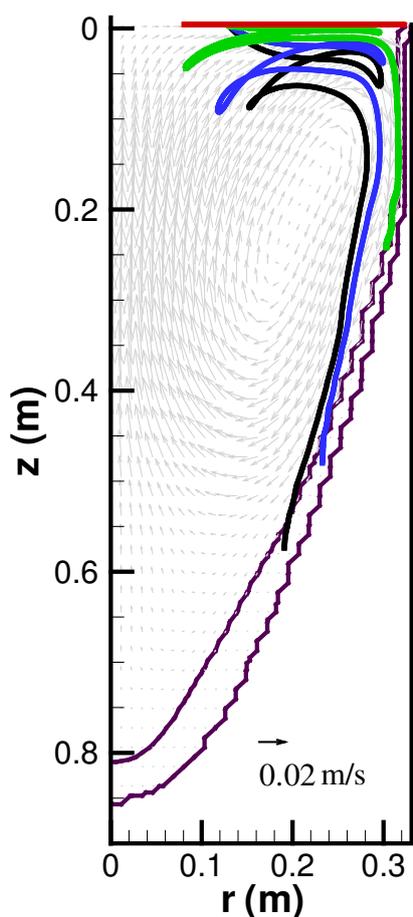


Figure 38. Trajectoire des inclusions 7, 8, 9 et 10 dans le plan (r,z) .

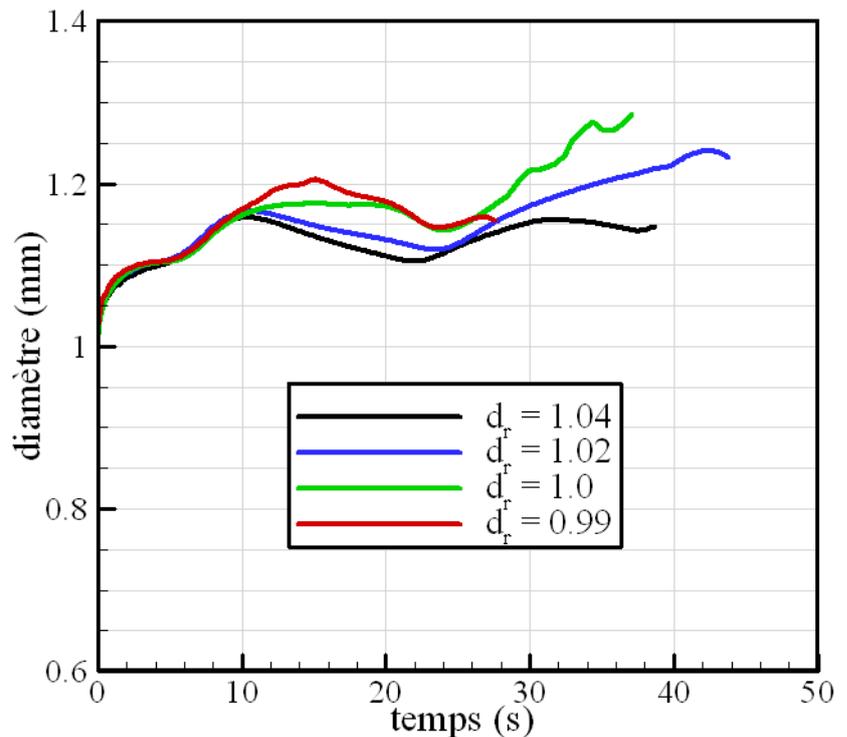


Figure 39. Evolution du diamètre des inclusions 7, 8, 9 et 10 en fonction du temps.

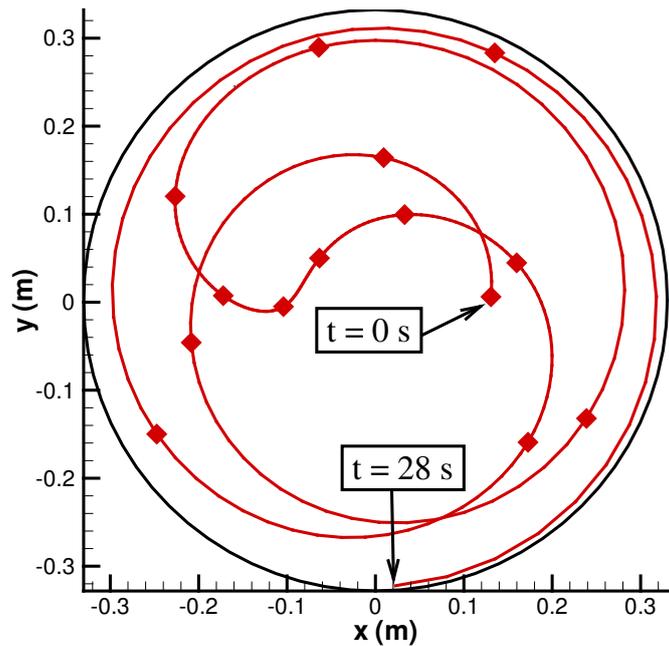


Figure 40. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion 10 (densité relative 0,99).

Les inclusions de densité relative égale ou supérieure à 1 échappent au mouvement centrifuge de la surface et plongent dans le métal liquide avant d'atteindre la zone pâteuse à une profondeur d'environ 25 cm pour l'inclusion de densité relative 1,00, 50 cm pour l'inclusion de densité relative 1,02 et 60 cm pour l'inclusion la plus lourde. Rappelons, que comme la densité relative est définie par rapport au liquidus, une inclusion de densité relative égale à 1 est plus lourde que le titane liquide à la surface. De manière générale, plus la densité de l'inclusion est élevée, plus elle a tendance à atteindre la zone pâteuse à des profondeurs importantes. L'évolution, au cours du temps, du diamètre de chacune des inclusions est tracée sur la *Figure 39*. Nous remarquons que, de nouveau, aucune inclusion n'a subi une variation de taille très importante. Le temps de séjour de chaque inclusion, son diamètre final ainsi que sa variation de diamètre sont listés dans le *Tableau 8*.

Tableau 8. Caractéristiques des inclusions après leur séjour dans le métal liquide

	Densité Relative	Diamètre initial (mm)	Temps de séjour (s)	Diamètre final (mm)	Variation de diamètre (%)
Inclusion 7	1,04	1	39	1,14	+ 14
Inclusion 8	1,02	1	44	1,23	+ 23
Inclusion 9	1,00	1	37	1,28	+ 28
Inclusion 10	0,99	1	28	1,15	+ 15

Diamètre initial

Les défauts HID sont généralement détectés par l'intermédiaire des fissures qu'ils induisent dans un lingot pendant les opérations de mise en forme. Il est donc difficile de prédire la taille initiale réelle de ces inclusions à partir des défauts retrouvés dans les lingots, qui ont été déformés et ont pu être partiellement dissous. Cependant, il est généralement admis qu'une inclusion hard- α possède une taille de l'ordre de quelques millimètres [10]. Nous avons donc

réalisé des calculs portant sur 5 inclusions de diamètre initial variant entre 200 μm et 3000 μm (Tableau 9).

Tableau 9. Caractéristiques des inclusions simulées.

	Densité relative	Diamètre initial (μm)	Teneur initiale en N (% massique)
Inclusion 11	1,02	200	7
Inclusion 12	1,02	500	7
Inclusion 13	1,02	1000	7
Inclusion 14	1,02	2000	7
Inclusion 15	1,02	3000	7

Sur la *Figure 42*, montrant l'évolution des diamètres au cours du temps, on peut observer que l'inclusion 11 est dissoute 15 secondes après son introduction. Toutes les autres inclusions ont survécu, et possèdent des comportements trajectographiques similaires qui sont représentés sur les *Figures 41* et *43*.

Pour les inclusions 13, 14 et 15, le diamètre initial n'a pas une grande influence sur la trajectoire. Toutes ces "grandes" inclusions atteignent la zone pâteuse dans la même région, à environ 45 cm de la surface. L'inclusion 12, de diamètre initial 500 μm , est pour sa part piégée à une profondeur de 25 cm. Le *Tableau 10* résume les caractéristiques de chacune de ces inclusions après son séjour dans le métal liquide.

Rappelons également que, lorsque la taille d'une inclusion est suffisamment faible (≤ 100 μm), l'application de notre modèle trajectographique avec correction du coefficient de traînée n'est plus valable en toute rigueur, puisque le diamètre de la particule est du même ordre de grandeur que l'échelle de Kolmogorov au centre du lingot.

Tableau 10. Caractéristiques des inclusions après leur séjour dans le métal liquide

	Diamètre initial (mm)	Temps de séjour (s)	Diamètre final (mm)	Variation de diamètre (%)
Inclusion 11	0,2	15	0	- 100
Inclusion 12	0,5	43	0,54	+ 8
Inclusion 13	1	44	1,23	+ 23
Inclusion 14	2	49	2,37	+ 18
Inclusion 15	3	50	3,49	+ 16

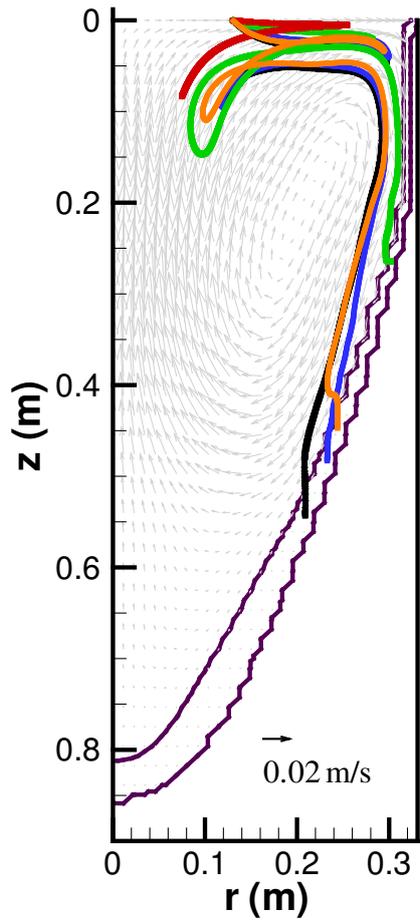


Figure 41. Trajectoire des inclusions 11, 12, 13, 14 et 15 dans le plan (r,z) .

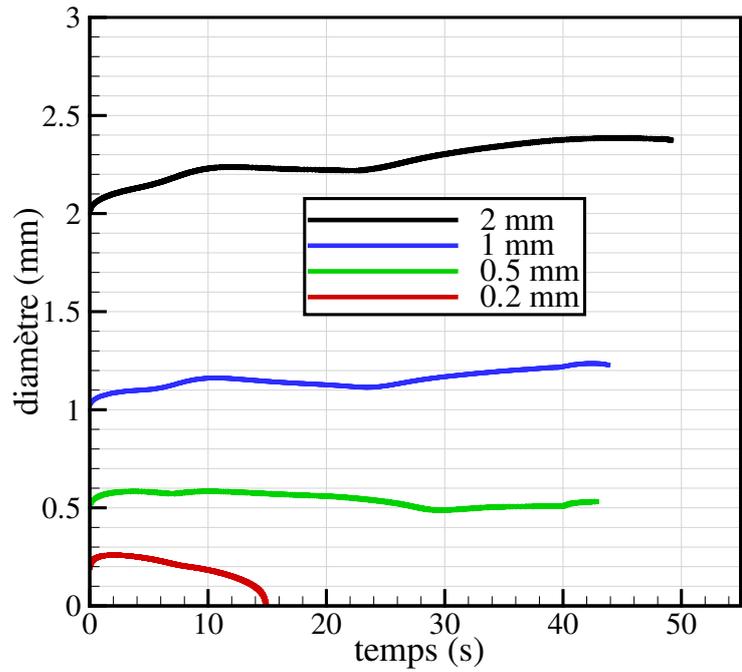


Figure 42. Evolution du diamètre des inclusions 11, 12, 13 et 14 en fonction du temps.

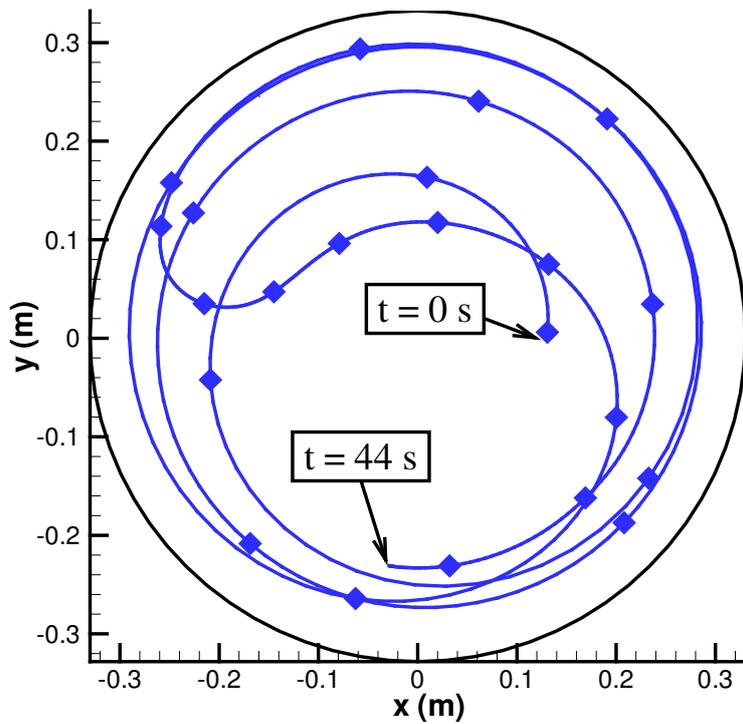


Figure 43. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion 13 (diamètre initial 1 mm).

Concentration initiale

Concernant la composition, des analyses effectuées par TIMET [11] sur différents défauts retrouvés dans leurs lingots VAR au cours des années indiquent que leur titre massique en azote varie entre 0,5 et 13 %. Dans nos calculs, nous avons simulé des défauts de titane nitruré constitués initialement de phase α , afin de nous limiter au cas d'inclusions diphasiques (α , β). Nous avons donc choisi des concentrations initiales en azote s'élevant à 5 et 7%.

L'influence de la teneur initiale en azote sur la cinétique de dissolution du titane nitruré a été discutée dans le *chapitre II*. Plus une inclusion est initialement riche, plus le temps nécessaire pour son élimination est important.

Comme la dissolution dans le métal liquide est un processus lent, les variations de diamètre au cours d'une seule refusion sont généralement limitées. D'après les observations du paragraphe précédent, il ne faut pas s'attendre à ce que de faibles variations de teneur initiale en azote affectent le comportement d'une inclusion de façon significative.

Cette conclusion est confirmée par la *Figure 44* qui compare la trajectoire de l'inclusion 1 (teneur égale à 5 % massique) à celle d'une inclusion légèrement plus riche en azote (7 %). La trajectoire n'est pratiquement pas modifiée par l'augmentation de la concentration initiale, alors que l'évolution de la taille de la particule, représentée sur la *Figure 45*, paraît légèrement plus affectée.

Dans cet exemple nous avons supposé que les deux inclusions possèdent la même densité. Rappelons par ailleurs, que la variation de densité de la particule due à l'évolution de composition n'est pas prise en compte dans le modèle.

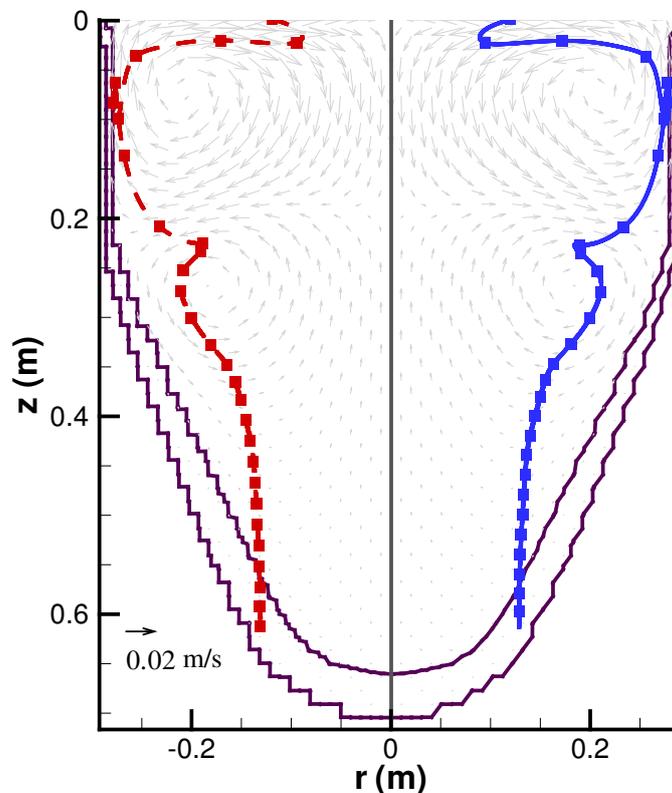


Figure 44. Comparaison entre la trajectoire de l'inclusion 1 (à droite) et de celle d'une inclusion légèrement plus riche en azote (à gauche).

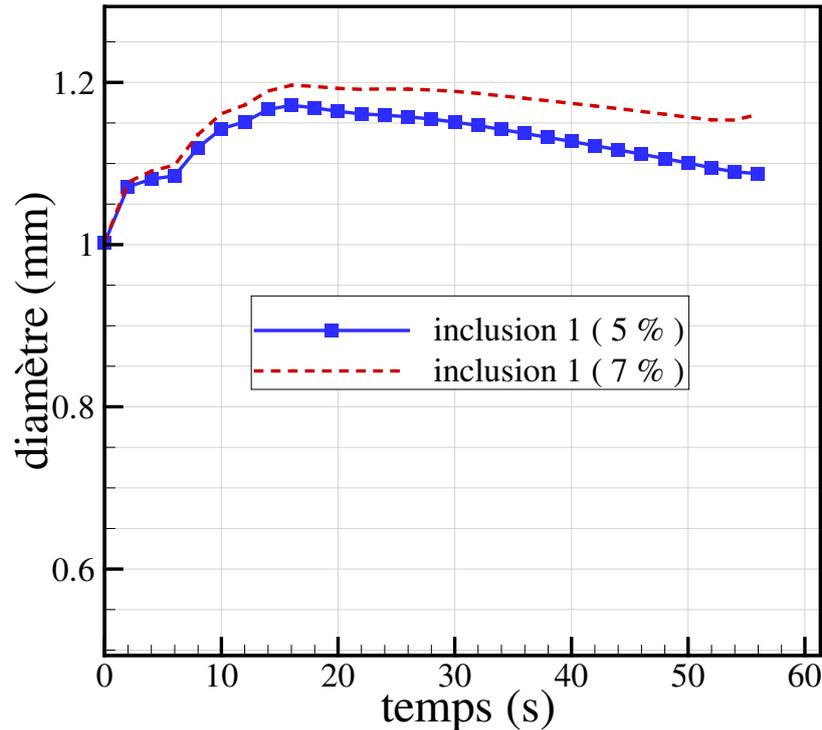


Figure 45. Evolution temporelle du diamètre de l'inclusion 1 et de celui d'une inclusion légèrement plus riche en azote.

III.5.4. Application à une triple refusion

Trois refusions VAR consécutives sont généralement utilisées pour élaborer les lingots de titane de haute qualité, dans le but d'améliorer leur homogénéité et de dissoudre les éventuelles inclusions. Après chaque refusion, le lingot secondaire est retourné puis utilisé comme une nouvelle électrode qui est à son tour refondue pour former un lingot de diamètre supérieur. Ainsi, une inclusion non éliminée pendant la première refusion peut subir une nouvelle dissolution pendant la refusion suivante. Il est donc important, afin de prédire la possibilité d'éliminer un défaut hard- α par le procédé VAR, de prendre en compte le cycle complet de trois refusions.

Ceci est réalisé de la manière suivante. A la fin de chaque simulation, quand l'inclusion est piégée dans le solide, les informations concernant ses caractéristiques sont enregistrées dans un fichier. Ces informations regroupent le maillage de l'inclusion (taille de chacune des phases) ainsi que le profil de concentration en azote (teneur en azote dans chaque maille). Ces données sont utilisées comme données d'entrée pour la refusion suivante. En effet, si la présence de la phase β n'était pas prise en compte au début d'une seconde ou troisième refusion, le modèle prédirait à nouveau une croissance de cette phase.

Il convient ici de rappeler que l'évolution de l'inclusion dans la zone pâteuse puis dans le lingot solidifié est considérée comme négligeable. En particulier, le refroidissement du lingot conduit à une transformation de phase β - α . De façon similaire, la transformation de phase α - β pendant le chauffage de l'électrode n'est pas considérée.

La position radiale d'immersion de l'inclusion dans le nouveau lingot correspond à sa position radiale dans l'électrode. En réalité, avant de tomber dans le lingot secondaire, une inclusion pourrait être entraînée par le film de métal liquide se formant à l'extrémité de l'électrode et subir une éventuelle dissolution. Comme le changement de phase dans le lingot solidifié, ce phénomène n'est pas pris en compte dans les simulations et la position radiale est conservée. Le moment précis de l'introduction de l'inclusion dans le nouveau lingot est déterminé à partir de la position axiale de l'inclusion dans l'électrode et de la vitesse de fusion.

Sur la *Figure 46*, nous avons tracé un exemple de trajectoires successives d'une inclusion (projetées dans le plan (r, z)) au cours d'une triple fusion (cf. *Tableau 5*).

La *Figure 47* montre l'évolution du rayon de chacune des phases constituant l'inclusion au cours du temps. Le défaut, de diamètre initial 1 mm, de teneur en azote 5% massique et de densité relative 1,02, est éliminé après un temps de dissolution total d'environ 175 s.

Pendant la première refusion (*Figure 46 (a)*), l'inclusion, introduite à 12 cm du centre du lingot, se trouve piégée au fond du bain liquide à une profondeur de 60 cm au bout de 70 s. Son temps de résidence pendant la deuxième refusion (*Figure 46 (b)*) est assez long (100 s), ce qui favorise sa dissolution. Au cours de la troisième refusion (*Figure 46 (c)*), l'inclusion possédant initialement une taille relativement faible est éliminée avant d'arriver au fond du lingot.

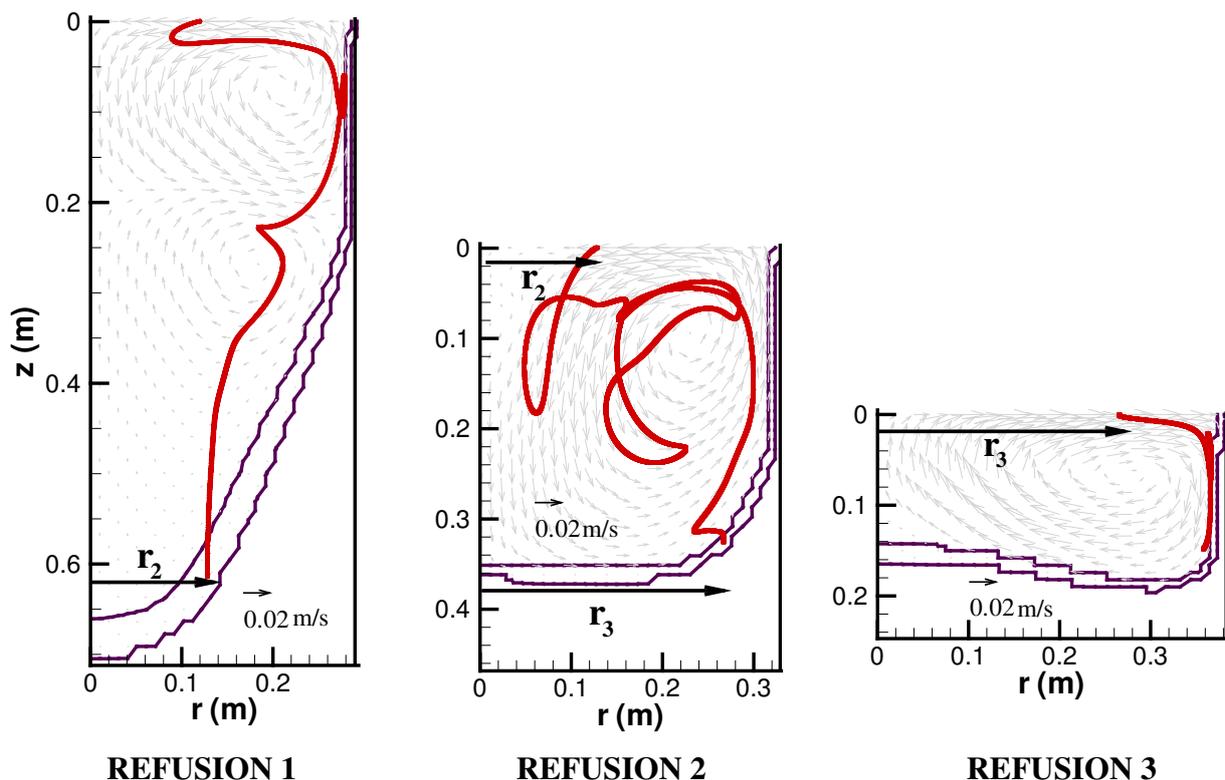


Figure 46. Trajectoire (projection dans le plan (r,z)) d'une inclusion ($d_r = 1,02$) dans le puits liquide des lingots de la : (a) 1ère refusion (b) 2ème refusion (c) 3ème refusion.

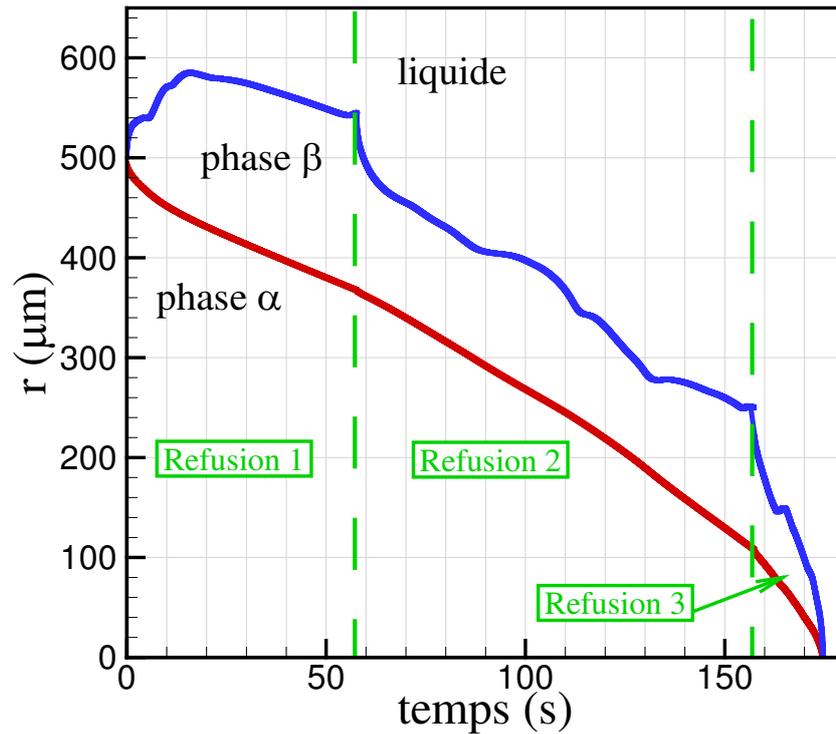


Figure 47. Evolution de la taille de chacune des phases au cours des trois refusions.

Un autre exemple d'application sur la même triple refusion est représenté sur les *Figures 48 et 49*. Dans ce cas, l'inclusion, identique à celle considérée dans l'exemple précédent, excepté en ce qui concerne sa densité relative, égale cette fois à 1,03, n'est pas éliminée.

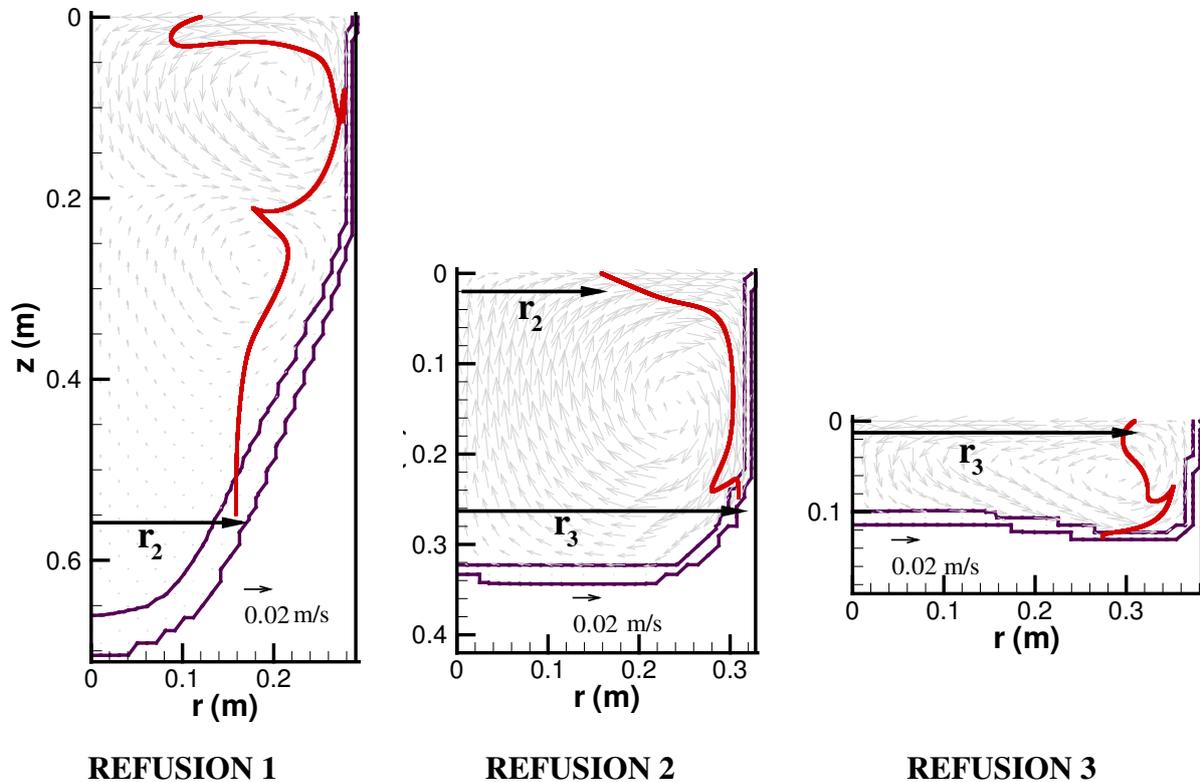


Figure 48. Trajectoire (projection dans le plan (r,z)) d'une inclusion ($d_r = 1,03$) dans le puits liquide des lingots de la : (a) 1ère refusion (b) 2ème refusion (c) 3ème refusion.

En effet, la profondeur finale de l'inclusion dans le lingot de la première refusion est inférieure à celle de l'exemple précédent. L'inclusion parvient alors à la surface du second lingot à un autre moment dans le cycle de brassage électromagnétique alterné. L'instant d'immersion dans ce lingot correspond ainsi à des conditions hydrodynamiques très différentes, et ne permet pas un temps de résidence suffisamment élevé.

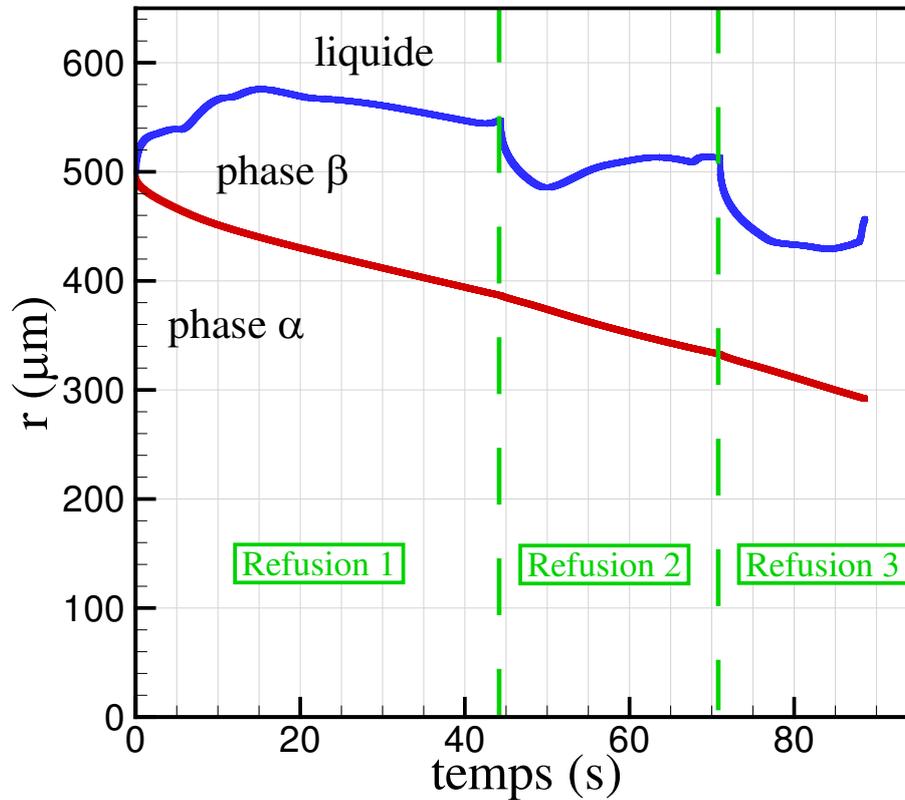


Figure 49. Evolution de la taille de chacune des phases au cours des trois refusions.

III.6. Conclusions

Un modèle mathématique décrivant le comportement d'une inclusion de titane nitruré dans le puits liquide d'un lingot VAR a été développé. Il associe la prédiction de la dissolution d'un défaut hard- α et le calcul de la trajectoire d'une inclusion sphérique. Il permet de prédire l'évolution de la taille d'une inclusion et de sa composition pendant son séjour dans le métal liquide en mouvement. Comme un lingot de titane est généralement obtenu après plusieurs refusions successives, le modèle est aussi capable de retracer l'histoire complète d'une inclusion au cours d'une double ou d'une triple refusion.

Plusieurs simulations ont été effectuées dans le but de mieux comprendre l'influence des conditions opératoires sur la possibilité d'éliminer les inclusions hard- α . Il s'avère difficile de tirer des conclusions générales concernant le comportement des inclusions, puisque celui-ci dépend de plusieurs paramètres : les conditions opératoires qui dictent le comportement thermo-hydrodynamique du bain ainsi que les propriétés propres de l'inclusion. Cependant, le modèle a montré, pour les conditions opératoires retenues dans ce travail, qu'il est impossible

d'éliminer une inclusion de taille supérieure à 300 μ m après une seule refusion. Le modèle prédit que, dans certains cas, une inclusion de diamètre initial 1 mm peut être totalement dissoute après une triple refusion.

L'intensité du brassage et surtout sa période déterminent pour une grande part la trajectoire d'une inclusion. Sa densité relative joue également un rôle primordial sur le comportement du défaut. Une meilleure connaissance de l'évolution de la masse volumique du défaut serait très profitable pour assurer une prédiction précise et réaliste du comportement inclusionnaire.

Pour étudier l'influence du couple diamètre-densité d'une particule sur sa trajectoire et pour étendre cette étude à d'autres types d'inclusions (HDI par exemple), nous avons développé des abaques simplifiés qui permettent de prédire les conditions dans lesquelles une inclusion de taille et de masse volumique donnée sera affectée par l'écoulement du métal liquide. Cette partie de l'étude fait l'objet de *l'annexe C*.

Dans ce chapitre, le défaut est considéré piégé par le métal solide dès son contact avec le front de solidification. Les développements ultérieurs concernant l'interaction de l'inclusion avec le front de solidification sont présentés en *annexe D*. Plus spécifiquement, nous étudions l'effet de la proximité de la paroi sur le mouvement de la particule et nous introduisons un module décrivant le roulement et glissement de l'inclusion sur le front dendritique, dans le cas d'une solidification colonnaire.

Notre modèle suppose que la force de séparation électromagnétique, la force de gradient de pression et le terme d'histoire de Basset sont négligeables. Bien que cette hypothèse soit bien justifiée dans les cas de ces deux dernières forces, des analyses ont montré que la force de séparation électromagnétique peut, dans des cas particuliers, influencer la trajectoire de l'inclusion. La prise en compte de cette force constitue alors une des perspectives du modèle.

Finalement, rappelons que les cinétiques de dissolution calculées à l'aide de notre modèle dépendent largement des concentrations à l'équilibre imposées comme conditions de Dirichlet aux interfaces du système (cf. *chapitre II*). Les cinétiques prédites sont spécifiques à la base de données choisie et peuvent varier énormément si une source différente est utilisée. Des études thermodynamiques sur le système titane-azote seront nécessaires afin d'obtenir des résultats précis.

Chapitre IV

Dissolution de défauts HDI dans Ti liquide – Etude expérimentale

IV.1. Introduction

La présence d'inclusions riches en tungstène, molybdène ou niobium est parfois observée dans les lingots industriels de titane. Les travaux présentés dans ce chapitre ont pour but d'étudier le comportement de défauts HDI dans un bain de titane liquide et en particulier de mesurer leur cinétique de dissolution. Précisons qu'à notre connaissance, hormis les études de Garrat et Neal [24] et Yamanaka et Ichihashi [30], il n'existe pas dans la littérature de travaux concernant la dissolution des défauts HDI dans le titane.

Les inclusions HDI demeurent solides à la température de fusion du titane (cf. *Tableau 1* dans le *chapitre D*); leur élimination s'effectuera donc, comme pour les défauts hard- α , par dissolution et non par fusion thermique.

Dans ce chapitre, nous étudions le comportement de défauts de tungstène et de molybdène, à l'aide d'une approche essentiellement expérimentale. Cette approche repose sur la réalisation d'expériences de dissolution partielle de petits cylindres de tungstène et de molybdène dans un bain de titane liquide, pendant des intervalles de temps bien contrôlés. Les expériences ont été effectuées dans des bains de titane pur et de deux alliages de titane (dont les principaux composants sont exposés dans le *Tableau 11*). Au cours de certaines expériences (expériences dite de "trempage"), le défaut a été retiré du bain avant la solidification de ce dernier, afin de permettre une mesure précise de la taille résiduelle du défaut et de sa vitesse de dissolution. Par ailleurs, un second type d'expériences (nommées expériences de "maintien"), consistant à ne pas retirer le défaut avant la solidification du bain, a permis de mesurer les profils de concentration des différents éléments à proximité du défaut.

Tableau 11. Principaux composants des alliages utilisés au cours des expériences de dissolution.

Ti CP (wt %)	TA6V (wt %)	Ti 17 (wt %)	
Ti \approx 100	Al : 6 V : 4 Ti : bal.	Mo : 4 Zr : 2 Cr : 4	Al : 5 Sn : 2 Ti : bal.

Ce chapitre est principalement consacré à la présentation des résultats provenant de ces deux types d'expériences. Par ailleurs, pour compléter et mieux interpréter les résultats de l'étude expérimentale, le modèle de dissolution des défauts hard- α présenté dans le *chapitre II* a été adapté pour décrire la dissolution de défauts de tungstène et de molybdène. La présentation de

ce modèle et son utilisation pour simuler les expériences réalisées dans cette étude font l'objet de la dernière section du chapitre.

IV.2. Expériences de dissolution

IV.2.1. Description des expériences

Les expériences de dissolution ont été réalisées dans le four de fusion à bombardement électronique (BE) du laboratoire, qui est muni d'un canon à électrons de puissance maximale 100 kW. Un bain de titane (Ti CP, TA6V ou Ti17 fourni par Timet Savoie), formé dans une lingotière hémisphérique, de diamètre 16 cm, est chauffé et maintenu à l'état liquide à l'aide du faisceau d'électrons impactant sa surface. Le faisceau d'électrons balaye la surface du bain en décrivant un motif en forme de "U". La région de la surface du bain située entre les deux branches du motif en "U" est utilisée comme zone d'immersion des défauts, comme nous le verrons dans la section suivante.

Les défauts synthétiques utilisés pour l'étude de la dissolution des HDI sont des cylindres de tungstène pur ou de molybdène pur, de diamètre 4 mm et de hauteur environ 3 cm (*Figure 50*).

Comme on l'a vu plus haut, deux types d'expériences ont été réalisés :

A. Les expériences dites de "trempage" consistent à plonger verticalement le cylindre, suspendu à l'extrémité d'une canne en tungstène, dans le bain de titane liquide. Après le temps de résidence souhaité, le cylindre est retiré à l'aide de la canne. Précisons que seule une partie de l'échantillon est immergée dans le métal liquide, tel que schématisé sur la *Figure 51*. En procédant ainsi, nous évitons la dissolution du fil de tungstène qui est utilisé pour maintenir l'échantillon attaché à la canne.

A la différence du second type d'expériences (expériences dites de "maintien"), dans lesquelles le bouton (bain solidifié) doit être découpé pour examiner l'échantillon partiellement dissous, ce type d'expérience permet d'effectuer des mesures directement sur le défaut résiduel, en dehors du bouton. Le seul inconvénient provient du fait que le temps d'immersion de l'échantillon est limité. En effet, la dissolution du cylindre au niveau de la surface libre du bain, beaucoup plus rapide que la dissolution du reste du cylindre comme nous le verrons plus tard, peut causer la rupture du cylindre si la durée de maintien dans le liquide est trop longue (supérieur à environ 3 minutes pour nos conditions expérimentales).

B. Les expériences de "maintien" sont similaires aux expériences de "trempage". La seule différence consiste à laisser l'échantillon dans le bain après coupure du faisceau et solidification du système. Ce type d'essai permet, après découpe du bain de métal solidifié, d'étudier les gradients locaux de composition dans la zone au voisinage du défaut et plus généralement l'interaction entre le défaut et le titane liquide.

En cours d'expérience, la température en surface du métal liquide à la position d'immersion du défaut est mesurée à l'aide d'une caméra infrarouge (FLIR SC3000). Par ailleurs, le

déroulement de l'expérience est filmé à l'aide d'une caméra haute définition (Sony Tri CCD HD) afin de déterminer précisément le temps de dissolution. Les vidéos enregistrées permettent également de mieux observer le comportement du défaut lors du processus d'immersion.

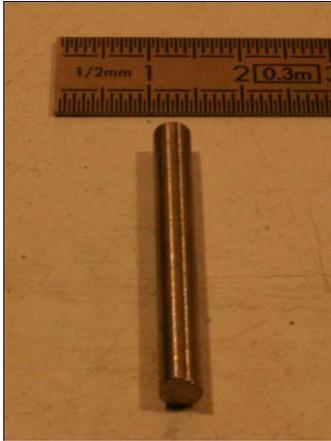


Figure 50. Cylindre de tungstène utilisé lors des expériences de dissolution.

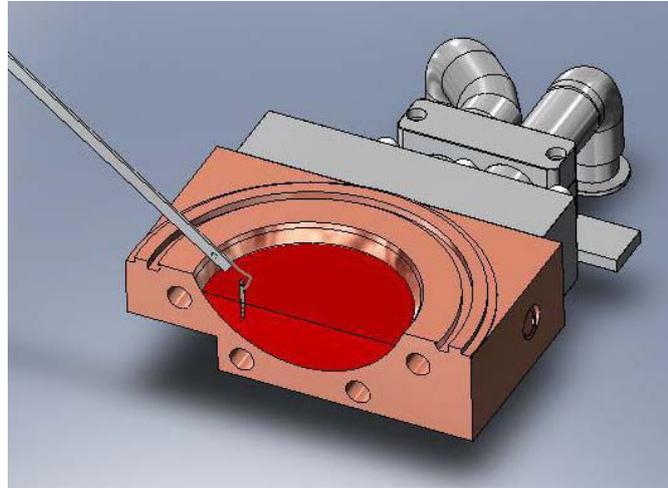


Figure 51. Schéma représentant l'immersion d'un défaut cylindrique dans un bain de titane liquide.

IV.2.2. Zone d'immersion des défauts au sein du bain métallique

L'évaluation de la forme et de la taille du bain liquide créé au sein du creuset hémisphérique nécessite une bonne connaissance des conditions thermiques au sein du bain et de l'écoulement global du métal. Or, l'écoulement du métal au sein du bain est relativement complexe. Il combine des mouvements de convection naturelle d'origine thermique et des mouvements de convection thermocapillaire (effet Marangoni) provoqués par les gradients thermiques importants en surface du bain. De plus, l'écoulement du métal est tridimensionnel en raison de l'asymétrie de la distribution de puissance apportée par le faisceau d'électrons à la surface du bain.

Afin d'étudier la géométrie du bain liquide au cours de nos expériences, un bouton de TA6V a été découpé en plusieurs fragments et la frontière entre le bain liquide et le talon de métal resté solide en cours d'expérience a été marquée. En effet, la différence de microstructure entre ces deux régions permet de les délimiter facilement à l'œil nu et d'identifier ainsi le profil du puits liquide. A partir de ces fragments, une reconstruction 3D du bain a été réalisée. Elle est représentée sur la *Figure 52*. Le motif en "U" du faisceau d'électrons adopté lors des expériences de dissolution est également schématisé sur cette figure. Remarquons que la profondeur du bain est maximale au niveau de la zone d'immersion de l'échantillon entre les deux branches du motif en "U". Cette profondeur plus importante est due aux mouvements convectifs du métal en surface qui tendent à ramener le fluide au centre du motif en "U". Ces mouvements en surface du métal liquide peuvent être observés à l'œil nu pendant le déroulement de l'expérience.



Figure 52a. Exemple de coupe verticale d'un bouton solidifié de TA6V et de localisation à posteriori de l'interface entre le bain liquide et le talon de métal solide.

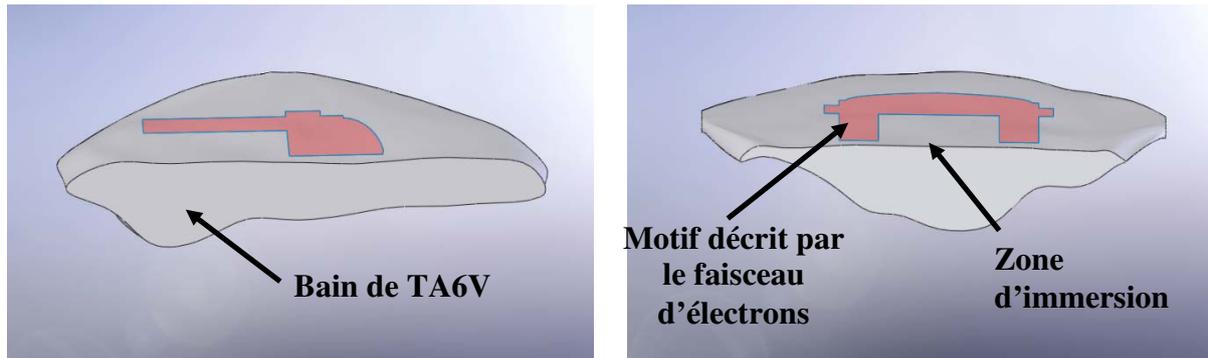


Figure 52b. Coupe verticale du bain de TA6V et motif du faisceau d'électrons en surface du bain.

La reconstruction d'un bain de titane pur a été aussi réalisée. Dans ce cas, le profil du bain liquide s'avère plus difficile à localiser sur les macrographies, à cause de l'absence d'éléments d'alliage. De ce fait, une petite quantité de poudre de fer a été ajoutée au bain au cours d'une expérience pour marquer le fond du bain. La forme du bain observée dans le cas du titane pur est similaire à celle obtenue dans le cas du TA6V. En revanche, la zone d'immersion dans le cas du titane pur est légèrement moins profonde que dans le cas du TA6V. La profondeur maximale du bain mesurée dans le cas du titane pur s'élève à 2,5 cm contre 2,7 cm dans le cas du TA6V.

IV.2.3. Conditions opératoires et paramètres des expériences réalisées

A. Expériences de "trempage"

Le *Tableau 12* résume les paramètres des différentes expériences de "trempage" qui ont été réalisées en utilisant des cylindres en tungstène uniquement. La deuxième colonne du tableau indique l'alliage qui a servi pour former le bain métallique. Les temps de maintien dans le liquide (mesurés d'une manière précise en analysant l'enregistrement de la vidéo HD de chaque expérience) sont listés dans la troisième colonne. La température de la surface du bain à la position d'immersion du défaut, mesurée à l'aide d'une caméra infrarouge, s'élève à 1810 °C (± 10 °C) pour toutes les expériences.

Tableau 12. Liste des expériences de "trempage" réalisées avec des défauts de tungstène.

Echantillon	Bain métallique	Temps de contact avec le liquide (s)
W1	Ti CP	110
W2	Ti CP	124
W3	Ti CP	56
W4	Ti CP	116
W5	TA6V	58
W6	TA6V	89
W7	TA6V	156
W8	TA6V	155
W9	Ti 17	125
W10	Ti 17	151
W11	Ti 17	122
W12	Ti 17	94

B. Expériences de "maintien".

Les paramètres des expériences de "maintien" réalisées sont résumés dans le *Tableau 13*. Deux cylindres de tungstène et deux cylindres de molybdène ont été introduits dans des bains de Ti CP et TA6V. Comme dans les expériences de "trempage", la température de la surface du bain à la position de l'échantillon s'élève à 1810 °C (± 10 °C).

Tableau 13. Liste des expériences de "maintien" réalisées avec des défauts de tungstène et de molybdène.

Echantillon	Bain métallique	Temps de contact avec le liquide (s)
W13	Ti CP	162
W14	TA6V	160
Mo1	Ti CP	60
Mo2	TA6V	61

IV.2.4. Procédure de dépouillement

A. Expériences de "trempage"

A l'issue d'une expérience de dissolution, le cylindre de tungstène partiellement dissous est érodé progressivement suivant son axe de symétrie. Le diamètre résiduel est mesuré à différentes positions le long de son axe sur des images des sections transverses du cylindre obtenues par microscopie optique avec un pas d'environ 500 μm entre deux points de mesure. Dans le cas où la section observée n'était pas circulaire, le petit axe de l'ellipse a été choisi comme diamètre résiduel. Pour chaque point de mesure, la vitesse moyenne de dissolution a été calculée de la manière suivante :

$$V = \frac{d_i - d_f}{2t}$$

où d_i est le diamètre initial du cylindre (4 mm),

d_f est le diamètre résiduel du cylindre partiellement dissous,
 t est le temps total de résidence dans le liquide.

B. Expériences de "maintien"

Les boutons de métal solidifié provenant des expériences de "maintien" ont été analysés au cours d'un stage d'élève-ingénieur à Timet Witton, en Angleterre (stage de J. Hector de 06/2008 à 09/2008) [49]. Au cours de ce stage, des radiographies X des boutons ont tout d'abord été effectuées afin de déterminer de manière non invasive la position des défauts de tungstène et de molybdène dans le bain solidifié. La grande différence de densité entre le titane et les défauts HDI permet en effet d'obtenir un bon contraste sur l'image de rayons X et donc une bonne visibilité des défauts, comme le montre la *Figure 53*. Ayant repéré la position et l'orientation des défauts, chaque bouton a été découpé perpendiculairement à l'axe de symétrie du défaut de manière à assurer une mesure précise des dimensions du défaut partiellement dissous.

Quatre plans de coupe ont été sélectionnés perpendiculairement à l'axe de chaque cylindre (sauf pour le bouton Mo1, sectionné cinq fois) de la façon schématisée sur la *Figure 54*.

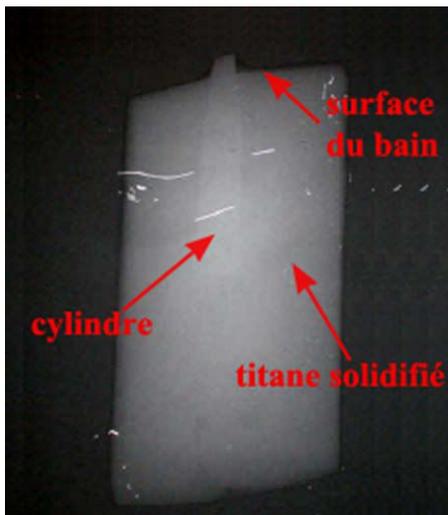


Figure 53. Exemple de radiographie X montrant un cylindre entouré par du titane solide après le découpage du bain.

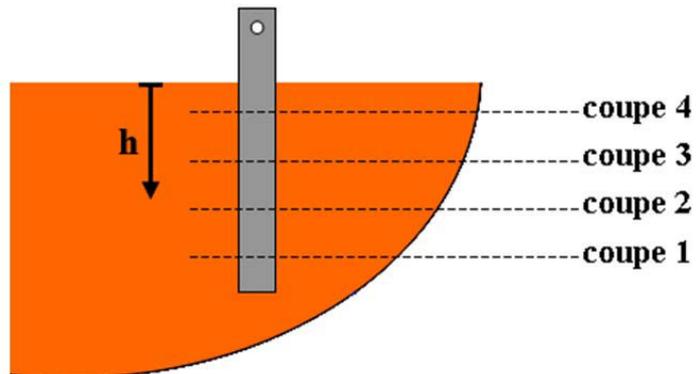


Figure 54. Schéma représentant les quatre plans de coupe du défaut résiduel.

La section de l'échantillon provenant de chaque plan de coupe a été ensuite montée sur un microscope électronique à balayage. Dans le but d'étudier la zone de diffusion au voisinage du défaut, les concentrations des différents éléments présents ont été mesurées (MEB-EDS) le long de lignes de longueur 150 μm en partant du bord du cylindre dans la direction du titane solidifié. Trois lignes de mesures ont été effectuées sur chaque coupe, comme symbolisé sur la *Figure 55*. 40 points de mesures ont été pris sur chacune de ces lignes. Les diamètres résiduels de l'échantillon ont été aussi mesurés sur une image de l'échantillon obtenue par microscopie optique.

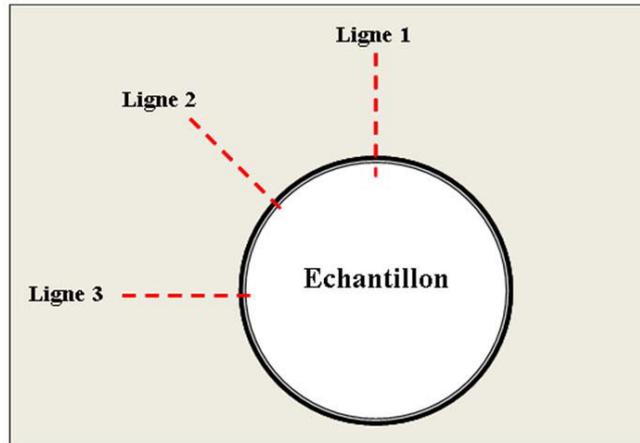


Figure 55. Schéma représentant les trois lignes sur lesquelles les points de mesure par MEB-EDS ont été effectués.

IV.3. Vitesse de dissolution du tungstène et du molybdène dans Ti pur et Ti allié

IV.3.1. Dissolution du tungstène

La *Figure 56* présente l'évolution de la vitesse moyenne de dissolution du tungstène mesurée dans un bain de titane pur, en fonction de la profondeur d'immersion dans le bain liquide. Chaque point représenté sur cette figure correspond à un point de mesure effectué le long de l'échantillon. La surface du bain est prise comme référence pour la profondeur d'immersion, comme schématisé sur la *Figure 57*. Il est important de prendre cette référence afin de pouvoir comparer les résultats provenant d'échantillons dont les profondeurs d'immersion sont différentes. La position relative de la surface du bain par rapport au défaut est définie en considérant que la section de plus faible diamètre le long du cylindre marque la position de la surface libre du bain (comme nous le verrons plus tard, la dissolution du cylindre est maximale à cette position). Sur les *Figures 58* et *59*, le même type de courbes que celles présentées sur la *Figure 56* est représenté pour les cas d'une dissolution dans des bains de titane allié (alliages TA6V et Ti17).

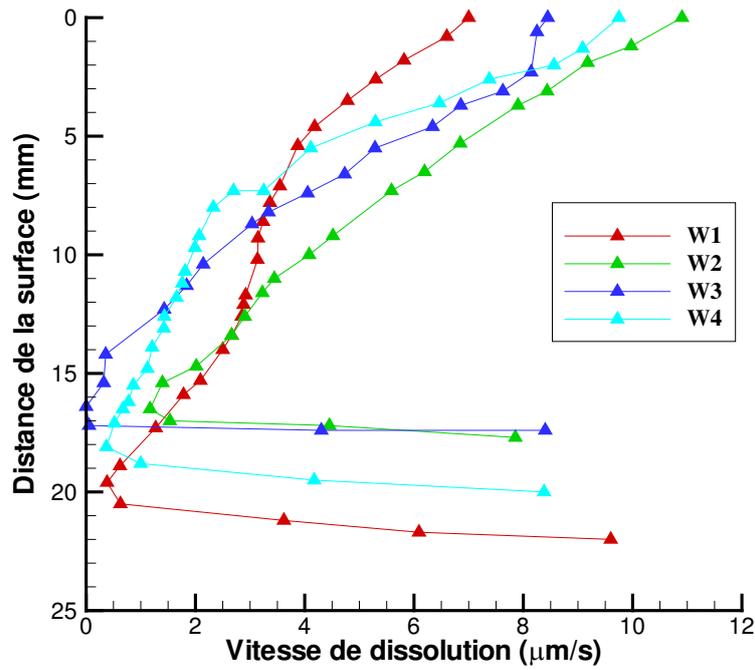


Figure 56. Vitesse moyenne de dissolution du tungstène dans le titane pur en fonction de la profondeur d'immersion dans le bain.

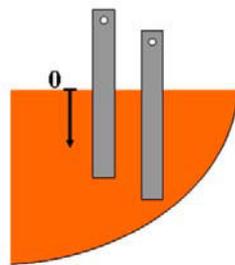


Figure 57. Schéma représentant le point de référence situé à la surface du bain.

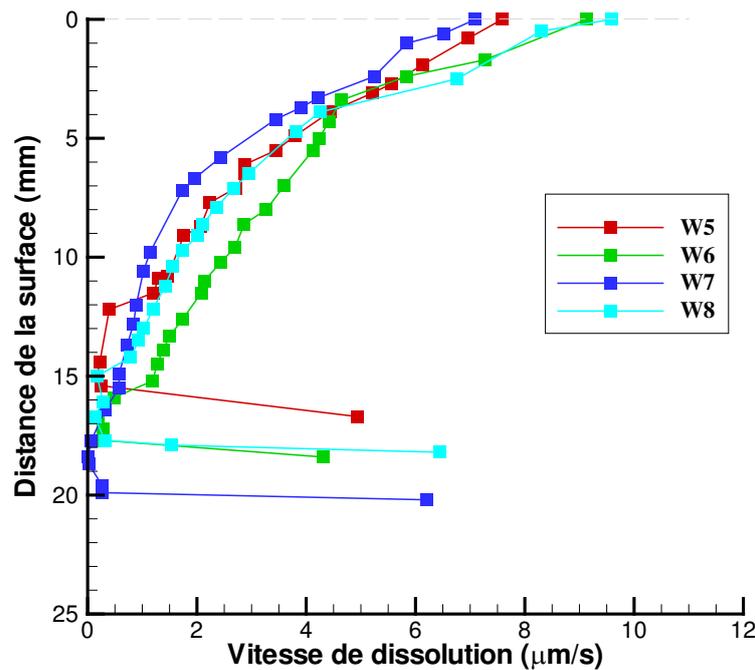


Figure 58. Vitesse moyenne de dissolution du tungstène dans l'alliage TA6V en fonction de la profondeur d'immersion dans le bain.

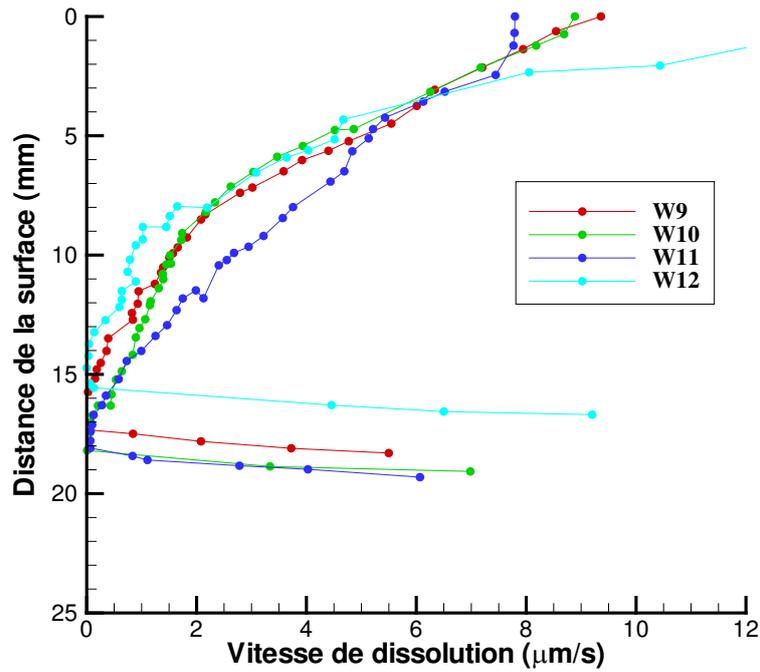


Figure 59. Vitesse moyenne de dissolution du tungstène dans l'alliage Ti17 en fonction de la profondeur d'immersion dans le bain.

La vitesse moyenne de dissolution varie de façon significative avec la position au sein du bain métallique. Sur les trois figures ci-dessus, les différentes courbes possèdent des allures similaires : la vitesse de dissolution est maximale au niveau de la surface du bain ainsi qu'à l'extrémité inférieure du barreau. Les vitesses de dissolution importantes obtenues à proximité de la surface sont liées aux températures élevées et à l'agitation accrue du liquide dans cette région. Concernant la partie inférieure de l'échantillon, l'augmentation du taux de dissolution est due à l'accroissement de la surface d'échange, qui intègre la surface circulaire inférieure du barreau. Notons, que pour un métal ou un alliage donné, il n'y a aucune relation claire entre la valeur de la vitesse moyenne mesurée et le temps total de résidence.

Afin de pouvoir comparer les vitesses de dissolution mesurées dans les bains de Ti CP, de TA6V et de Ti17, nous avons calculé une vitesse de dissolution "représentative" dans chaque bain. La courbe présentée sur la *Figure 60* pour chaque alliage correspond ainsi à la moyenne des profils de vitesse de dissolution mesurés pour les quatre échantillons immergés dans cet alliage.

A mi-hauteur (profondeur égale à 10 mm), où on se situe assez loin de la surface et où l'effet observé à la base du cylindre est négligeable, les vitesses de dissolution obtenues dans le Ti17 et le TA6V sont très proches et s'élèvent à environ 1,5 µm/s. Dans le Ti CP, nous observons une vitesse de dissolution supérieure, de l'ordre de 3 µm/s. La *Figure 61* montre les écarts types associés au calcul de moyenne. Une dispersion plus importante des résultats est observée pour le Ti CP.

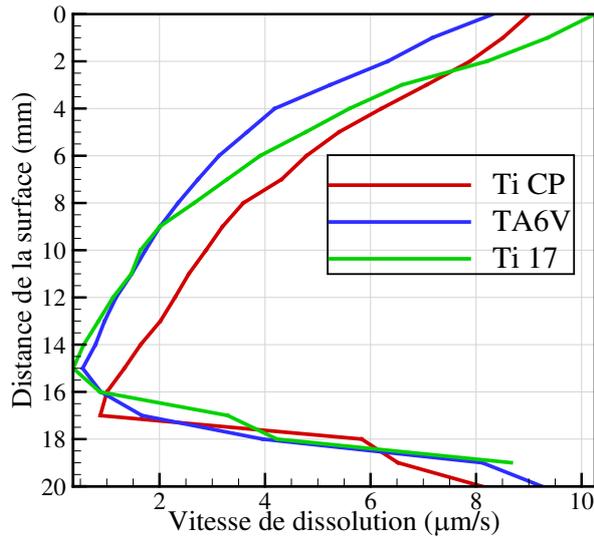


Figure 60. Vitesse de dissolution "représentative" mesurée dans le titane pur et dans les alliages TA6V et Ti17.

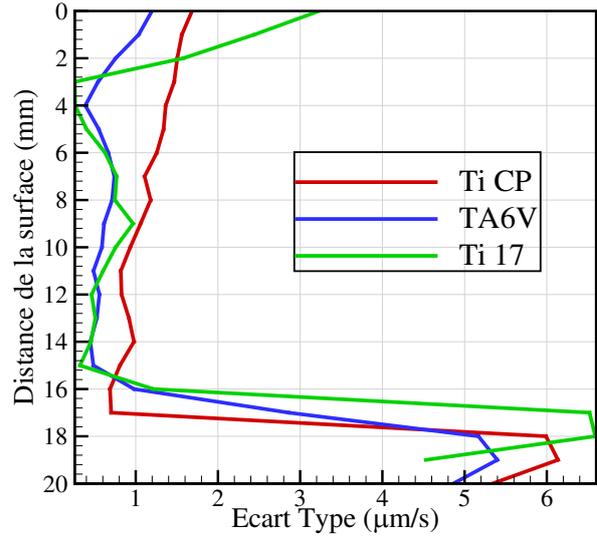


Figure 61. Ecart type associé au calcul de la vitesse de dissolution "représentative".

Le rôle joué par les éléments d'alliage sur les cinétiques de dissolution des défauts HDI n'est pas encore bien compris. Toutefois, deux arguments peuvent être avancés pour tenter d'expliquer les différences observées sur la *Figure 60*. Premièrement, les différences de propriétés physiques des alliages peuvent induire des conditions de dissolution (température et vitesse du métal au voisinage du défaut) différentes. Une autre explication est liée au coefficient de diffusion du tungstène qui peut varier en fonction de la nature des éléments d'addition et de leur concentration.

Afin de comparer nos mesures aux résultats obtenus par Garrat et Neal [24], nous avons cherché à exprimer les vitesses de dissolution mesurées à mi-hauteur en termes de densité de flux massique. Ceci est réalisé en calculant d'abord la masse dissoute sur une hauteur unitaire "h" :

$$\Delta m = \pi \frac{(d_f^2 - d_i^2)}{4} \rho_w h$$

La surface, à travers laquelle cette masse est perdue, est définie de la manière suivante :

$$S_{moy} = \pi d_{moy} h$$

où d_{moy} est un diamètre moyen, calculé par la relation suivante :

$$d_{moy} = \sqrt{\frac{d_i^2 + d_f^2}{2}}$$

de sorte que le volume entre les diamètres d_i et d_{moy} soit identique au volume entre les diamètres d_{moy} et d_f .

La vitesse de dissolution est alors calculée comme étant le rapport entre Δm et le produit de la surface d'échange S_{moy} et du temps de résidence t :

$$V = \frac{\Delta m}{S_{moy} \cdot t}$$

En moyennant les valeurs provenant des 4 échantillons trempés dans le même métal ou alliage métallique, les vitesses de dissolution suivantes ont été obtenues :

$5,51 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le Ti CP

$3,32 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le TA6V

$3,10 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le Ti17

La valeur obtenue pour le TA6V est en bon accord avec les résultats de Garrat et Neal [24] qui ont mesuré, lors de la dissolution partielle de cylindres de tungstène dans un bain de TA6V dans un four à arc, une vitesse moyenne de $3,5 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

IV.3.2. Dissolution du molybdène

Les vitesses moyennes de dissolution du molybdène mesurées dans un bain de TiCP et de TA6V sont représentées sur la *Figure 62*. Précisons que ces valeurs ont été déterminées à partir des dimensions résiduelles du défaut tirées des expériences de "maintien", contrairement aux vitesses de dissolution du tungstène présentées plus haut, qui ont été obtenues à partir d'expériences de "trempage". Nous constatons que les vitesses de dissolution du molybdène sont d'une manière générale plus élevées que celles du tungstène. Une observation similaire a été effectuée par Garrat et Neal lors de leur étude décrite dans la référence [24]. Par ailleurs, comme dans le cas du tungstène, nous remarquons que le molybdène se dissout plus rapidement dans le Ti CP que dans le TA6V.

Les valeurs des densités de flux massique moyennes à mi-hauteur sont les suivantes :

$8,2 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le TiCP

$5,2 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ pour le TA6V

La valeur obtenue pour le TA6V est, comme dans le cas de la dissolution du tungstène, proche de la valeur moyenne mesurée par Garrat et Neal ($4,9 \cdot 10^{-2} \text{ kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$).

Mentionnons qu'étant donné le très faible nombre d'expériences sur le molybdène réalisé au cours de notre étude, les conclusions tirées dans la présente section demandent toutefois à être confirmées par un plus grand nombre d'expériences.

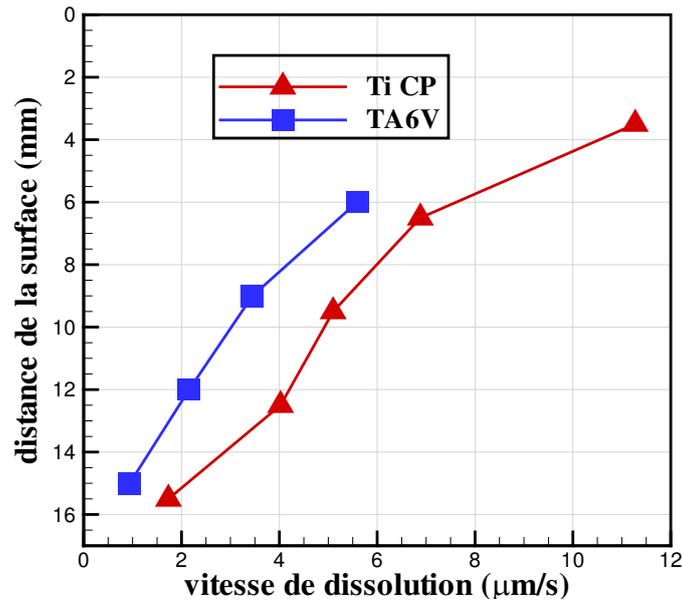


Figure 62. Vitesses de dissolution du molybdène dans le titane pur et l'alliage TA6V en fonction de la profondeur d'immersion dans le bain.

IV.4. Etude de la zone de diffusion : Evolution des teneurs en tungstène et en molybdène

Rappelons tout d'abord que les résultats exposés dans cette section proviennent d'expériences de type "maintien". Ces expériences permettent d'accéder, après découpe du bain de métal solidifié, aux profils de composition du métal au voisinage immédiat du défaut, et donc de caractériser les phénomènes de transfert entre le défaut et le bain de métal pendant le processus de dissolution. Sur la *Figure 63*, nous avons représenté l'évolution de la teneur en tungstène dans le métal en fonction de la distance par rapport à la surface de l'échantillon pour chacune des coupes de l'échantillon W13 (tungstène dans un bain de TiCP). Chacune des courbes présentées sur la *Figure 63* a été obtenue en moyennant les profils provenant des trois lignes de mesure de la coupe correspondante (cf. *Figure 55*). Notons que, pour une même coupe, les profils tirés des trois lignes de mesures sont quasiment identiques sauf pour la coupe la plus profonde où des différences sont observées entre les 3 profils. De la même manière, les profils de diffusion moyennés du tungstène dans le bouton W14 (tungstène dans un bain de TA6V) sont présentés sur la *Figure 64*.

Les profils de diffusion moyennés du molybdène pour les échantillons Mo1 (molybdène dans un bain de TiCP) et Mo2 (molybdène dans un bain de TA6V) sont représentés respectivement sur la *Figure 65* et la *Figure 66*.

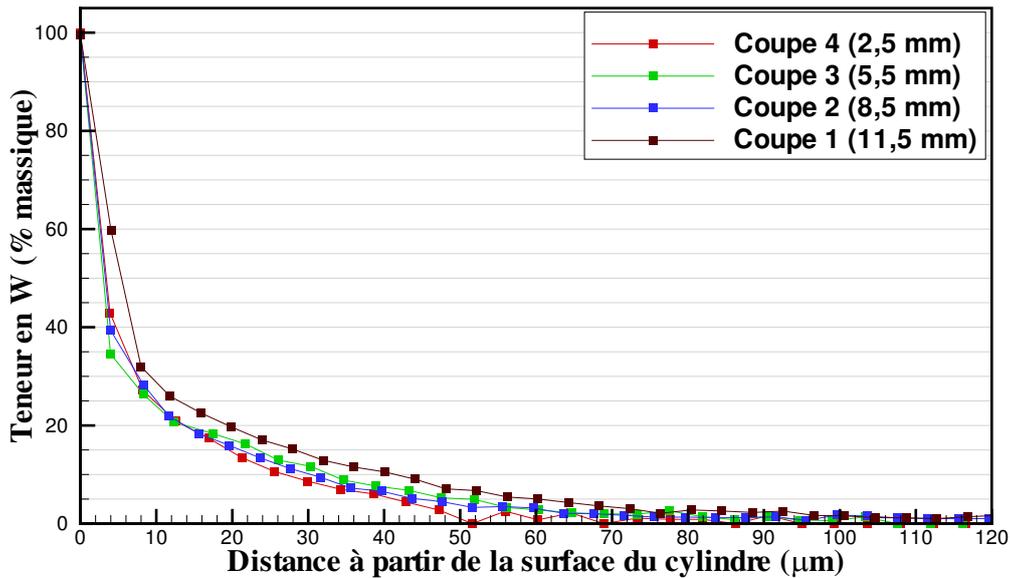


Figure 63: Evolution de la teneur en tungstène (échantillon W13 : W dans Ti CP).

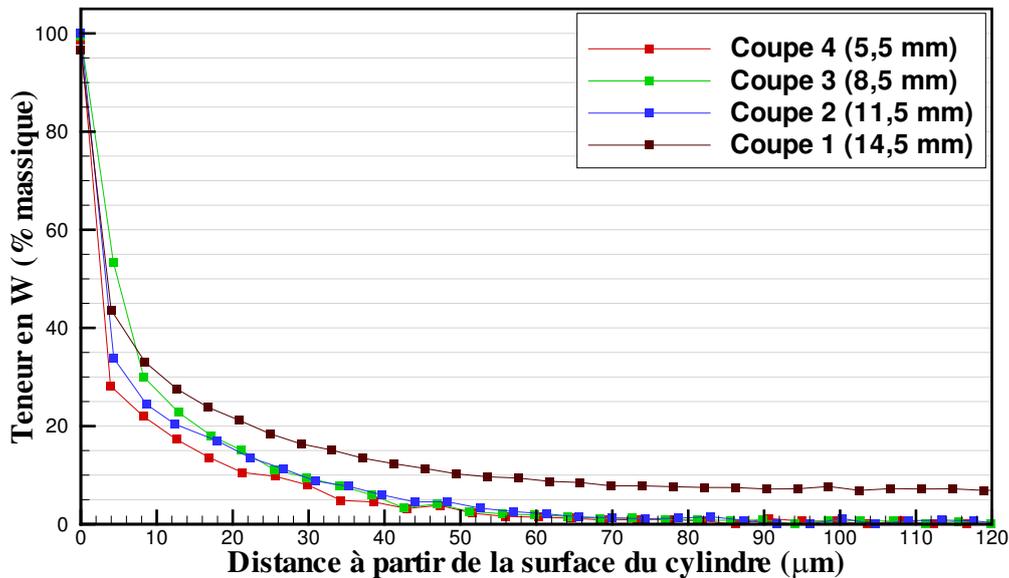


Figure 64. Evolution de la teneur en tungstène (échantillon W14 : W dans TA6V).

On observe sur les *Figures 63 et 64* (resp. *65 et 66*) que la concentration en tungstène (resp. molybdène) décroît progressivement depuis le défaut jusqu'à s'annuler à une distance d'environ 100 μm, sauf pour la coupe 1 des échantillons W14, Mo1 et Mo2 pour lesquels on constate encore des teneurs significatives en tungstène (resp. molybdène) à des distances d'environ 120 μm. Dans le cas de l'échantillon W13, bien que la teneur en tungstène mesurée sur la coupe 1 s'annule à une distance d'environ 100 μm, on constate toutefois que la décroissance de la teneur en tungstène dans la coupe 1 est légèrement plus lente que celle des teneurs en tungstène relevées dans les autres plans de coupe (2, 3 et 4). Ainsi, pour tous les échantillons, le flux de diffusion du tungstène (resp. molybdène) semble plus faible dans la région la plus profonde du bain (correspondant à la coupe 1) que dans le reste du bain. Ceci peut probablement être expliqué par l'agitation moins importante du métal liquide au fond du

bain, qui conduit à une mauvaise dispersion du tungstène (resp. molybdène) dissous au sein du bain métallique.

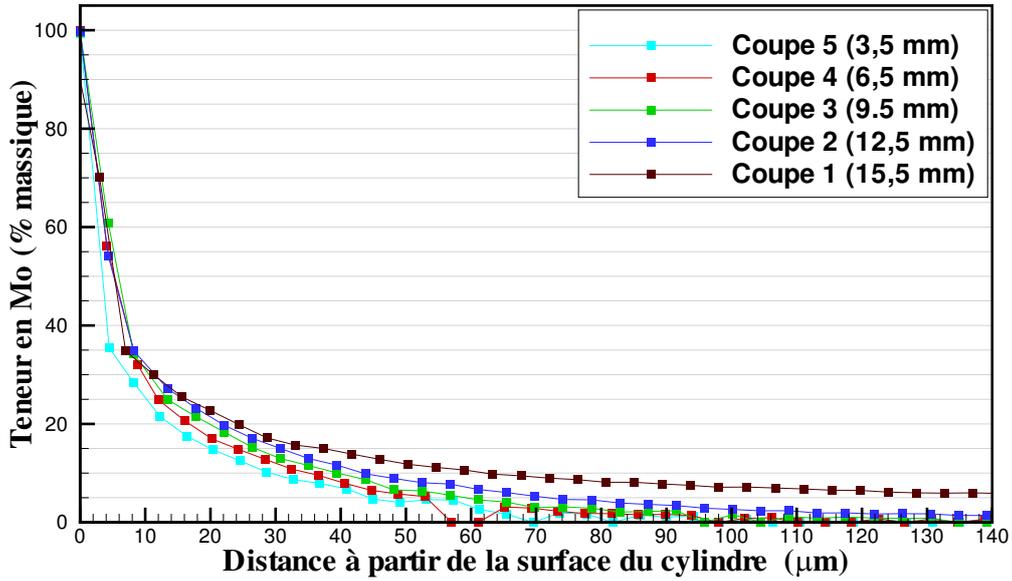


Figure 65. Evolution de la teneur en molybdène (échantillon Mo1 : Mo dans Ti CP).

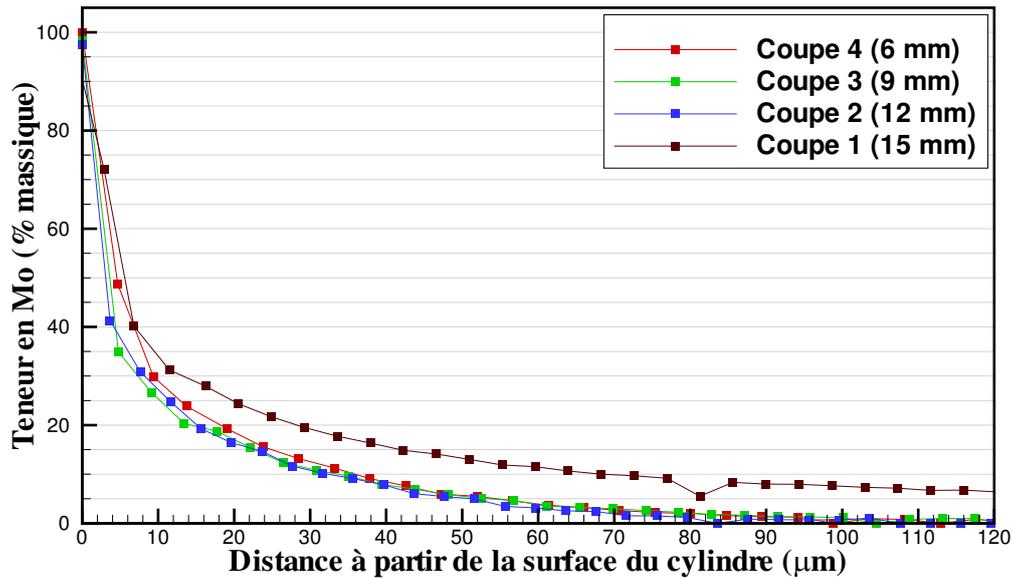


Figure 66. Evolution de la teneur en molybdène (échantillon Mo2 : Mo dans TA6V).

Pour tenter de quantifier l'effet de la profondeur d'immersion du défaut sur les profils de diffusion, nous avons comparé les épaisseurs des "couches limites" de diffusion sur la hauteur de l'échantillon. Pour cela, nous avons défini au voisinage de l'échantillon une "zone affectée" comme représenté sur la Figure 67. L'épaisseur de cette zone est définie comme la distance entre la surface du cylindre et le point où la concentration de tungstène (resp. molybdène) devient inférieure à 3 %. Nous avons choisi cette dernière valeur parce que, en

dessous de 3%, les teneurs mesurées sont entachées d'une incertitude élevée en raison de la fluctuation importante des mesures.

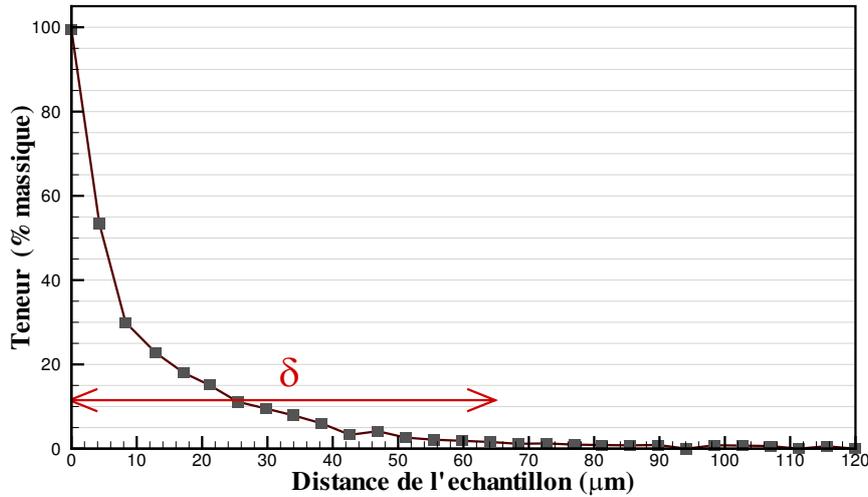


Figure 67. Schéma représentant l'épaisseur δ de la zone affectée.

Dans le *Tableau 14*, nous avons reporté les épaisseurs des "zones affectées" mesurées sur les différentes coupes des quatre échantillons. Nous pouvons observer clairement une tendance générale à l'augmentation de l'épaisseur de la "zone affectée" avec la profondeur. Pour un bain métallique donné (Ti CP ou TA6V), la "zone affectée" dans le cas d'un défaut en molybdène semble être légèrement plus épaisse que celle observée dans le cas d'un défaut en tungstène.

Tableau 14. Epaisseur des "couches limites" de diffusion observées sur les différentes coupes (en μm).

	Cylindre W	Cylindre Mo
dans Ti CP	Coupe 4: 48 Coupe 3: 59 Coupe 2: 58 Coupe 1: 81	Coupe 5 : 60 Coupe 4: 79 Coupe 3: 85 Coupe 2: 107 Coupe 1: > 150
dans TA6V	Coupe 4: 62 Coupe 3: 52 Coupe 2: 53 Coupe 1: > 150	Coupe 4: 62 Coupe 3: 64 Coupe 2: 73 Coupe 1: > 150

IV.5. Simulation de la dissolution de défauts HDI dans du titane liquide

Dans cette section, nous proposons une première modélisation du processus de dissolution de défauts de tungstène ou de molybdène dans un bain de titane liquide, dérivée du modèle de

dissolution de défauts hard- α présenté dans le *chapitre II*. Cette modélisation est ensuite confrontée aux résultats des expériences présentés dans la première partie du chapitre.

IV.5.1. Présentation du modèle

Au cours d'une refusion VAR ainsi que pendant les expériences de dissolution réalisées dans le four BE au cours de notre étude, la température de fusion du tungstène et du molybdène (et plus généralement de tous les métaux réfractaires) est loin d'être atteinte. La dissolution de défauts de tungstène ou de molybdène est donc similaire à celle des inclusions hard- α dans la mesure où elle est gouvernée par le transport de masse. D'après le diagramme de phase Ti-W (resp. Ti-Mo) donné en *annexe E*, un défaut de tungstène (resp. molybdène) est constitué, en cours de dissolution, d'une solution solide (β Ti, W) (resp. (β Ti, Mo)) en équilibre avec une phase liquide de titane enrichi en tungstène (resp. molybdène). A la différence du système Ti-N, il n'y a pas apparition dans le cas présent d'une phase intermédiaire entre le titane et le tungstène (resp. le molybdène) (qui serait l'équivalent de la phase β lors de la dissolution des défauts hard- α).

Le modèle de dissolution de défauts hard- α , présenté en détail dans le second chapitre de ce manuscrit, peut être adapté pour simuler la dissolution de défauts de tungstène ou de molybdène. Pour réaliser cela, deux modifications simples doivent y être apportées. Premièrement, le nombre de phases présentes doit être réduit à deux phases (une phase solide et une phase liquide) au lieu de trois. La deuxième modification consiste à utiliser une géométrie cylindrique (en considérant toujours un transport unidirectionnel dans la direction radiale) afin de simuler les expériences de dissolution décrites dans la première partie de ce chapitre. La seule difficulté pour l'élaboration de ce nouveau modèle provient de la détermination des coefficients de diffusion du tungstène (resp. molybdène) dans la phase (β Ti, W) (resp. (β Ti, Mo)) qui est le siège d'un gradient de concentration important entre le centre du défaut et l'interface solide/liquide (cf. diagrammes de phase, *annexe E*). De manière générale, les coefficients de diffusion d'un soluté A dans un milieu solide B dépendent de la concentration de A dans B. Ils dépendent également de la température du solide mais sont généralement très faibles par rapport aux valeurs en phase liquide. Compte tenu de cette dernière remarque, nous avons décidé, dans une première approche et suite à l'absence de données précises dans la littérature pour les systèmes considérés dans notre étude, de négliger le transfert diffusif dans le solide et donc d'adopter un coefficient de diffusion nul du tungstène (resp. molybdène) dans la phase solide (β Ti, W) (resp. (β Ti, Mo)). De ce fait le modèle suppose que la dissolution est contrôlée par le transport de masse au sein de la phase liquide dans la couche limite créée à l'interface solide/liquide, où existe un gradient de composition, comme schématisé sur la *Figure 68*.

A ce niveau, rappelons les deux hypothèses de base du modèle de dissolution :

- La température est considérée uniforme dans le défaut, qui est en équilibre thermique avec le fluide environnant.
- L'équilibre thermodynamique est atteint à l'interface solide/liquide. Les concentrations interfaciales sont alors déduites du diagramme de phase binaire correspondant.

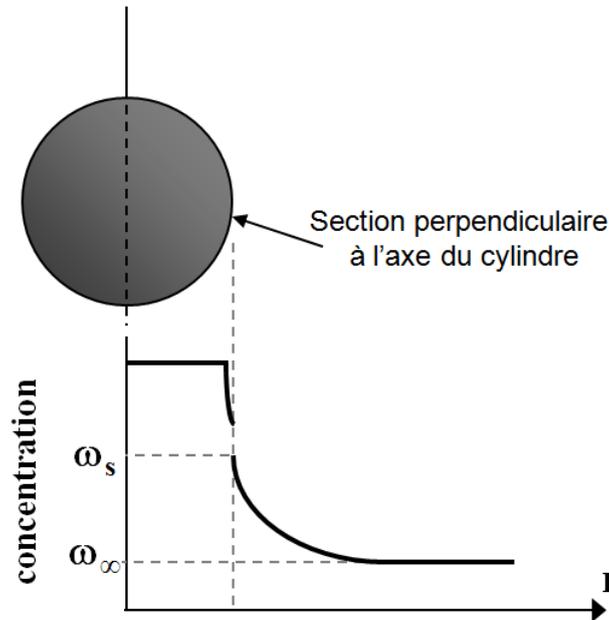


Figure 68. Schéma représentant le gradient de concentration dans la couche limite au voisinage de l'interface défaut / bain métallique.

Puisque la perte de masse du cylindre provient du transport convecto-diffusif dans le liquide et que le déplacement de l'interface est contrôlé uniquement par le flux de matière dans le liquide, le modèle, sous sa forme simplifiée, consiste ainsi à résoudre l'équation suivante :

$$\rho_s \frac{d(\pi r^2 h)}{dt} = -2\pi r h k (\omega_s - \omega_\infty) \rho_f$$

avec

r : le rayon du cylindre,

h : la hauteur du cylindre,

t : le temps,

ρ_s : la masse volumique du défaut solide et ρ_f celle du titane liquide,

ω_s : le titre en soluté (tungstène ou molybdène) dans la phase liquide en équilibre avec le défaut solide (cette concentration est fonction de la température),

ω_∞ : le titre en soluté (tungstène ou molybdène) dans le bain, nul dans le cas général.

Le coefficient de transfert de masse k est déterminé selon l'équation suivante :

$$k = \frac{D_{S,liq} Sh}{2r}$$

$D_{S,liq}$ est le coefficient de diffusion du soluté dans le titane liquide, estimé à $5.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. Le nombre de Sherwood Sh est calculé à partir de la corrélation ci-dessous, déterminée à partir de résultats expérimentaux pour un cylindre placé dans un écoulement perpendiculaire à son axe [33].

$$Sh = 0,3 + \frac{0,62 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}}}{\left(1 + \left(\frac{0,4}{Sc}\right)^{\frac{2}{3}}\right)^{\frac{1}{4}}} \left[1 + \left(\frac{Re}{282000}\right)^{\frac{5}{8}}\right]^{\frac{4}{5}}$$

Sous cette forme simplifiée, notre modèle est similaire à celui développé par Yamanaka et Ichihashi [30] et utilisé par ces auteurs pour simuler la dissolution d'inclusions sphériques de molybdène et de tantale pendant une refusion VAR. Par rapport à celui de ces auteurs, notre modèle présente toutefois l'avantage de permettre à terme de prendre en compte de manière détaillée la diffusion des solutés dans le solide, dans la mesure où les coefficients de diffusion seraient connus.

Après simplification, l'équation du bilan de masse, exposée plus haut, peut être mise sous la forme suivante qui montre que la vitesse de dissolution est proportionnelle au coefficient de transfert de masse, au titre en soluté à l'interface et au rapport des densités:

$$\frac{dr}{dt} = -(\omega_s - \omega_\infty)k \frac{\rho_f}{\rho_s}$$

IV.5.2. Exemple de résultats

Dans le but de valider le modèle, ses résultats ont été confrontés aux mesures effectuées lors des quatre expériences de dissolution d'un cylindre de tungstène dans un bain de Ti CP décrites dans la première partie de ce chapitre (échantillons W1, W2, W3 et W4). Pour cette confrontation, nous nous sommes placés à une position axiale le long du défaut correspondant à une profondeur de 10 mm depuis la surface du bain et nous avons calculé l'évolution du rayon du cylindre. Les résultats obtenus ont été ensuite comparés aux valeurs expérimentales mesurées à 4 instants différents de la dissolution (56 s, 110 s, 116 s et 124 s).

L'utilisation du modèle nécessite la connaissance de plusieurs paramètres concernant la température et la vitesse d'écoulement du métal dans le bain au niveau du défaut et les propriétés physiques des phases en présence (masse volumiques du solide et du liquide, viscosité du titane liquide, coefficient de diffusion dans le titane). En particulier, la vitesse de l'écoulement entre dans la formulation du nombre de Reynolds et par conséquent dans le calcul du coefficient de transfert de masse. La concentration à l'interface qui est tirée du diagramme de phase est fonction de la température.

Hormis la température du métal à la surface du bain au niveau de la position de trempage (mesurée à l'aide d'une caméra infrarouge), ainsi que la température du métal au fond du bain (égale à la température du liquidus) qui sont connues, aucune autre information sur la température du métal au sein du bain n'est disponible. Pour les simulations présentées dans cette section, nous avons fait l'hypothèse d'une variation linéaire de la température du métal entre la surface libre et l'interface solide-liquide. Sur la base des dimensions du bain déterminées dans la *section IV.2.2*, cette hypothèse nous conduit à une estimation de la température du métal à la profondeur de 10 mm égale à 1765 °C.

La vitesse du métal liquide en surface du bain a été estimée à environ 10 cm/s en observant la trajectoire d'une particule se déplaçant à la surface du bain et en supposant que la vitesse relative entre le fluide et la particule est nulle. Malheureusement, la vitesse locale du métal au niveau de la position axiale considérée le long du défaut n'est pas accessible et reste un paramètre ajustable du modèle. Dans les calculs présentés par la suite, cette vitesse a été fixée par un calage préliminaire du modèle sur l'un des résultats de mesure.

Le *Tableau 15* résume les différents paramètres et propriétés physiques utilisés comme données d'entrée du modèle. Pour la simulation présentée ci-dessous, nous avons utilisé l'expérience W3 (temps de dissolution égal à 56 s) pour le calage du modèle. La vitesse du métal déterminée lors du calage du modèle s'élève à 18 cm/s, du même ordre de grandeur que la vitesse estimée en surface.

Tableau 15. Données d'entrée du modèle.

d_i	4 mm
ω_s	8%
ω_∞	0
ρ_s à 1765°C	18885 kg.m ⁻³ [51]
ρ_f à 1765°C	4025 kg.m ⁻³ [16]
μ_f	3,1.10 ⁻³ kg.m ⁻¹ .s ⁻¹
$D_{S, liq}$	5.10 ⁻⁹ m ² .s ⁻¹

La *Figure 69* montre l'évolution temporelle du rayon du cylindre de tungstène prédite par le modèle. Sur la même figure, nous avons également représenté les rayons résiduels des échantillons W1, W2, W3 et W4 mesurés lors de nos expériences.

Malgré les incertitudes liées à la détermination des conditions opératoires et au manque de données concernant les propriétés des matériaux aux températures élevées, le modèle bien que basé sur une approche simplifiée (diffusion négligeable dans le solide) donne des résultats en bon accord avec les expériences et paraît bien décrire la dissolution du cylindre au moins pendant le début du processus. Evidemment, des points expérimentaux supplémentaires sont nécessaires, surtout pour des temps de contact avec le liquide plus importants, afin de valider de manière plus poussée le modèle.

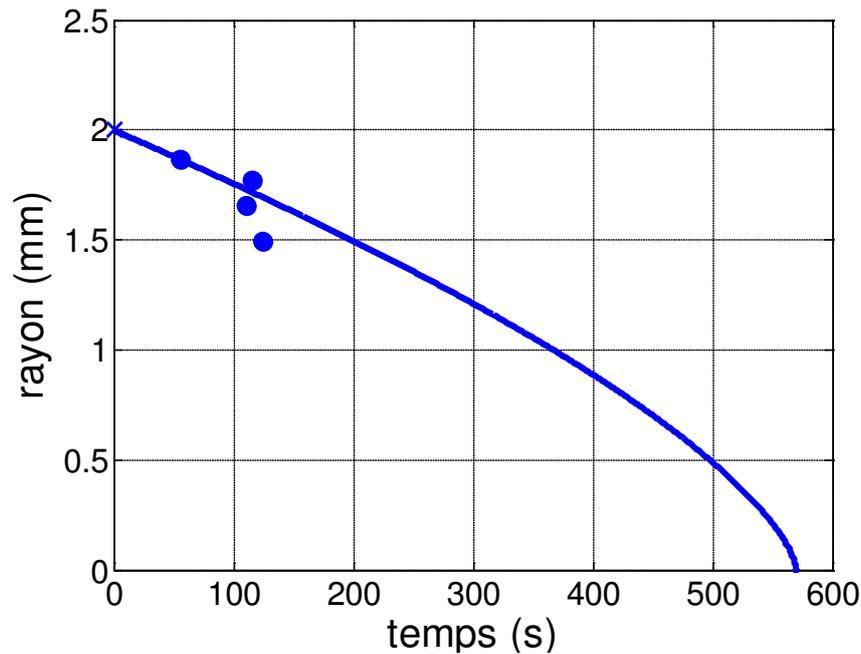


Figure 69. Evolution temporelle du rayon d'un cylindre de tungstène immergé dans un bain de Ti CP prédite par le modèle et comparaison avec les résultats de mesures (symboles).

IV.6. Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude expérimentale de la dissolution de défauts de tungstène et de molybdène dans un bain de titane liquide.

Nous avons caractérisé les vitesses de dissolution du tungstène dans le Ti CP et dans les alliages TA6V et Ti17 et celles du molybdène dans le Ti CP et l'alliage Ti17. Les concentrations des éléments (tungstène ou molybdène) dans la couche limite au voisinage immédiat du défaut ainsi que l'épaisseur de cette couche ont été également mesurées. Les vitesses de dissolution du tungstène et du molybdène paraissent plus élevées dans le Ti CP que dans les alliages. Une relation entre l'épaisseur de la couche limite et la profondeur d'immersion a été constatée.

La possibilité d'éliminer une inclusion de tungstène ou de molybdène au cours d'une refusion VAR dépend de la taille de ce défaut (*annexe C*) et de son temps de séjour dans le puits liquide. Les valeurs des cinétiques de dissolution mesurées pour le tungstène ($3 \cdot 10^{-2} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ à $5 \cdot 10^{-2} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) sont très faibles. Un calcul simple permet de montrer qu'une inclusion de tungstène de taille millimétrique, qui possède un temps de séjour de quelques secondes, ne sera presque pas affectée par la dissolution, même après une triple refusion.

Pour le molybdène, la situation est légèrement différente puisque la densité de ce métal, plus faible que celle du tungstène, conduit à un temps de séjour plus long dans le métal liquide et par conséquent une meilleure dissolution. Le fait que les cinétiques de dissolution du molybdène dans le titane liquide paraissent, d'après notre étude, plus élevées que celles du tungstène, favorise également la dissolution des défauts de molybdène.

Pour compléter cette étude, un modèle numérique décrivant le processus de dissolution de cylindres de tungstène ou de molybdène dans un bain de titane liquide a été développé, en s'appuyant sur le modèle de dissolution de défauts hard- α présenté dans le *chapitre II*. Le modèle, qui nécessite l'utilisation d'un paramètre ajustable, représente bien l'évolution des dimensions d'un cylindre de tungstène, mesurée précédemment. Ce modèle peut aisément être modifié pour simuler la dissolution d'inclusions sphériques. Ensuite, couplé à un modèle trajectographique, selon la même démarche que celle mise en œuvre pour les défauts hard- α , il pourra être utilisé pour simuler le comportement d'une inclusion de tungstène ou de molybdène pendant sa présence dans le puits liquide d'un lingot VAR.

Sur la base des travaux présentés dans ce chapitre, plusieurs perspectives sont envisageables. Au niveau expérimental, de nouvelles expériences de dissolution et des caractérisations supplémentaires sont nécessaires pour d'une part compléter et confirmer certains des résultats obtenus dans cette étude (en particulier les valeurs des vitesses de dissolution du molybdène) et d'autre part mieux comprendre l'effet des éléments d'alliage sur la cinétique de dissolution des HDI. Par ailleurs, les cinétiques de dissolution d'autres défauts HDI tel que le niobium, peu ou pas étudiées jusqu'à présent, pourraient être déterminées en utilisant une procédure identique à celle mise en œuvre au cours de cette étude.

Afin de parvenir à une validation quantitative du modèle de dissolution de défauts de tungstène ou de molybdène proposé dans ce travail, il serait nécessaire de connaître plus précisément la température et la vitesse du métal liquide au voisinage du défaut lors de nos expériences. La mesure de la température et de la vitesse du métal au sein du bain dans notre dispositif expérimental étant extrêmement difficile pour des raisons pratiques (hautes températures, enceinte sous vide...), une alternative pour les caractériser consisterait à simuler numériquement le comportement thermo-hydrodynamique du métal liquide. Une telle simulation permettrait en particulier de déterminer si la différence constatée entre les cinétiques de dissolution dans le titane pur et le titane allié peut être, au moins pour partie, expliquée par la modification de l'écoulement, liée à des différences de propriétés thermophysiques du métal liquide.

Chapitre V

Dissolution des défauts de titane nitruré dans Ti liquide - Etude expérimentale

V.1. Introduction

Ce chapitre a pour objet l'étude de la dissolution de défauts de type hard- α dans un bain de titane liquide. Nous étudions en particulier les mécanismes contrôlant le processus de dissolution et la cinétique du processus (vitesse de dissolution).

Pour mener cette étude, des expérimentations similaires à celles menées sur des défauts HDI et présentées dans le *chapitre IV* ont été effectuées dans le four à bombardement électronique du laboratoire. Ces expérimentations consistent à réaliser la dissolution partielle de défauts synthétiques hard- α (plaquettes de titane nitruré) dans un bain de titane, pendant des intervalles de temps bien contrôlés. L'approche expérimentale mise en œuvre a comporté plusieurs étapes :

- l'élaboration de défauts synthétiques de type hard- α , qui fait l'objet de la *section V.2*,
- la réalisation des expériences de dissolution, pendant lesquelles les échantillons fabriqués ont été immergés dans un bain de titane, selon les modes opératoires décrits dans la *section V.3*,
- l'observation au microscope optique des défauts partiellement dissous, après découpage et polissage du bain solidifié, qui est présentée dans la *section V.4*.

Dans la dernière section du chapitre (§ V.5), les résultats numériques obtenus à l'aide du modèle de dissolution de défauts hard- α décrit dans le *chapitre II* sont confrontés aux résultats des expériences.

V.2. Elaboration des plaquettes de titane nitruré

Des défauts hard- α synthétiques ont été fabriqués par nitruration d'un bain liquide de titane pur dans un four à fusion par arc électrique, selon la procédure décrite ci-après. Le choix de réaliser une nitruration du titane à l'état liquide vient du fait que le coefficient de diffusion de l'azote est beaucoup plus élevé dans le titane liquide que dans le titane solide. Après plusieurs tests et analyses préliminaires, une procédure convenable a pu être mise au point. Cette procédure, décrite dans le paragraphe qui suit, nous a permis d'obtenir des boutons de titane nitruré, de teneur en azote de l'ordre de 3,5 % massique, présentant une bonne homogénéité à l'échelle macroscopique.

Des morceaux de titane pur (Ti CP fourni par Timet Savoie) de masse égale à 25 g (± 2 g) sont découpés à la tronçonneuse puis placés à l'intérieur d'un four à arc, dans un creuset en cuivre refroidi par eau. Ils sont fondus sous une atmosphère d'argon à 800 mbar. Le métal est ensuite maintenu en phase liquide sous balayage gazeux d'argon/azote et l'azote est progressivement absorbé par le titane liquide. Au cours de l'expérience, il est nécessaire d'augmenter la puissance de l'arc électrique car l'enrichissement du métal en azote, même en faibles quantités, entraîne une augmentation considérable de sa température de fusion. Ainsi, au delà d'un certain temps de nitruration (de l'ordre d'une vingtaine de minutes pour nos conditions expérimentales), la nitruration doit être arrêtée, car la puissance du four devient insuffisante pour maintenir une quantité suffisante de métal à l'état liquide et par conséquent homogénéiser le bouton. Le bouton de titane nitruré obtenu est retourné et refondu sous la même atmosphère (argon + azote) afin d'assurer l'uniformisation du taux d'azote dans l'ensemble du bouton, en particulier dans le talon de métal resté précédemment solide au contact du creuset refroidi à l'eau. L'élaboration sous atmosphère contrôlée (azote/argon) permet par ailleurs d'éliminer tout risque d'oxydation. En revanche, la ségrégation de l'azote survenant pendant la solidification est inévitable. Il est donc impossible de réaliser des échantillons monophasés.

L'analyse micrographique des boutons de titane nitruré ainsi élaborés (cf. *Figure 71*) montre qu'ils possèdent une structure biphasée, constituée d'une phase claire riche en azote et d'une phase sombre moins enrichie. L'effet de la nitruration sur la microstructure du titane peut être observé sur les *Figures 70* et *71*. On remarque dans le titane nitruré l'apparition de dendrites de phase α (zones claires sur la photo) dues à la présence de l'azote qui est un élément α -stabilisant. Dans l'exemple de la *Figure 71*, la zone claire possède une dureté moyenne de 800 HV, ce qui correspond à une teneur en azote égale à 4,5 % en masse (voir *Figure 72*). La zone sombre possède une dureté inférieure à 500 HV, ce qui indique une plus faible teneur en azote ($\leq 1,5$ % en masse). D'après le diagramme de phase Ti-N, cette phase est issue de la phase β présente à haute température qui se transforme en phase α (faiblement enrichie en azote) lors du refroidissement.

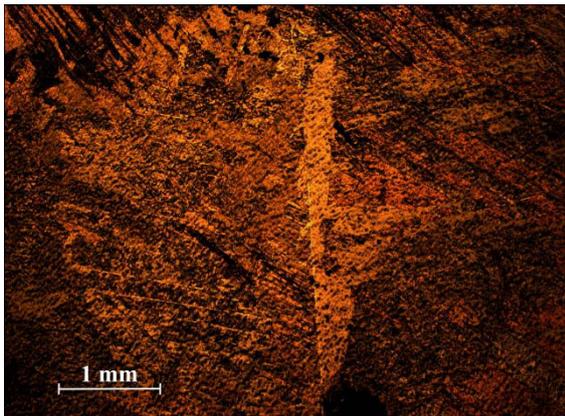


Figure 70. Micrographie d'un échantillon de titane pur.



Figure 71. Micrographie d'un échantillon de titane nitruré.

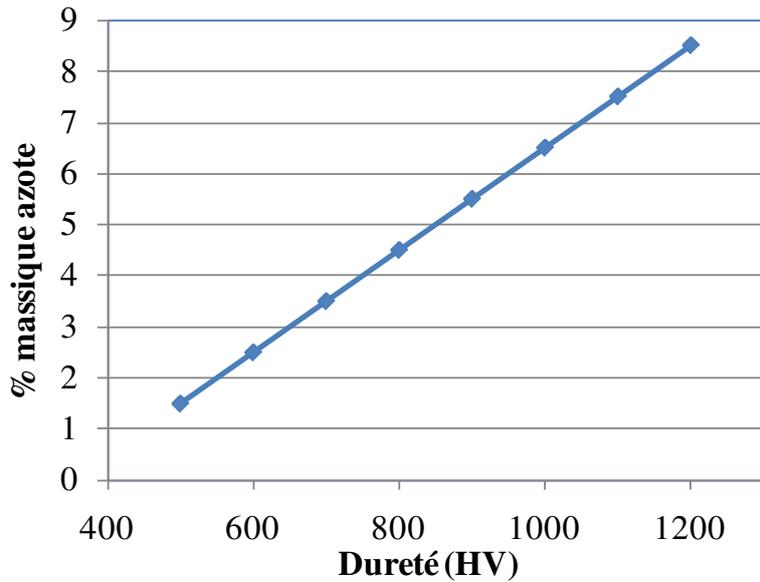


Figure 72. Corrélation entre dureté et teneur en azote (établie d'après la figure 2 de la référence [12]).

Comme illustré sur la *Figure 72*, la présence de l'élément interstitiel azote augmente considérablement la dureté du titane. Du fait de cette dureté accrue, la découpe des boutons obtenus et l'usinage des échantillons à l'intérieur des boutons sont difficiles, d'où le choix de travailler avec une géométrie de défaut en forme de plaquette parallélépipédique et non sphérique ou cylindrique.

Une plaquette rectangulaire de dimension 20 mm x 15 mm est découpée par électroérosion dans la zone centrale de chaque bouton. L'électroérosion consiste à enlever de la matière par le biais d'un arc électrique créé entre une cathode en cuivre aux dimensions de la plaquette et le bouton immergé dans du kérosène. La plaquette ainsi obtenue est polie afin de réduire son épaisseur jusqu'à environ 2,5 mm. L'épaisseur de la plaquette étant très faible par rapport à ses autres dimensions, on pourra considérer ultérieurement que les transferts de matière sont monodimensionnels, dans la direction perpendiculaire aux faces inférieure et supérieure de la plaquette. Le modèle de dissolution en géométrie 1D décrit au *chapitre II* pourra ainsi être utilisé pour simuler les expériences réalisées. Un exemple de plaquette ainsi qu'un bouton de titane nitruré sont présentés sur la *Figure 73*.



Figure 73. Bouton de titane nitruré élaboré au four à arc (à gauche) et plaquette obtenue par électroérosion (à droite).

Afin de vérifier la macro-homogénéité des plaquettes ainsi élaborées et la reproductibilité de l'ensemble du processus d'élaboration, les faces inférieure et supérieure de chaque plaquette ont été analysées à l'aide de mesures de microdureté. Comme on l'a vu, l'absorption d'azote par le titane se caractérise par un durcissement très important du métal. Les mesures de microdureté représentent, pour cette raison, une méthode de caractérisation indirecte, simple et relativement rapide, des phases et de leur teneur en azote. La *Figure 75* montre quatre profils typiques de microdureté réalisés suivant la longueur de l'une des faces d'une plaquette (comme schématisé sur la *Figure 74*). Les profils de microdureté indiquent une macro-homogénéité satisfaisante. Les fortes hétérogénéités locales sont dues à la ségrégation en azote pendant la solidification.

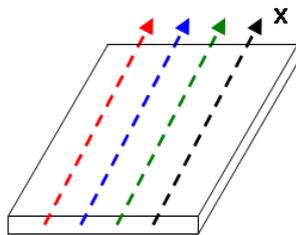


Figure 74. Schéma représentant les quatre lignes de mesure de la microdureté le long d'une des faces d'une plaquette.

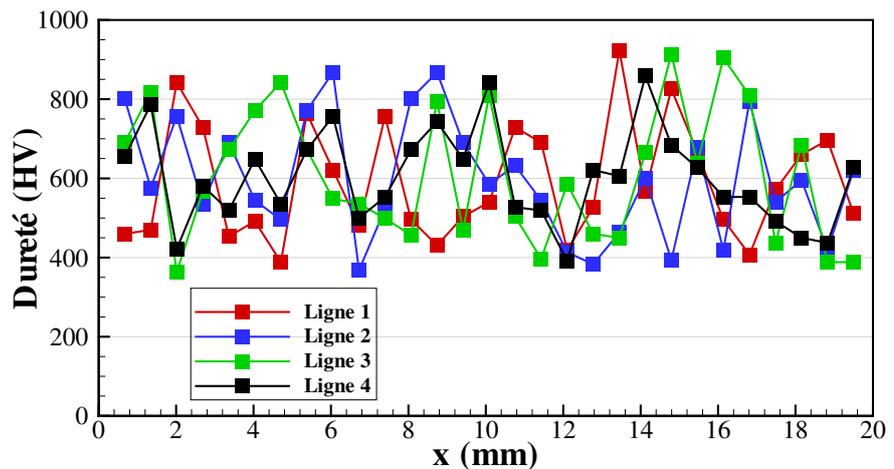


Figure 75. Exemple de profils de microdureté réalisés sur une plaquette.

Une détermination par analyse d'images des taux de phase a été également réalisée sur quelques échantillons. Le taux de phase α (riche en azote) est de l'ordre de 55%.

V.3. Expériences de dissolution

V.3.1. Description des expériences

Les expériences de dissolution de défauts synthétiques de type hard- α (plaquettes de titane nitruré) dans un bain de titane liquide ont été réalisées dans le four à bombardement électronique du laboratoire selon une procédure similaire à celle des expériences de type "maintien" décrites dans le *chapitre IV* et ayant servi de base à l'étude de la dissolution de défauts HDI (*Figure 76*). La seule différence vient de l'utilisation d'un défaut sous forme d'une plaquette de titane nitruré au lieu d'un cylindre dans le cas des HDI. Pour effectuer une expérience de dissolution, deux trous sont percés dans la plaquette afin de l'attacher à une canne en tungstène à l'aide d'un fil également en tungstène. Lors du processus d'immersion, la canne ne touche pas le bain; seul le fil en tungstène est en contact avec le métal liquide, et se dissout généralement en moins d'une minute. Dès lors, plus aucun contrôle du positionnement de la plaquette au sein du bain n'est possible. Le faisceau d'électrons est

coupé après un temps déterminé, causant la solidification du métal. Après refroidissement, le bouton solidifié est découpé de manière à observer la plaquette dans le sens de l'épaisseur.

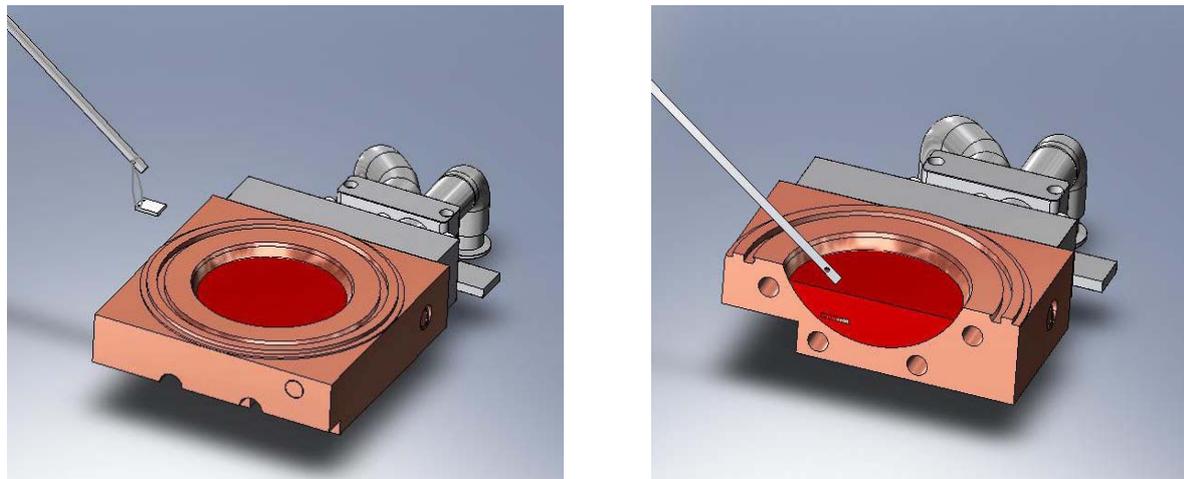


Figure 76. Schéma représentant le déroulement d'une expérience de dissolution de type "maintien" d'une plaquette de titane nitruré.

V.3.2. Zone d'immersion des plaquettes au sein du bain métallique

Les mêmes conditions opératoires (en termes de dimensions du creuset et de puissance et de motif de balayage du faisceau électronique) qui ont été employées précédemment lors des expériences effectuées sur des cylindres de tungstène et de molybdène ont été utilisées dans la présente étude. Par conséquent, la forme géométrique et les dimensions du bain liquide obtenu sont similaires à celles présentées dans le chapitre précédent (cf. § IV.2.2).

V.3.3. Difficultés expérimentales

La réalisation d'expériences de dissolution de défauts synthétiques hard- α s'est heurtée à plusieurs difficultés d'ordre pratique et/ou méthodologique :

a) La manipulation par l'opérateur de la canne au bout de laquelle la plaquette est accrochée est délicate. Ainsi, il est difficile de contrôler précisément le positionnement de la plaquette au sein du bain. En outre, après la rupture du fil en tungstène, la position de la plaquette est susceptible d'être modifiée sous l'influence du mouvement du métal. Lors des expériences décrites dans la section suivante, nous avons cherché à positionner la plaquette horizontalement au fond du bain (où l'agitation et la température du métal sont faibles et peuvent être plus facilement estimées).

b) Du fait que la position et l'orientation de la plaquette dans le bouton solidifié ne sont pas connues avec précision au moment du découpage du bouton, il est difficile de sectionner le bain solidifié d'une manière rigoureusement perpendiculaire aux faces supérieure et inférieure de la plaquette, d'où une erreur possible de mesure de la taille résiduelle du défaut partiellement dissous.

Par ailleurs, la localisation par radiographie X de la plaquette de titane nitruré au sein du bouton solidifié selon la même méthode que celle utilisée pour les défauts de tungstène ou de molybdène n'est pas possible, car les masses volumiques du titane et du titane nitruré sont

trop proches. Pour essayer de pallier ce problème, nous avons marqué lors d'une expérience une plaquette avec des fils de tungstène (dont la densité est 4 fois supérieure à celle du titane). La *Figure 77* montre une plaquette équipée de fils de tungstène insérés dans 4 trous percés au sein de la plaquette. Les deux autres trous apparaissant sur le côté droit de la plaquette sur la photo de la *Figure 77* sont ceux utilisés pour attacher la plaquette à la canne de maintien.

L'objectif de ce marquage était de pouvoir s'aider des restes des fils de tungstène non dissous (protégés du liquide par le titane nitruré) pour repérer et déterminer à l'aide de radiographies X l'orientation de la plaquette au sein du bouton et choisir un plan de coupe du bouton.

Les résultats obtenus lors d'une première expérience de dissolution d'une plaquette marquée avec des fils de tungstène n'ont pas été concluants. Comme le montre la *Figure 78*, seules quelques portions des fils de tungstène n'ont pas été dissoutes lors de l'expérience, rendant impossible toute prédiction précise du positionnement de la plaquette. Par manque de temps et du fait que les résultats de cet essai préliminaire n'ont pas été très satisfaisants, cette méthode de marquage n'a pas été répétée.

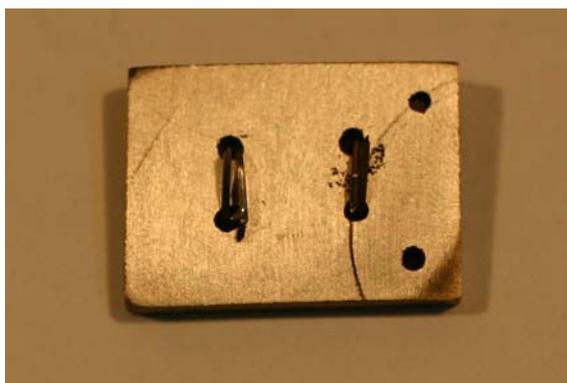


Figure 77. Plaquette marquée à l'aide de fils de tungstène.

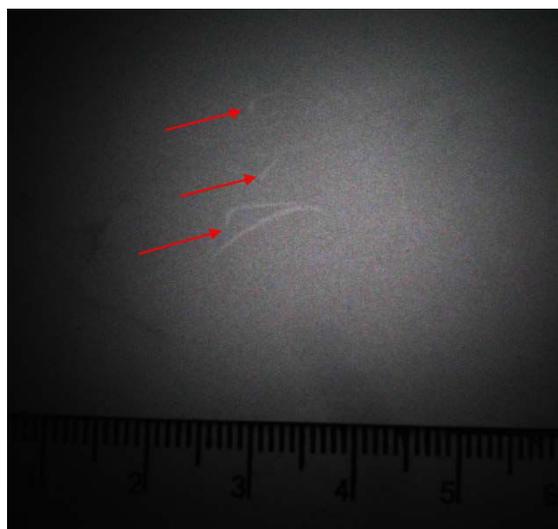


Figure 78. Image en rayon-X du bouton vu de dessus. Les flèches indiquent les restes des fils de tungstène.

c) Les essais décrits dans ce chapitre concernent des défauts denses. Malgré l'intérêt scientifique que présente la réalisation d'expériences de dissolution de ce type de défauts, il conviendrait d'étudier également la dissolution d'inclusions poreuses (issues de particules d'éponges de titane nitruré) représentatives des défauts réels rencontrés au cours de l'élaboration VAR. Ainsi un autre type d'essais, consistant à introduire dans un bain de titane liquide un morceau d'éponge de titane nitruré, a été réalisé.

Un morceau d'éponge, attaché à la canne de maintien à l'aide d'un fil en tungstène, a été immergé dans du titane liquide selon la même procédure que celle décrite précédemment. Cependant, quelques secondes après l'immersion, une agitation intense du métal liquide au sein du bain a été observée, suivie d'une dissociation de l'éponge en plusieurs petits fragments. Ces fragments ont été ensuite rapidement dispersés dans l'ensemble du bain par l'écoulement du métal. Un tel comportement de l'éponge de titane nitruré peut sans doute être attribué à une réaction violente entre l'oxygène emprisonné dans les pores de l'éponge et le

titane liquide. Il s'est avéré très difficile de retrouver en fin d'expérience les morceaux d'éponge au sein du bain solidifié, ce qui a rendu en pratique ce type d'essai inexploitable. Notons que le phénomène observé au cours de cette expérience est susceptible de participer à la formation d'inclusions hard- α de taille initiale millimétrique, à partir d'éponge nitrurée, au sein du procédé de refusion VAR.

V.4. Résultats expérimentaux

En raison des difficultés évoquées dans la section précédente, auxquelles s'est ajoutée une indisponibilité du four à bombardement électronique au cours de la dernière année de thèse, un nombre restreint d'expériences a pu être réalisé, parmi lesquelles seuls deux essais se sont révélés exploitables. Les résultats de ces deux expériences sont présentés dans cette section. Les conditions expérimentales de ces deux essais, correspondant à la dissolution d'une plaquette de titane nitruré dans du titane liquide pur, sont reportées dans le *Tableau 16*.

Tableau 16. Conditions expérimentales des essais de dissolution.

	Température du métal en surface du bain (°C)	Epaisseur initiale du défaut (μm)	Temps de dissolution (s)
Plaquette 1	1823	2800	84
Plaquette 2	1820	2500	87

Après la trempe du système en fin d'expérience, les bains de métal solidifié ont été découpés de manière à observer l'échantillon dans le sens de l'épaisseur. La *Figure 79* représente de manière schématique les positions probables des plaquettes 1 et 2 dans une coupe verticale du bain métallique. Précisons que les positions du motif du faisceau d'électrons en surface du bain sont légèrement différentes dans les deux expériences.

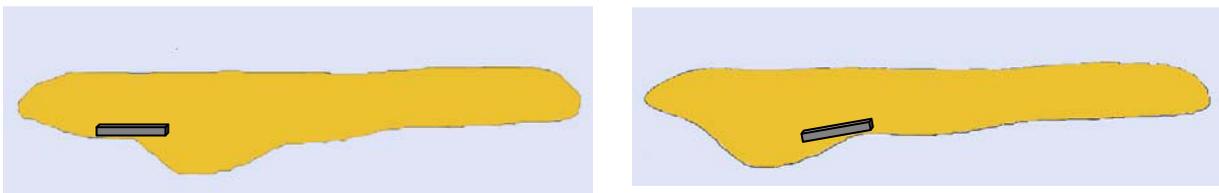


Figure 79. Position approximative des plaquettes 1 (à gauche) et 2 (à droite) au sein d'une coupe verticale du bain métallique.

Les échantillons ainsi obtenus ont été polis, attaqués chimiquement au réactif de Kroll, puis observés au microscope optique. Les *Figures 80* et *81* montrent clairement l'existence de trois zones, en accord avec la littérature [23] :

- une zone centrale possédant la même microstructure que l'échantillon initial,
- une zone aciculaire entourant le défaut (constituée d'aiguilles de phase α entourées d'une phase β résiduelle),
- le titane solidifié après coupure du faisceau électronique.

Les micrographies de l'échantillon 2 présentées sur les *Figures 82* et *83* font également apparaître ces trois mêmes zones.

Comme nous l'avons mentionné au cours de ce manuscrit, la dissolution d'un défaut hard- α est clairement gouvernée par le transport d'azote du centre du défaut vers le bain de titane liquide. D'après le diagramme de phases Ti-N, l'enrichissement du titane liquide en azote entraîne une augmentation de son point de fusion et donc la solidification d'une couche de titane enrichie en azote (phase β) autour du défaut. Cette couche se transforme en une zone α formée d'aiguilles pendant la trempe du système. L'apparition de cette couche périphérique cause un accroissement de la taille totale du défaut dans les premiers moments de dissolution. Dans le reste de ce chapitre, nous appellerons parfois par commodité de langage cette zone aciculaire "phase β ".

Les épaisseurs de la zone centrale du défaut et de la zone périphérique aciculaire ont été mesurées sur les micrographies de chacun des deux échantillons. La nature de la phase aciculaire permet d'identifier grossièrement ses frontières sans nécessiter une mesure précise du profil en azote.

Pour l'échantillon 1, la zone aciculaire possède une épaisseur relativement uniforme, avec toutefois une différence marquée entre les faces supérieure et inférieure de la plaquette. Cette épaisseur est égale à $650 \pm 50 \mu\text{m}$ pour la face supérieure, contre $750 \pm 50 \mu\text{m}$ pour la face inférieure. L'épaisseur de la zone centrale varie pour sa part entre $2300 \mu\text{m}$ et $1500 \mu\text{m}$ de gauche à droite de l'échantillon. Les épaisseurs des phases composant le défaut, et surtout celle de la phase α , dépendent donc de la position au sein du bain. On peut noter en particulier que la région de la plaquette la plus proche du faisceau d'électrons (côté droit de la plaquette) a subi une dissolution plus importante que la région gauche, plus éloignée. Cet effet peut très probablement être attribué au fait que la température et la vitesse du métal sont plus élevées à proximité du faisceau. En effet, la zone d'immersion est soumise à des mouvements convectifs intenses liés à la forme particulière du motif de balayage du faisceau d'électrons à la surface. Ces observations mettent en évidence l'influence importante de l'hydrodynamique et de la température du métal sur la dissolution.

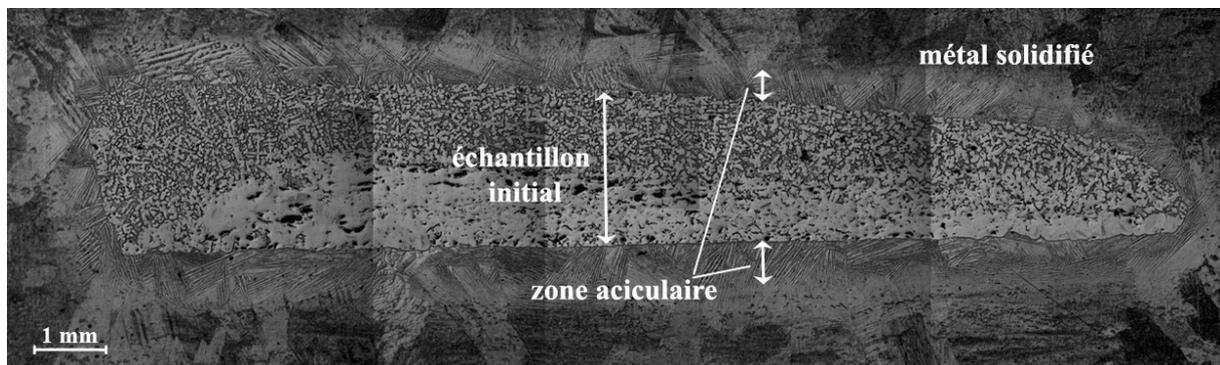


Figure 80. Observation de l'échantillon 1 au microscope après l'expérience de dissolution.

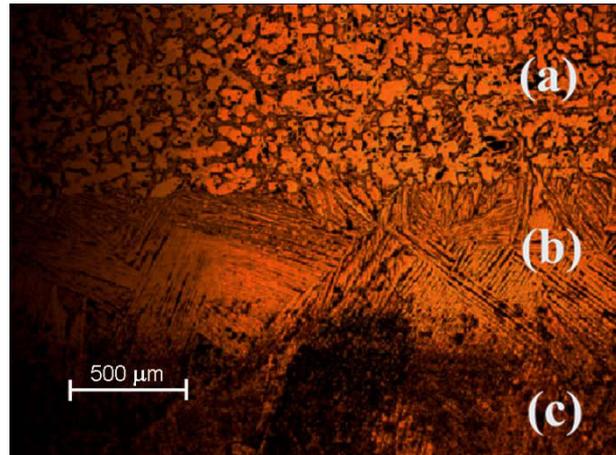


Figure 81. Zoom sur la région de l'interface liquide trempé/échantillon pour la plaquette 1
(a) : échantillon initial, (b) : zone aciculaire et (c) : titane solidifié.

Pour l'échantillon 2, des variations importantes de l'épaisseur de la zone centrale sont observées. Sur la *Figure 82*, nous pouvons observer deux régions distinctes. Une première région où l'épaisseur de la zone centrale du défaut est uniforme (environ 1500 μm) et une seconde région où elle décroît progressivement jusqu'à s'annuler à l'extrémité gauche de la plaquette. Comme pour la plaquette 1, le positionnement de la plaquette au sein du bain (cf. *Figure 79*) peut expliquer cette différence d'épaisseur de la zone centrale du défaut selon la région considérée. La moitié droite du défaut repose au fond du bain en contact avec le solide, où l'écoulement fluide est moins prononcé et la température du métal est plus faible (d'où une dissolution plus lente) alors que la moitié gauche du défaut est soumise à des mouvements convectifs plus intenses (d'où une dissolution plus rapide). Dans le cas de l'échantillon 2, la taille de la zone β reste, comme pour l'échantillon 1, relativement uniforme sur toute la longueur de la coupe et s'élève à $425 \pm 50 \mu\text{m}$.

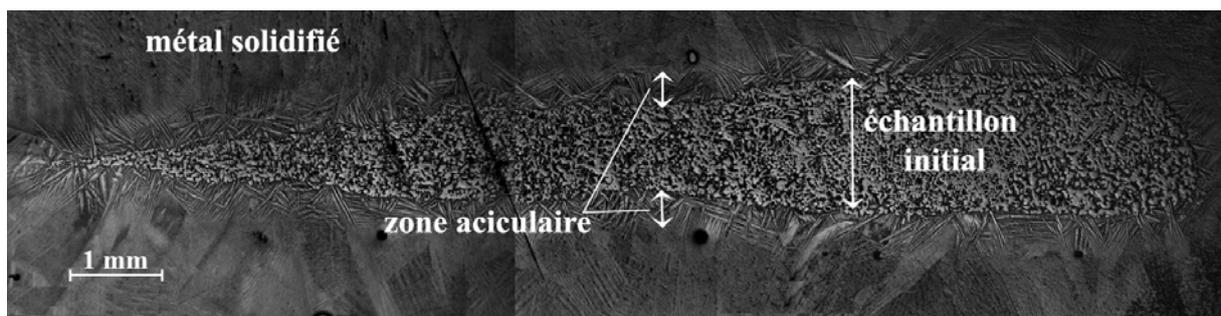


Figure 82. Observation de l'échantillon 2 au microscope après l'expérience de dissolution.

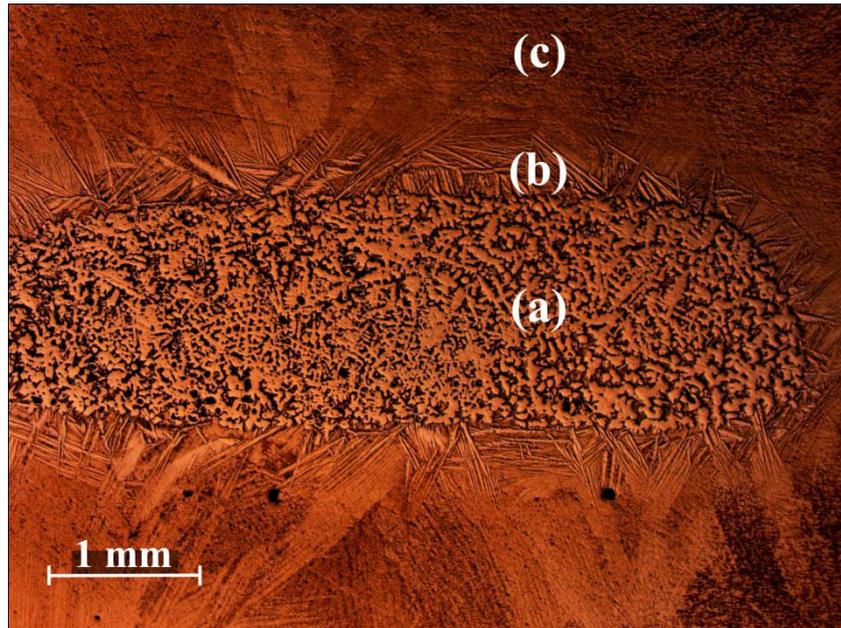


Figure 83. Zoom sur la région droite de la micrographie présentée sur la Figure 80.
 (a) : échantillon initial, (b) : zone aciculaire et (c) : titane solidifié.

V.5. Validation du modèle : Simulation numérique des expériences de dissolution

Le modèle de dissolution de défauts de titane nitruré, qui a fait l'objet du *chapitre II* de ce manuscrit, a été validé dans le passé par Hess [23] en comparant les profils de diffusion de l'azote et les épaisseurs des différentes zones obtenus expérimentalement aux prédictions issues de la simulation. Selon une démarche similaire, nous simulons dans cette section les deux expériences de dissolution de plaquettes de titane nitruré décrites dans la section précédente et nous confrontons les résultats du modèle aux mesures.

V.5.1. Données du modèle

Comme pour la dissolution des HDI, la simulation de la dissolution des plaquettes de titane nitruré nécessite la connaissance de plusieurs paramètres concernant d'une part le défaut immergé et d'autre part l'écoulement au voisinage du défaut. Les dimensions et la concentration en azote des plaquettes utilisées lors de nos expériences sont connues, ainsi que leur position au sein du bain. Les paramètres propres à l'écoulement (conditions thermiques et hydrodynamiques) varient énormément en fonction de la position du défaut. Pour les simulations présentées dans cette section, la température et la vitesse du fluide au voisinage du défaut immergé ont été estimées sur la base des approximations suivantes. Comme nous l'avons déjà mentionné, la température à la surface du bain à la position de trempage est mesurée par caméra infrarouge. En l'absence de toute autre information, nous avons, comme dans le *chapitre IV*, supposé une variation linéaire entre la valeur mesurée en surface et celle de l'interface solide/liquide (T_{liquidus}) pour déterminer la température au voisinage du défaut.

Par ailleurs, la vitesse de l'écoulement à la surface a été estimée à environ 10 cm/s en observant la trajectoire d'une particule se trouvant à la surface du bain et en supposant son mouvement dans le régime de Stokes. Comme pour la température, nous avons fait l'hypothèse d'une variation linéaire de la vitesse du fluide entre la valeur estimée à la surface du bain et une valeur nulle à proximité de la paroi solide pour estimer la vitesse du métal au niveau du défaut.

Nous avons simulé la dissolution des plaquettes au niveau de leurs faces inférieure et supérieure. Pour pouvoir utiliser notre modèle qui considère que le transfert de matière est unidirectionnel, nous ne devons pas nous placer à proximité immédiate du bord de l'échantillon. Les positions simulées le long de l'échantillon sont indiquées sur la *Figure 84*.

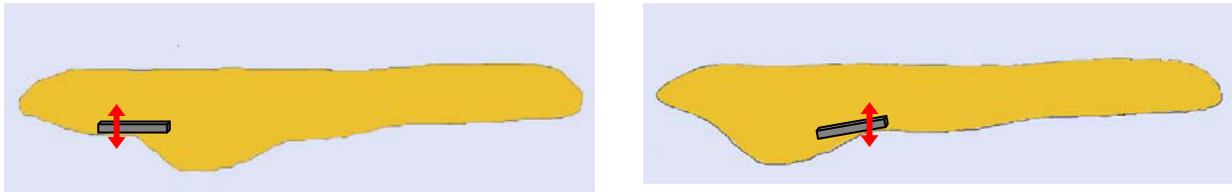


Figure 84. Positions le long de la plaquette 1 (à gauche) et de la plaquette 2 (à droite) considérées pour effectuer la comparaison expérience/simulation.

Les *Tableau 17* et *16* résument les paramètres retenus pour les simulations de la dissolution des plaquettes 1 et 2. Dans les deux cas, la température du défaut est supposée homogène et la vitesse du fluide au niveau de la face inférieure est considérée nulle.

Tableau 17. Paramètres de calcul utilisés pour la simulation de la dissolution de l'échantillon 1.

	Face supérieure	Face inférieure
Taille initiale (μm)	1400	1400
Teneur initiale en azote	3,5 % massique	
Température ($^{\circ}\text{C}$)	1690	
Vitesse du fluide (cm/s)	1,5	0
Temps de dissolution (s)	84	

Tableau 18. Paramètres de calcul utilisés pour la simulation de la dissolution de l'échantillon 2.

	Face supérieure	Face inférieure
Taille initiale (μm)	1250	1250
Teneur initiale en azote	3,5 % massique	
Température ($^{\circ}\text{C}$)	1740	
Vitesse du fluide (cm/s)	5	0
Temps de dissolution (s)	87	

V.5.2. Résultats de simulation

Les évolutions temporelles des interfaces α/β et $\beta/\text{liquide}$ prédites par le modèle sont illustrées sur la *Figure 85*. Excepté au niveau de la face supérieure de la plaquette 2, le défaut est toujours dans la phase initiale de grossissement et n'a pas encore atteint sa taille maximale.

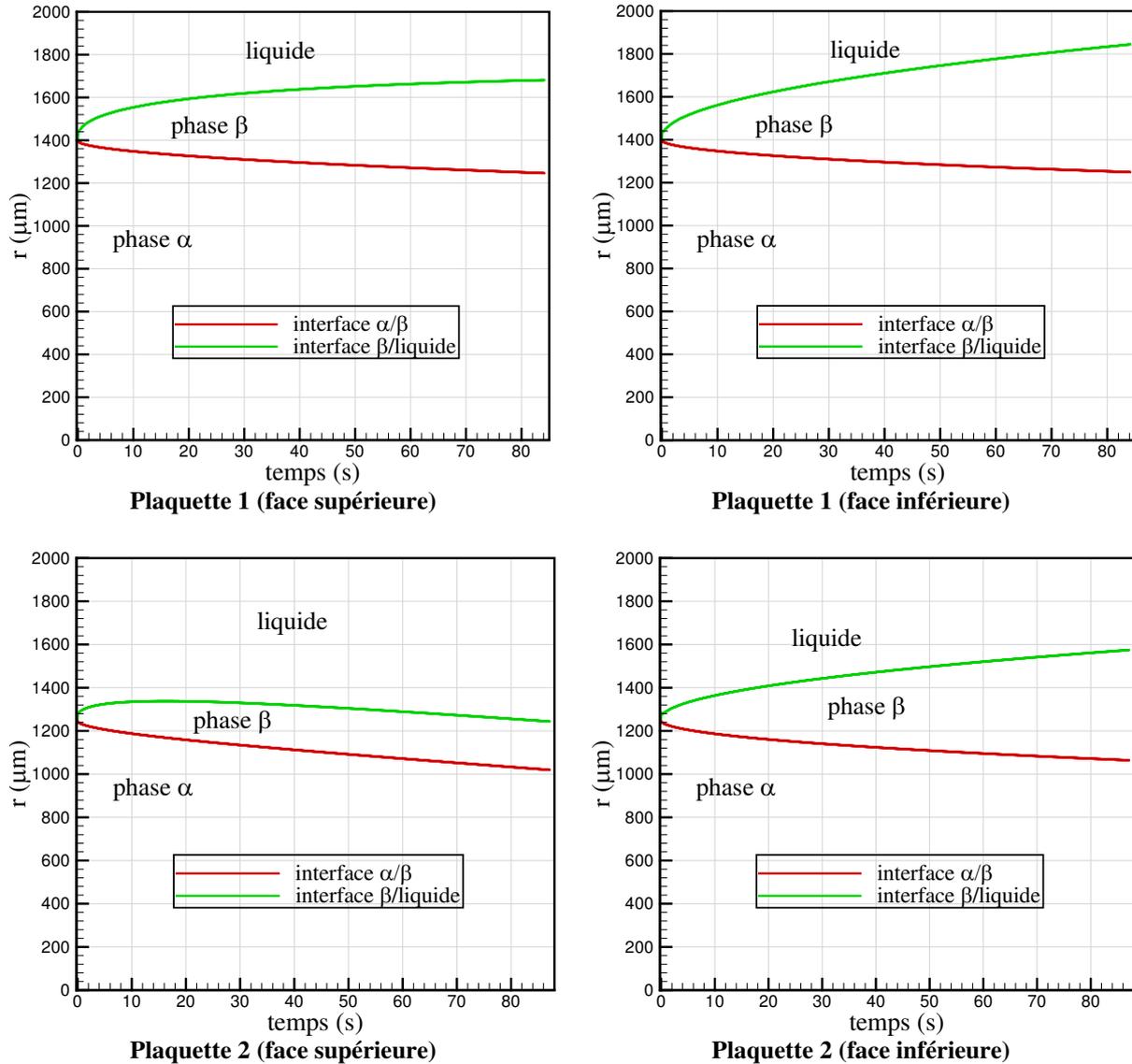


Figure 85. Evolutions temporelles des épaisseurs des phases dans les échantillons 1 et 2 prédites par le modèle.

Dans le *Tableau 19*, nous comparons les épaisseurs des phases (au moment de la coupure du faisceau) prédites par le modèle aux mesures expérimentales. La taille totale de la phase α prédite par le modèle est obtenue en sommant les épaisseurs de phase α relatives au calcul de dissolution par la face inférieure et par la face supérieure.

Un écart peut être observé entre les résultats du calcul et les mesures expérimentales. En particulier, les épaisseurs de la phase β sont sous-estimées systématiquement (hormis pour la

face inférieure de la plaquette 2) par le modèle et la diminution de taille de la zone centrale en phase α apparaît plus faible dans la simulation que dans la réalité.

De manière générale, les écarts entre expérience et simulation sont beaucoup plus prononcés dans le cas de l'échantillon 2. Ceci peut probablement être en partie attribué à une plus grande incertitude sur les valeurs précises de la température et de la vitesse du métal au niveau de cet échantillon. En effet, l'échantillon 2 est localisé sous la région de la surface balayée par le faisceau d'électrons, autrement dit dans une zone fortement surchauffée et agitée. Par conséquent, le choix d'une variation linéaire de la température et de la vitesse du métal au sein du bain est probablement très mal adapté pour estimer la vitesse et la température du métal au niveau de cet échantillon .

Notons aussi, que l'écoulement du métal n'est probablement pas parallèle à la face supérieure de la plaquette 2 à cause de son inclinaison alors que la corrélation utilisée pour calculer le coefficient de transfert de masse a été développée pour une configuration d'écoulement parallèle.

Tableau 19. Comparaison des épaisseurs (en μm) des phases dans l'échantillon partiellement dissous, mesurées expérimentalement et obtenues par le calcul.

	Echantillon 1		Echantillon 2	
	Expérience	Simulation	Expérience	Simulation
Phase β supérieure	600-700	435	400-440	224
Phase α	2150-2250	2496	1515-1565	2084
Phase β inférieure	700-800	594	380-420	510

Au vu des résultats présentés dans le *Tableau 19*, on constate que les cinétiques de dissolution sont généralement sous-estimées par le modèle. Plusieurs points susceptibles d'expliquer pour partie les écarts observés entre les résultats expérimentaux et numériques sont listés ci-dessous :

- La détermination des positions des différentes interfaces sur les micrographies n'est pas précise car l'interface α/β n'est pas plane. Par ailleurs, les aiguilles de la phase aciculaire se terminent généralement d'une façon irrégulière et sont englobées dans le titane solidifié, ce qui complique la mesure.
- Nous avons montré dans le *chapitre II* que le modèle numérique est très sensible aux variations de la température et de la vitesse du métal au voisinage du défaut. Ces paramètres sont difficiles à évaluer dans nos expériences (voir ci-dessus). Les estimations proposées dans ce travail sont entachées d'une incertitude importante.
- La teneur initiale en azote de la plaquette a été déterminée d'une manière indirecte (mesures de microdureté). Des analyses précises, par exemple à l'aide d'une microsonde de Castaing, seraient nécessaires afin de vérifier l'exactitude de ce paramètre important.

- Les valeurs des coefficients de diffusion de l'azote dans les phases α et β (cf. § II.2.3) peuvent être sous-estimées puisqu'elles ont été extrapolées à partir de mesures expérimentales réalisées à des températures inférieures à la température de fusion du titane.
- La région centrale des défauts utilisés lors de nos expériences n'est pas homogène comme nous l'avons supposé dans le modèle mais présente des ségrégations d'azote visibles sur les différentes micrographies. L'existence de régions moins enrichies en azote pourrait modifier le comportement du défaut et faciliter sa dissolution.

V.6. Conclusions et perspectives

Les expériences de dissolution de plaquettes de titane nitruré (représentant des défauts hard- α) dans un bain de titane liquide ont confirmé qualitativement les observations déjà rapportées dans la littérature. La diffusion de l'azote gouverne le processus de dissolution de tels défauts et se traduit par l'apparition de phases successives en accord avec le diagramme de phase titane-azote (*Figure 4*). La cinétique de dissolution est fonction des caractéristiques du bain de titane liquide au voisinage du défaut, notamment la vitesse du métal et sa température. Cette cinétique peut varier ainsi énormément en fonction de la position du défaut au sein du bain. Mentionnons que la réalisation de ces expériences s'est heurtée à plusieurs difficultés pratiques et méthodologiques, exposées dans ce chapitre.

Le modèle numérique de dissolution de défauts hard- α présenté dans le *chapitre II* a été utilisé pour simuler les expériences réalisées. Des écarts quantitatifs importants ont été observés entre les résultats des calculs et les mesures expérimentales. Ces écarts peuvent avoir plusieurs origines dont la plus probable est la forte incertitude associée à l'estimation du comportement hydrodynamique et thermique du bain de métal liquide au niveau du défaut.

Plusieurs perspectives sont envisagées afin d'améliorer le protocole expérimental et de poursuivre la validation du modèle mathématique.

1- Une amélioration du dispositif d'immersion (voire son automatisation) permettrait un meilleur contrôle de la position de la plaquette au sein du bain et une meilleure reproductibilité de nos expériences. Par ailleurs, afin de pouvoir étudier le comportement de défauts réels constitués d'éponge de titane nitruré, il serait nécessaire de réaliser des expériences de dissolution sur des morceaux d'éponge et de développer pour cela un dispositif spécifique de maintien.

2- Afin d'enrichir l'exploitation des expériences de dissolution réalisées dans le présent travail, il serait intéressant d'effectuer des analyses chimiques fines permettant de mesurer les profils de concentration en azote des échantillons après dissolution. La comparaison entre les profils mesurés et calculés permettrait alors de valider, de manière plus poussée, le modèle numérique. De plus la détermination des profils d'azote au sein du défaut faciliterait la

détermination des épaisseurs des phases et conduirait à des estimations plus précises de la cinétique de dissolution.

Ces analyses chimiques peuvent être effectuées à l'aide d'une microsonde de Castaing. Toutefois, précisons que la mesure de la teneur en azote dans le titane au moyen d'une microsonde présente une difficulté spécifique. En effet, la seule raie d'émission X de l'azote (K) est très proche de l'une des raies caractéristiques du titane (L_1). Il est alors nécessaire d'utiliser un programme de déconvolution pour séparer les pics d'intensité associés à ces deux raies. L'acquisition récente d'une nouvelle microsonde par le Laboratoire, et le recrutement d'un ingénieur spécialisé, pourraient permettre d'entreprendre prochainement ces mesures supplémentaires.

3- Comme pour les défauts HDI, la température du métal liquide et la vitesse de l'écoulement sont deux paramètres importants qui influencent fortement la cinétique de dissolution. Afin de relier les vitesses de dissolution obtenues aux conditions opératoires du bain et dans le but de modéliser correctement les expériences, il serait nécessaire de mieux connaître les conditions thermiques et hydrodynamiques du bain à la position de l'échantillon lors de nos expériences. La réalisation d'une simulation numérique 3D du comportement thermo-hydraulique du métal liquide dans le creuset hémisphérique utilisé dans notre étude permettrait de mieux caractériser ces conditions.

4- Enfin, il conviendrait de réaliser des expériences de dissolution pour d'autres conditions opératoires. En particulier, utiliser un bain de métal en TA6V par exemple, permettrait d'étudier l'influence des éléments d'alliage du bain sur la dissolution. Les rares travaux abordant ce dernier sujet [21,22] prédisent en effet que les éléments d'alliage peuvent jouer un rôle non négligeable sur les cinétiques de dissolution des défauts hard- α .

Conclusion générale et perspectives

Conclusion

Rappelons tout d'abord que les objectifs de cette thèse étaient les suivants :

- Fournir un instrument de simulation capable de prédire le comportement, en termes de trajectoire et de cinétique de dissolution, d'un défaut hard- α à l'intérieur du puits liquide d'un lingot VAR,
- Evaluer par la suite la capacité du procédé VAR à éliminer ces inclusions dans les alliages de titane refondus,
- Mesurer expérimentalement les cinétiques de dissolution de plusieurs défauts synthétiques, de composition voisine de celle des défauts réels rencontrés dans les lingots VAR d'alliages de titane,
- Utiliser les résultats expérimentaux pour mieux comprendre les mécanismes de dissolution et pour valider les modèles numériques développés.

Afin de simuler le comportement d'une inclusion hard- α dans le puits liquide d'un lingot VAR, un modèle mathématique a été développé et implémenté dans le logiciel SOLAR. Ce modèle associe la prédiction quantitative du processus de dissolution d'un défaut de titane nitruré et le calcul de la vitesse et de la position d'une inclusion sphérique. Il permet ainsi de prédire la trajectoire suivie par l'inclusion ainsi que l'évolution de sa taille et de sa composition pendant son séjour dans le puits.

Les résultats des simulations par le modèle complet ont montré que l'hydrodynamique du bain à l'instant précis de l'immersion de la particule, et son évolution au cours du temps, jouent un rôle important sur la trajectoire et sur la dissolution de l'inclusion. Nous avons en particulier mis en évidence l'influence prépondérante de la période du brassage électromagnétique. En outre, la position radiale précise de l'introduction du défaut à la surface du puits influence également très significativement le comportement de l'inclusion. Par ailleurs, les caractéristiques propres à l'inclusion, notamment sa masse volumique et sa taille initiale, sont des paramètres importants pour un calcul précis. Il est ainsi nécessaire de déterminer précisément la densité relative et la taille des inclusions réelles pour une meilleure prédiction du risque de contamination.

Du fait qu'un lingot industriel peut être refondu plusieurs fois (une triple refusion étant la plus utilisée pour les lingots de titane de qualité supérieure), le modèle a été appliqué pour prédire l'histoire d'une inclusion pendant un cycle VAR complet. Nous avons pu ainsi conclure qu'il est possible d'éliminer une grosse inclusion (diamètre initial ≈ 1 mm) après une triple refusion, sans que cela puisse être garanti. Par contre, dans tous les calculs réalisés, les inclusions de diamètre initial supérieur à 300 μm ont survécu à une refusion unique.

L'influence de la proximité de la paroi sur le comportement de l'inclusion est négligeable (cf. *annexe D*). Par contre, nous avons montré, par l'intermédiaire d'un module simplifié, qu'une fois l'inclusion, en contact avec le front de solidification, elle est susceptible de "rouler" sur

ce dernier et d'atteindre ainsi des régions plus proches du centre du lingot. Ceci est en accord qualitatif avec les positions des inclusions retrouvées dans les lingots industriels.

Indépendamment de son couplage avec le modèle trajectographique, le modèle de dissolution a été tout d'abord utilisé seul pour modéliser la dissolution de défauts immobiles. Les simulations ont mis en évidence la grande dépendance de la cinétique de dissolution avec la température et la vitesse du métal liquide environnant. Par ailleurs, des difficultés apparaissent au niveau de la connaissance très incertaine des concentrations interfaciales à l'équilibre pour des températures élevées et des faibles teneurs en azote. Le modèle est très sensible à ces paramètres et l'utilisation de sources de données différentes peut entraîner une grande variation de la cinétique de dissolution prédite par le modèle.

Au niveau expérimental, nous avons tout d'abord mis au point le protocole de fabrication des échantillons synthétiques de titane nitruré et celui des expériences d'immersion et de dissolution. Les résultats expérimentaux concernant la dissolution des défauts de titane nitruré ont confirmé les observations déjà reportées dans la littérature. En particulier, ils confirment que la diffusion de l'azote gouverne le processus de dissolution de ces défauts, et qu'elle se traduit par l'apparition de phases successives en accord avec le diagramme de phase Ti-N. La cinétique de dissolution est fonction du comportement du bain de titane liquide, notamment l'écoulement du métal et sa température, et peut varier significativement selon la région d'immersion. Seuls deux essais de dissolution de défauts de titane nitruré ont pu être exploités. Il est difficile de comparer les résultats de simulations aux mesures à partir de ces deux seuls cas, car le comportement hydrodynamique et thermique du métal liquide pendant la dissolution n'est pas connu avec précision.

Les expériences de dissolution ("trempage" ou "maintien") réalisées sur des cylindres de tungstène et de molybdène ont permis de mesurer la vitesse de dissolution de ces deux métaux dans le Ti CP et les alliages TA6V et Ti17. Les résultats obtenus ont montré que les vitesses de dissolution sont légèrement supérieures dans le cas du Ti CP. Les profils de concentrations des éléments dans la couche de diffusion ainsi que l'épaisseur de cette dernière ont pu être déterminés. On observe une relation nette entre l'épaisseur de la couche de diffusion et la profondeur d'immersion du fait de la variation de l'agitation du métal liquide. Enfin, un modèle numérique décrivant la dissolution des HDI, et s'appuyant sur une approche similaire à celle mise en œuvre pour un défaut de titane nitruré, a été également développé.

Perspectives

En termes de calcul de la trajectoire d'une particule, les améliorations futures du modèle numérique consistent essentiellement à étudier le comportement de la particule au moment de son introduction dans le puits liquide, et plus spécifiquement à prendre en compte les effets de surface (mouillage) au sommet du lingot.

Par ailleurs, les résultats exposés dans le *chapitre III* ont montré la grande influence de la masse volumique d'un défaut HID sur son comportement. Pour cette raison, l'évolution de la

densité de l'inclusion, considérée jusqu'ici comme constante, pendant le séjour du défaut dans le métal liquide, devra être prise en compte.

Une autre perspective consiste à optimiser la base de données des concentrations à l'équilibre du système titane-azote. Des études supplémentaires sont absolument nécessaires à ce niveau puisque le modèle est très sensible à ces paramètres. Cette étude pourrait être basée sur les travaux de Jonsson [52] qui a réalisé une évaluation du diagramme de phase Ti-N et proposé un diagramme de phase optimisé.

Il sera tout à fait intéressant de développer un outil de simulation du comportement des défauts HDI dans le lingot VAR, similaire à celui développé pour les inclusions hard- α .

Concernant les expériences de dissolutions des HID, des analyses complémentaires en utilisant une microsonde de Castaing doivent être réalisées afin de déterminer les profils de diffusion de l'azote et les comparer aux profils obtenus à l'aide du modèle mathématique. Par ailleurs, le dispositif d'immersion doit être amélioré pour permettre un meilleur contrôle du positionnement des défauts et assurer une bonne reproductibilité des résultats. Des expériences de dissolution avec de l'éponge de titane seront également très utiles pour mieux comprendre le comportement des défauts rencontrés après une refusion VAR industrielle.

Comme nous l'avons précisé à plusieurs reprises dans ce manuscrit, une meilleure connaissance des conditions hydrodynamique et thermique dans le creuset hémisphérique utilisé lors des expériences de dissolution est nécessaire pour déterminer précisément l'influence de l'évolution de ces paramètres sur la dissolution et pour modéliser correctement les expériences. Une alternative aux mesures expérimentales, très difficilement réalisables dans le four à bombardement électronique, consisterait à réaliser une simulation numérique 3-D du comportement du métal liquide dans le creuset.

Références

- [1] S. Hans, *Modélisation des transferts couplés de chaleur, de soluté et de quantité de mouvement lors de la refusion à l'arc sous vide – Application aux alliages de titane*, (1995), Thèse INPL, Nancy.
- [2] P. Chapelle, *Etude expérimentale et modélisation de l'arc électrique dans le procédé de refusion VAR*, (2001), Thèse INPL, Nancy.
- [3] T. Quatravaux, *Evolution de la modélisation du procédé VAR – Contribution à la description de la dispersion inclusionnaire dans le puits liquide et à la prévention de défauts de solidification*, (2004), Thèse INPL, Nancy.
- [4] H. El Mir, *Comportement de l'arc électrique et fusion de l'électrode consommable dans un four de refusion VAR*, (2005), Thèse INPL, Nancy.
- [5] A. Soller, *Refusion à l'arc sous vide du superalliage 718 : Modélisation du procédé et étude de la formation des "White spots"*, (2006), Thèse INPL, Nancy.
- [6] T. Quatravaux, S. Ryberon, S. Hans, A. Jardy, B. Lusson, P.E. Richey and D. Ablitzer, *Transient VAR ingot growth modelling : application to speciality steels*, J. Mater. Sci., (2004), Vol. 39, pp. 7183-7191.
- [7] A.F. Wilson, A. Jardy, J. Hamel, S.P. Fox and D. Ablitzer, *Implementation and utilization of a mathematical model to simulate vacuum arc remelting of titanium alloys*, Proc. 10th World Conf. on Titanium, Hamburg, Germany, (2003), G. Lütjering et al., eds., pp. 149-156.
- [8] A. Jardy and S. Hans, *Use of numerical modelling to study the impact of operating parameters on the quality of a Vacuum Arc Remelted ingot*, Proc. Int. Conf. MCWASP XI 2, Opio, France, (2006), C.A. Gandin et al., eds., pp. 953-960.
- [9] A. Jardy and D. Ablitzer, *Mathematical modelling of superalloy remelting operations*, Mater. Sci. Techn., (2009), Vol. 25, pp. 163-169.
- [10] K.S. Chan, L. Perocchin and G.R. Leverant, *Constitutive properties of hard- α titanium*, Metall. Mater. Trans. A, (2000), Vol. 31A, pp. 3029-3040.
- [11] Y. Millet, *Exemples de HID et HDI*, Communications privées, Timet Savoie (2007-2008).
- [12] J.P. Bellot, B. Foster, S. Hans, E. Hess, D. Ablitzer and A. Mitchell, *Dissolution of hard- α inclusions in liquid titanium alloys*, Metall. Mater. Trans. B, (1997), Vol. 28B, pp. 1001-1010.

- [13] J.L. Henry, S.D. Hill, J.L. Schaller and T.T. Campbell, *Nitride inclusions in titanium ingots: A study of possible sources in the production of magnesium-reduced sponge*, Metall. Trans., (1973), Vol. 4, pp. 1859-64.
- [14] E. Shamblen: *Technical Information Series, Report n° R89AERB141*, General Electric Aircraft Engines, (1989), Cincinnati, OH.
- [15] J.P. Bellot and A. Mitchell, *Hard-alpha particle behaviour in a titanium alloy liquid pool*, Proc. Conf. TMS Light Metals (1994), U. Mannweiler, ed., pp. 1197-1193.
- [16] S. Hans, *Elaboration d'alliages zéro-défaut pour disques de turbine : mécanisme de dissolution des défauts hard-alpha*, Rapport établi en exécution du stage numéro 93811-31/A000, Direction des Recherches Etudes et Techniques, Direction Scientifique, Section Soutien à la Recherche (DGA), (1996).
- [17] A. Mitchell, *Final Report to General Electric Corp.*, (1984), University of British Columbia, Vancouver, BC.
- [18] A. Guillou, J.P. Bars, E. Etchessahar, J. Debuigne and D. Charquet, *Dissolution du nitrure de titane dans le titane liquide et dans le TA6V4*, Proc. 6th World Conf. on Titanium, Cannes, France, (1988), pp. 697-699.
- [19] R.G. Reddy, *Kinetics of TiN Dissolution in Ti Alloys*, Proc. Symp. EBMR – State of the Art, (1990), R. Bakish, ed., pp. 119-127.
- [20] F. Shwartz, *Technical Report YKOG n° 3028/93*, Snecma, Paris, France, (1993), pp. 2-7.
- [21] B.P. Bewlay and M.F.X. Gigliotti, *Dissolution rate measurements of TiN in Ti-6242*, Acta Mater., (1997), Vol. 45, pp. 357-370.
- [22] D.J. Wang and A. Mitchell, *Effects of alloying elements on nitrogen diffusion behavior around TiN/Ti interface α region in as-cast titanium alloy*, Transactions of Nonferrous Metals Society of China (English edition), Vol. 11, (2001), pp. 738-742.
- [23] E. Hess, *Etude du procédé EBCHR : Modélisation du comportement des inclusions de type hard-alpha et du métal au sein du four à surverse*, (1997), Thèse INPL, Nancy.
- [24] P.S. Garratt and D.F. Neal, *The origin and dissolution of nitride and dense metal inclusions in Vacuum Arc Remelting of titanium alloys*, Proc. Int. Symp. Liquid Metal Processing and Casting, (1994), A. Mitchell et al., eds., pp. 111-121.
- [25] R. Ohno, *Rates of dissolution of solid iron, cobalt, nickel, and silicon in liquid copper and diffusion rate of iron from liquid Cu-Fe alloy into liquid copper*, Metall. Mater. Trans. B (1986), Vol. 17, No.2, pp. 291-305.

- [26] Y. Shoji, S. Uchida and T. Ariga, *Dissolution of solid copper cylinder in molten tin-lead alloys under dynamic conditions*, Metall. Mater. Trans. B, (1982), Vol. 13, No. 3, pp. 439-445.
- [27] H.G. Katayama, T. Momono, M. Doe and H. Saitoh, *Dissolution rate of stationary solid copper cylinder into molten Al-Cu and Mg-Cu alloys*, ISIJ International, (1994), Vol. 34, No. 2, pp. 171-176.
- [28] Y.U. Kim and R.D. Pehlke, *Mass transfer during dissolution of a solid into liquid in the iron-carbon system*, Metall. Trans., (1974), Vol. 5, No. 12, pp. 2527-2532.
- [29] J. K. Wright, *Steel dissolution in quiescent and gas stirred Fe/C melts*, Metall. Mater. Trans. B, (1989), Vol. 20, No. 3, pp. 363-374.
- [30] A. Yamanaka and H. Ichihashi, *Dissolution of refractory elements to titanium alloy in VAR*, ISIJ International, (1992), Vol. 32, No. 5, pp. 600-606.
- [31] H.A. Wriedt and J.L. Murray, *The N-Ti System, Phase diagrams of binary titanium alloys*, ed. J.L. Murray, Metals Park, OH: ASM International, (1987), pp. 176-186.
- [32] W.E. Ranz and W.R. Marshall, *Evaporation from drops*, Chem. Eng. Progr., (1952), Vol. 48, pp.141-146.
- [33] F. Incropera, D. DeWitt, T. Bergman and A. Lavine, *Fundamentals of heat and mass transfer*, 6th ed., John Wiley & Sons Inc, (2006).
- [34] A. Pasturel, Mater. Res. Soc. Symp., (1991), Vol. 186, p. 107.
- [35] W. Zhang, P.D. Lee, M. McLean and R.J. Siddall, *Simulation of intrinsic inclusion motion and dissolution during the Vacuum Arc Remelting of nickel based superalloys*, Proc. 4th Int. Symp. on Superalloys 718, 625, 726 and Various Derivatives, (2000), E.A. Loria and P. A. Warrendale, eds., pp. 29-37.
- [36] C. Crowe, M. Sommerfeld and Y. Tsuji, *Multiphase flows with droplets and particles*, CRC Press, (1998), p. 57.
- [37] R. Clift, J.R. Grace and M.E. Weber, *Bubbles, drops and particles*, Academic Press, London, (1978).
- [38] S.A. Morsi and A.J. Alexander, *An investigation of particle trajectories in two-phase flow systems*, Journal of Fluid Mechanics, (1972), Vol. 55, pp. 193-208.
- [39] J. Magnaudet, M. Rivero and J. Fabre, *Accelerated flows past a rigid sphere or spherical bubble. Part 1. Steady straining flow*, Journal of Fluid Mechanics, Vol. 284, (1995), pp. 97-135.

- [40] P.G. Saffman, *The lift on a small sphere in a slow flow*, Journal of Fluid Mechanics, Vol. 22, (1965), pp. 385-400.
- [41] R. Mei, *Brief communication: An approximate expression for the shear lift force on a spherical particle at finite Reynolds number*, International Journal of Multiphase Flow, (1992), Vol. 18, No. 1, pp. 145-147.
- [42] A. Brucato, F. Grisafi and G. Montante, *Particle drag coefficients in turbulent fluids*, Chem. Eng. Sci., (1998), Vol. 53, No. 18, pp. 3295–3314.
- [43] A.R. Khopkar and V.V. Ranade, *CFD simulation of gas–liquid stirred vessel: VC, S33, and L33 flow regimes*, American Institute of Chemical Engineers AIChE J, (2006), Vol. 52, pp. 1654–1672.
- [44] A. Jardy and D. Ablitzer, *SOLAR: Numerical software to optimize Vacuum Arc Remelting operations*, Rare Met. Mat. Eng., (2006), Vol. 35, pp. 119-122.
- [45] A.F. Wilson, A. Jardy and S.P. Fox, *A numerical study of the influence of stirring parameters on titanium ingot quality using SOLAR V4.2.*, Proc.11th World Conf. on Titanium, Kyoto, Japan, (2007), M. Ninomi et al., eds., pp. 869-872.
- [46] R. Minisandram, *Experimental observations on the effects of stirring on pools during Vacuum Arc Remelting*, Proc. Int. Symp. Liquid Metal Processing and Casting, Nancy, France, (2007), P.D. Lee et al., eds., pp. 19-54.
- [47] P. Chapelle, A. Jardy, J.P. Bellot and M. Minvielle, *Effect of electromagnetic stirring on melt pool free surface dynamics during vacuum arc remelting*, J. Mater. Sci., (2008), Vol. 43, pp. 5734-5746.
- [48] V. Venkatesh, A.F. Wilson, M. Kamal, A. Goufing, M. Thomas and D. Lambert, *Computational modeling in the primary processing of titanium: A review*, JOM, (2009), Vol. 61, pp. 45-50.
- [49] J. Hector, *Dissolution Experiments (Partie expérimentale du stage effectué à Timet UK)*, Rapport de stage de fin d'étude, Ecole des Mines de Nancy, (2008).
- [50] H. Pastor, *Propriétés du tungstène et de ses alliages*, Techniques de l'ingénieur, (1985), Ref. M570.
- [51] S. Jonsson, *Assessment of the Ti-N system*, Zeitschrift fuer Metallkunde/Materials Research and Advanced Techniques, (1996), Vol. 87, No. 9, pp. 691-702.
- [52] F. Magelli, D. Fajner, M. Nocentini and G. Pasquali, *Solids distribution in vessels stirred with multiple impellers*, Chem. Engng Sci., (1990), Vol. 45, pp. 615-625.
- [53] A. Clamen, and W.H. Gauvin, *Effects of turbulence on the drag coefficients of spheres in a supercritical flow regime*, Am. Inst. Chem. Engng. J., (1969), Vol. 15, pp. 184-189.

- [54] R. Clift, and W.H. Gauvin, *Motion of entrained particles in gas streams*. The Canad. J. Chem. Engng., (1971), Vol. 49, pp. 439-448.
- [55] P.H.T. Uhlherr and C.G. Sinclair, *The effect of free-steam turbulence on the drag coefficient of spheres*, Proceedings Chemeca 70 Vol. 1, Butterworths, Melbourne, (1970), pp. 1-13.
- [56] P. Bagchi and S. Balachandar, *Effect of turbulence on the drag and lift of a particle*, Physics of Fluids, (2003), Vol. 15, No. 11, pp. 3496-3513.
- [57] G.L. Lane, M.P. Schwarz and G.M. Evans, *Numerical modelling of gas-liquid flow in stirred tanks*, Chem. Eng. Sci., (2005), Vol. 60, pp. 2203–2214.
- [58] R.E.G. Poorte and A. Biesheuvel, *Experiments on the motion of gas bubbles in turbulence generated by an active grid*, Journal of Fluid Mechanics (2002), Vol. 461, pp. 127–154.
- [59] P.D.M. Spelt and A. Biesheuvel, *On the motion of gas bubbles in homogeneous isotropic turbulence*, J. Fluid Mech., (1997), Vol. 336, pp. 221–244.
- [60] A. Bakker and H.E.A Van Den Akker, *A computational model for the gas–liquid flow in stirred reactors*, Trans IChemE., (1994), Vol. 72, pp. 594-606.
- [61] Y. Kwon, J. Zhang and H.G. Le, *Water model and CFD studies of bubble dispersion and inclusions removal in continuous casting mold of steel*, ISIJ International, (2006), Vol. 46, No. 2, pp. 257–266.
- [62] F. Kerdouss, A. Bannari and P. Proulx, *CFD modeling of gas and bubble size in a double turbine stirred tank*, Chem. Eng. Sci., (2006), Vol. 61, pp. 3313-3322.
- [63] A.R. Khopkar, V.V. Ranade and M.P. Dudukovic, *Gas–liquid flow generated by a Rushton turbine in stirred vessel: CARPT/CT measurements and CFD simulations*, Chem. Eng. Sci., (2005), Vol. 60, pp. 2215-2229.
- [64] T. Virdung and A. Rasmuson, *Hydrodynamic properties of a turbulent confined solid–liquid jet evaluated using PIV and CFD*, Chem. Eng. Sci., (2007), Vol. 62, pp. 5963 – 5978.
- [65] A.V. Catalina, S. Mukherjee and D.M. Stefanescu, *A dynamic model for the interaction between a solid particle and an advancing solid/liquid interface*, Metall. Mater. Trans. A, (2000), Vol. 31, No. 10, pp. 2559-2568.
- [66] D.M. Stefanescu and A.V. Catalina, *Calculation of the critical velocity for the pushing/engulfment transition of nonmetallic inclusions in steel*, ISIJ International, (1998), Vol. 38, No. 5, pp. 503-505.

- [67] F.R. Juretzko, B.K. Dhindaw, D.M. Stefanescu, S. Sen and P.A. Curreri, *Particle Engulfment and Pushing by Solidifying Interfaces: Part I. Ground Experiments*, Metall. Mater. Trans. A., (1998), Vol. 29, No. 6, pp. 1691-1696.
- [68] D.M. Stefanescu, F.R. Juretzko, B.K. Dhindaw, A.V. Catalina, S. Sen and P.A. Curreri, *Particle engulfment and pushing by solidifying interfaces: Part II. Microgravity experiments and theoretical analysis*, Metall. Mater. Trans. A., (1998), Vol. 29, No. 6, pp. 1697-1706.
- [69] D.M. Stefanescu, B.K. Dhindaw, S.A. Kacar and A. Moitra, *Behavior of ceramic particles at the solid- liquid metal interface in metal matrix composites*, Metall. Trans. A, (1988), Vol. 19, No. 11, pp. 2847-2855.
- [70] Á. Borsik, K.K. Kelemen and G. Kaptay, *A dynamic model of ceramic particle-solidification front interaction*, Materials Science Forum, (2003), Vol. 414-415, pp. 371-376.
- [71] G. Kaptay, *Interfacial criterion of spontaneous and forced engulfment of reinforcing particles by an advancing solid/liquid interface*, Metall. Mater. Trans. A., (2001), Vol. 32, No. 4, pp. 993-1005.
- [72] Q. Yuan, B.G. Thomas and S.P. Vanka, *Study of transient flow and particle transport in continuous steel caster molds : Part II. Particle transport*, Metall. Mater. Trans. B, (2004), Vol. 35, No. 4, pp. 703-714.
- [73] M.A. Rizk and S.E. Elgobashi, *The motion of a spherical particle suspended in a turbulent flow near a plane wall*, Phys. Fluids, (1985), Vol. 28, No. 3, pp. 806-817.
- [74] M. Chen and J. McLaughlin, *A new correlation for the aerosol deposition rate in vertical ducts*, J. Colloid Interf. Sci., (1995), Vol. 169, pp. 437– 455.
- [75] H. Brenner, *The slow motion of a sphere through a viscous fluid towards a plane surface*, Chem. Eng. Sci., (1961), Vol. 16, pp. 242–251.
- [76] A. Maude, *The movement of a sphere in front of a plane at low Reynolds number*, Brit. J. Appl. Phys., (1963), Vol. 14, pp. 894–898.
- [77] R.G. Cox and H. Brenner, *The slow motion of a sphere through a viscous fluid towards a plane surface-II: Small gap widths, including inertia effects*, Chem. Eng. Sci., (1967), Vol. 22, pp. 1753-1777.
- [78] H. Faxen, *Die bewegung einer starren kugel langs der achse eines mit zahrer flussigkeit gefullten rohres*, Arkiv Mat. Astron. Fys., (1923), Vol. 17, pp. 1–28.
- [79] M.E. O’Neill, *A slow motion of viscous liquid caused by a slowly moving solid sphere*, Mathematika, (1964), Vol. 11, pp. 67-74.

- [80] Z. Adamczyk, M. Adamczyk and T.G.M van de Ven, *Resistance coefficient of a solid sphere approaching plane and curved boundaries*, J. Colloid Interface Sci., (1983), Vol. 96, pp. 204-213.
- [81] K. Matysa and T.G.M. van de Ven, *Rotational and translational motion of a sphere parallel to a wall*, Int. J. Multiphase Flow, (1986), Vol. 12, pp. 459-468.
- [82] B. Oesterlé, *Écoulements multiphasiques : des fondements aux méthodes d'ingénierie*, Hermès – Lavoisier Editions, (2006).
- [83] G. Segré and A. Silberberg, *Behaviour of macroscopic rigid spheres in Poiseuille flow*, Journal of Fluid Mechanics, (1962), Vol. 14, pp. 115–157.
- [84] Q. Wang, K. D. Squires, M. Chen and J. B. McLaughlin, *On the role of the lift force in turbulence simulations of particle deposition*, Int. J. Multiphase Flow, (1997), Vol. 23, No. 4, pp. 749-763.
- [85] H.E. Huppert and M.G. Worster, *Dynamic solidification of a binary melt*, Nature, (1985), Vol. 314, pp. 703-707.
- [86] J.J. Carty, *Resistance coefficients for sphere on plane boundary*, (1957), B.S. Thesis, Massachusetts Institute of Technology.
- [87] R.J. Garde and S. Sethuraman, *Variation of the drag coefficient of a sphere rolling along a boundary*, La Houille Blanche, (1969), Vol. 7, pp. 727-732.
- [88] C.D. Jan and H.W. Shen, *Drag coefficients for a sphere rolling down an inclined channel*, Journal of the Chinese Institute of Engineers, (1995), Vol. 18, No. 4, pp. 493-507.
- [89] C.D. Jan and H.W. Shen, *Movements of a sphere rolling down an inclined plane*, Journal of Hydraulic Research, (1997), Vol. 35, No. 5, pp. 689-706.
- [90] R.P. Chhabra, M. Kumar and R. Prasad, *Drag on spheres in inclined smooth tubes filled with incompressible fluid*, Powder Technology, (2000), Vol. 113, pp. 114-118.
- [91] S.I. Voropayev, J. Roney, D.L. Boyer, H.S. Fernando and W.N. Houston, *The motion of large bottom particles (cobbles) in a wave-induced oscillatory flow*, Coastal Engineering, (1998), Vol. 34, pp. 197-219.
- [92] A.V. Bazilevskii and A.N. Rozhkov, *Motion of a sphere down an inclined plane in a viscous flow*, Fluid Dynamics, (2009), Vol. 44, No. 4, pp. 566-576.
- [93] A.N. Prokunin, *Spherical particle sedimentation along an inclined plane at small reynolds numbers*, Fluid Dynamics, (1998), Vol. 33, No. 4, pp. 573-579.

[94] J.L. Murray, *The Ti-W (Titanium-Tungsten) system*, Bulletin of Alloy Phase Diagrams, (1981), Vol. 2, No. 2, pp. 192-196.

[95] J.L. Murray, *The Mo-Ti (Molybdenum-Tungsten) system*, Bulletin of Alloy Phase Diagrams, (1981), Vol. 2, No. 2, pp. 185-192.

Annexe A

Effet de la turbulence sur la trajectoire des inclusions

A.1. Généralités

Le comportement d'une particule dans un fluide en écoulement turbulent dépend à la fois des caractéristiques de la particule et de celles de l'écoulement. En général, une inclusion "répond" aux fluctuations turbulentes qui ont une échelle de taille supérieure à son diamètre; ainsi, les particules de petite taille ont un mouvement fluctuant résultant du mouvement instantané de la phase continue. Une particule dont le diamètre est plus large que l'échelle de turbulence présente des fluctuations de vitesse plus limitées. L'effet de la turbulence dans ce cas peut alors être traduit par une modification de l'écoulement au voisinage de la particule, et par suite de la traînée totale [37].

D'après Brucato et al. [42], l'influence de la turbulence sur le coefficient de traînée doit être prise en compte pour des valeurs de d_p/λ supérieures à 5 (où d_p est le diamètre de la particule et λ l'échelle de Kolmogorov). Selon Magelli et al. [52], ce rapport doit être supérieur à 10.

Dans la littérature, les coefficients de traînée sont généralement corrélés au nombre de Reynolds particulaire Re_p (basé sur la vitesse relative inclusion/fluide), mais dans la plupart des cas, les corrélations disponibles ont été développées pour des particules se déplaçant dans une phase liquide immobile.

Pour une modélisation correcte du comportement des particules, l'effet de la turbulence doit être pris en compte dans l'expression de la force de traînée. Malgré l'importance et l'intérêt scientifique et industriel de ce sujet, l'influence de la turbulence sur la traînée est encore mal connue. Cependant, certaines études ont été spécifiquement réalisées dans le but de relier l'influence de la turbulence sur le coefficient de traînée aux caractéristiques spatio-temporelles de la turbulence. Ces études sont présentées brièvement dans cette annexe.

A.2. Domaine supercritique

Il est admis que la turbulence de l'écoulement de la phase continue cause une transition prématurée en régime critique (passage de la couche limite en régime turbulent) qui est accompagnée par une diminution de la valeur du nombre de Reynolds critique Re_c , pour lequel le coefficient de traînée chute brusquement.

Des corrélations servant à calculer le coefficient de traînée dans la zone supercritique ont été proposées par Clamen et Gauvin [53] et Clift et Gauvin [54] (*Figure 86*).

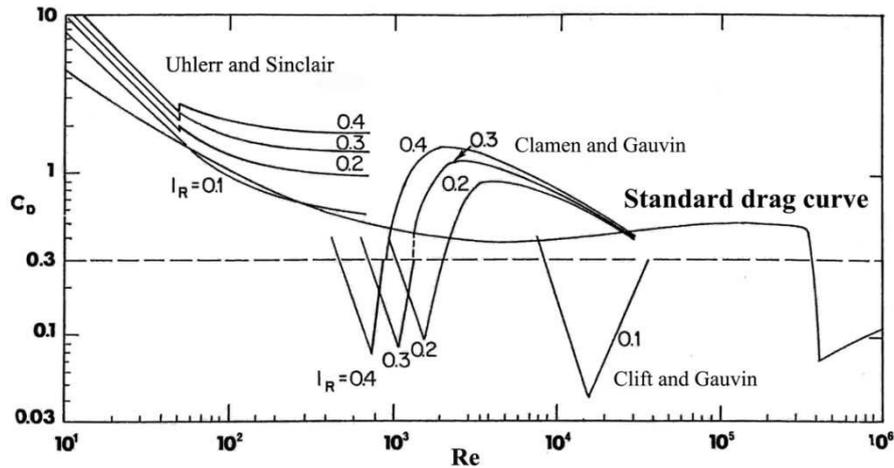


Figure 86. Coefficient de trainée standard et modifications dues à la turbulence proposées par quelques auteurs.

A.3. Domaine sous-critique

Dans la plupart des applications industrielles, et notamment le procédé VAR, le régime critique est loin d'être atteint et les nombres de Reynolds particulaire appartiennent à une gamme de valeurs bien inférieures (domaine sous-critique). De manière générale, les expériences ont montré que l'effet de la turbulence se traduit dans ce cas par une augmentation du coefficient de trainée.

La détermination expérimentale de cet effet est généralement basée sur la mesure de la vitesse de sédimentation moyenne d'une particule. De cette information, la valeur du coefficient de trainée C_D est calculée en équilibrant les forces de gravité et de trainée s'exerçant sur la particule :

$$C_D = \frac{4gd_p(\rho_p - \rho_f)}{3\rho_f} \frac{l}{u_s^2}$$

Uhlerr et Sinclair [55] ont étudié la chute libre de sphères dans un fluide en écoulement turbulent. Ils ont montré que le coefficient de trainée augmente du fait de l'interaction entre la particule et les structures turbulentes. A partir de la vitesse de sédimentation, le coefficient de trainée a pu être calculé et corrélé au nombre de Reynolds particulaire et à la composante verticale de l'intensité de turbulence relative I_R .

$$C_D = \frac{162I_R^{\frac{1}{3}}}{Re_p} \quad \text{pour} \quad Re_p < 50 \quad \text{et} \quad 0,05 < I_R < 0,5$$

$$C_D = 4I_R + 0,133 \left(1 + \frac{150}{Re_p} \right)^{1,565} \quad \text{pour} \quad 50 < Re_p < 700 \quad \text{et} \quad 0,07 < I_R < 0,5$$

$I_R = \frac{\sqrt{u'^2}}{u_s}$ u_s étant la vitesse de sédimentation moyenne et $\overline{u'^2}$ la variance de la fluctuation turbulente.

Ces équations, également représentées sur la *Figure 86*, doivent être utilisées avec précaution et ne doivent surtout pas être extrapolées en dehors de leur domaine de validité (il est facile de vérifier qu'elles ne correspondent pas à la réalité lorsque la turbulence devient faible : $I_R = 0$). De plus, il y a un doute sur leur validité puisque la seconde équation prédit par exemple un coefficient de trainée inférieur à la valeur standard de C_D pour $Re_p = 500$ et $I_R = 0,1$.

Magelli et al. [52] ont suggéré que l'influence de la turbulence sur la vitesse relative (exprimée par le rapport entre la vitesse de sédimentation dans un écoulement turbulent et celle dans un liquide au repos u_s/u_t) dépend uniquement du rapport entre le diamètre des particules d_p et l'échelle de Kolmogorov λ .

La même observation a été faite par Brucato et al. [42] qui ont utilisé une nouvelle technique expérimentale pour mesurer le coefficient de trainée moyen de particules dans un écoulement turbulent. Cette méthode a consisté en une mesure directe de la vitesse de sédimentation d'un nuage de particules solides dans un dispositif de Taylor-Couette.

Leurs résultats expérimentaux ont été comparés à la corrélation d'Uhlerr et Sinclair, puis à ceux de Magelli. L'analyse des données a permis de rejeter la première corrélation qui ne prend pas correctement en compte le rôle du diamètre de la particule. La comparaison avec les résultats de Magelli a montré un accord remarquable quand ces résultats sont représentés sous la forme (u_s/u_t en fonction de λ/d_p), ce qui indique que ce dernier paramètre, proposé par ces deux groupes d'auteurs, est bien caractéristique du comportement réel du système.

La *Figure 87* représente les résultats obtenus pour deux types de particules de différentes tailles. Pour les particules les plus volumineuses (500 μm de diamètre), le coefficient de trainée peut être 40 fois plus important lorsque l'écoulement est turbulent. La *Figure 87* se traduit par une corrélation simple :

$$\frac{C_D - C_{D_0}}{C_{D_0}} = 8,67 \cdot 10^{-4} \left(\frac{d_p}{\lambda} \right)^3$$

où C_{D_0} est le coefficient de trainée dans un fluide stagnant.

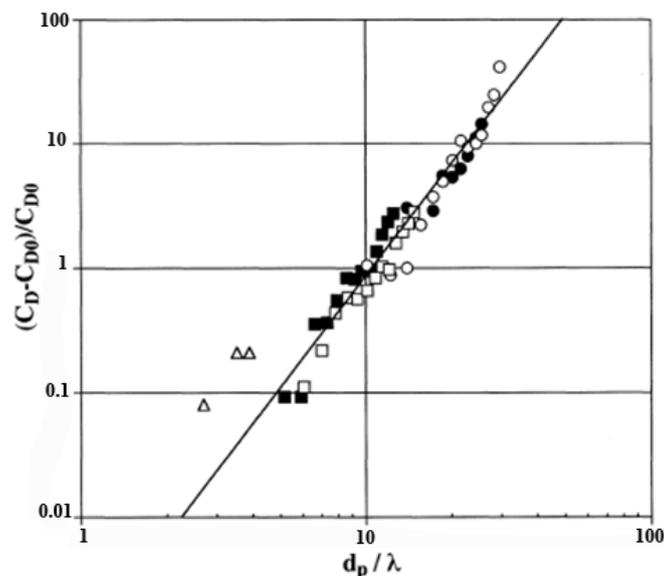


Figure 87 : Coefficient de trainée normalisé dans un écoulement turbulent en fonction de d_p/λ : verre (Δ) 63 -71 μm (\square) 212 – 250 μm (\circ) 425 – 500 μm , silice (\blacksquare) 180-212 μm (\bullet) 425-500 μm [42].

Il est important de noter que les systèmes dans lesquels les expériences de Magelli et Brucato ont été menées ne sont pas similaires, et correspondent à des échelles macroscopiques de turbulence fort différentes. Cette seconde observation a amené les auteurs à conclure que l'échelle macroscopique n'a aucune influence sur l'augmentation de la traînée, et que seule l'échelle microscopique de Kolmogorov doit être prise en compte.

Bagchi et Balachandar [56] ont calculé numériquement le coefficient de traînée à l'aide d'une simulation directe (DNS ou Direct Numerical Simulation) pour des particules de diamètre 1,5 à 10 fois plus important que l'échelle de Kolmogorov et pour des valeurs de Re_p variant entre 50 et 600. Ils concluent que les coefficients de traînée "standards" offrent une bonne approximation.

Lane et al. [57], en se basant sur une étude bibliographique et notamment sur les mesures expérimentales de Brucato et al. [42] et de Poorte et Biesheuvel [58], et sur les résultats numériques de Spelt et Biesheuvel [59], concluent que la vitesse de sédimentation peut être corrélée au rapport du temps de relaxation et de l'échelle temporelle intégrale suivant la relation :

$$\frac{u_s}{u_t} = 1 - 1,4 \left(\frac{\tau_p}{T_L} \right)^{0,7} \exp \left(-0,6 \frac{\tau_p}{T_L} \right)$$

où τ_p est le temps de relaxation dont l'expression a été donnée au paragraphe III.3.2 et T_L l'échelle temporelle intégrale

C_D peut être obtenu par la relation suivante :

$$\frac{C_D}{C_{D_0}} = \left(\frac{u_s}{u_t} \right)^{-2}$$

La Figure 88 représente cette corrélation ainsi que les valeurs expérimentales utilisées.

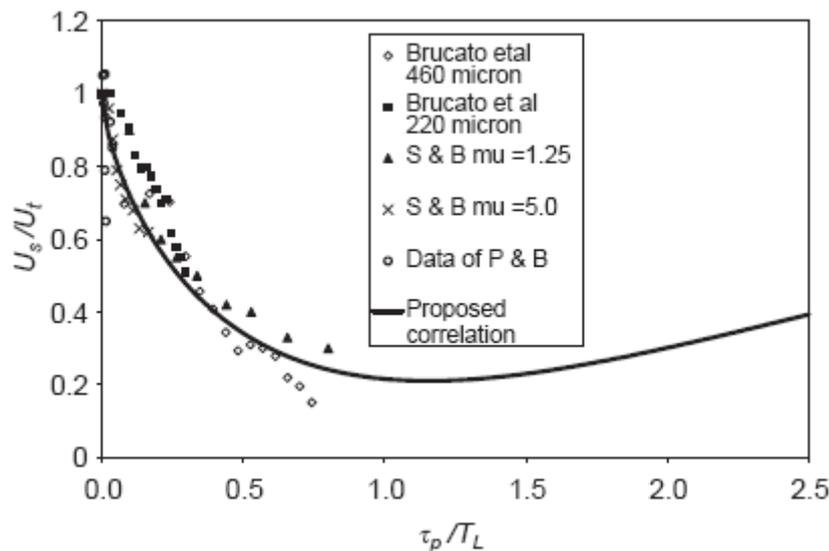


Figure 88 : Corrélation proposée par Lane et al. [57] et données provenant de la littérature.

Même si les mesures indiquent une diminution continue de la vitesse relative $v_{rel} = v_p/T_L$, la courbe proposée est extrapolée à des valeurs élevées du rapport v_p/T_L , pour lesquelles il n'y a pas de mesures.

Une méthode de modélisation complètement différente a été proposée par Bakker et Van Der Akker [60]. Cette méthode est basée sur l'utilisation d'une corrélation standard pour le calcul du coefficient de traînée, tout en modifiant le terme de viscosité dans le nombre de Reynolds particulaire de la façon suivante :

$$Re_p = \frac{\rho_f \|V_{rel}\| d_p}{\mu_f + C\mu_t}$$

C est un paramètre ajustable du modèle, introduit pour tenir compte de l'effet de la turbulence, la valeur de 2/9 étant recommandée pour le système considéré.

La même approche a été adoptée dans deux autres études (Kwon et al. [61], Kerdouss et al. [62]) avec des valeurs différentes du paramètre C . Si l'avantage de cette méthode est sa simplicité, elle n'est malheureusement pas validée par l'expérience.

A.4. Conclusions

Les résultats disponibles dans la littérature dépendent largement des conditions expérimentales utilisées et sont parfois contradictoires. Des études supplémentaires seraient certainement nécessaires. Nous avons choisi d'utiliser la corrélation de Brucato et al. [42] pour les raisons suivantes :

- elle est facile à programmer,
- bien que la corrélation ne tienne pas compte d'une éventuelle influence de la masse volumique de la particule, la gamme de valeurs (nombre de Reynolds particulaire et rapport d_p/λ) pour laquelle elle a été développée, correspond à celle de notre étude,
- elle a déjà été utilisée avec succès dans plusieurs études et pour la simulation de systèmes différents. Citons par exemple les travaux de Khopkar [63] et de Virdung et Rasmuson [64].

Annexe B

Détermination du front de solidification par SOLAR et calcul de la distance particule-front

La position du front de solidification d'un lingot VAR est calculée à chaque pas de temps de SOLAR par une méthode d'invariance barycentrique implémentée dans SOLAR par Quatravaux [3]. Le front de solidification est défini par une série de IN points (IN étant le nombre de colonnes du maillage) et se trouve évidemment localisé dans la zone pâteuse, entre les iso-fractions liquide 0,99 et 0,01. Il est ainsi constitué par une succession de segments dotés d'une inclinaison variable, globalement décroissante avec la profondeur.

La position axiale du front dans chaque colonne du maillage est représentée sur la *Figure 89*.

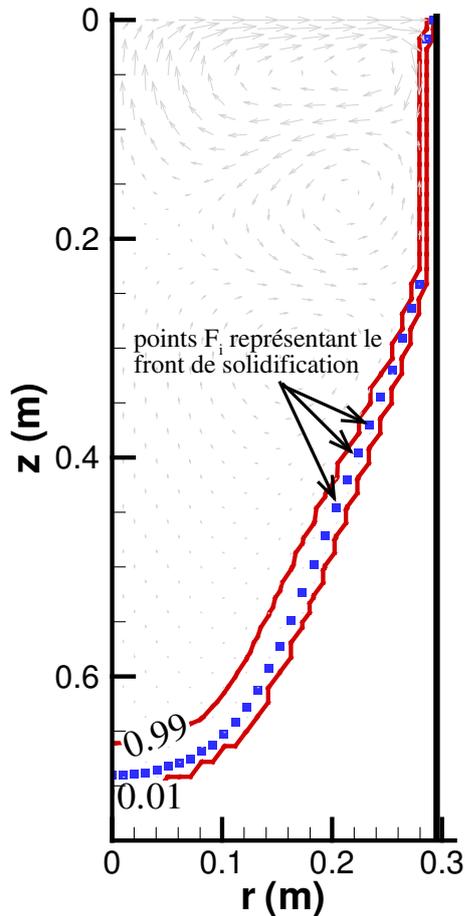


Figure 89. Exemple de front de solidification prédit par SOLAR.

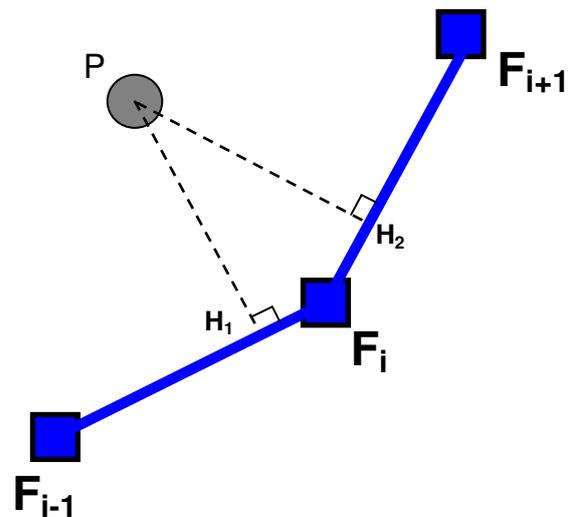


Figure 90. Représentation schématique du calcul de la distance entre l'inclusion et le front de solidification.

Pour calculer la distance au front, le nœud F_i le plus proche de l'inclusion est tout d'abord déterminé. Ensuite, les distances PH1 et PH2 (*Figure 90*) entre l'inclusion et les segments $F_i F_{i+1}$ et $F_i F_{i-1}$ sont calculées. La distance entre l'inclusion et le front est donnée par :

$$d = \min(PH1, PH2, PF_i)$$

Il se peut que la projection du point P sur le front, H1 (resp. H2), n'appartienne pas au segment $F_i F_{i-1}$ (resp $F_i F_{i+1}$) ; dans ce cas la distance PH correspondante n'est pas considérée dans l'équation ci-dessus. Pour vérifier que la projection appartient au segment nous calculons les rapports

$$r_1 = \frac{F_{i-1}H_1}{F_{i-1}F_i} \text{ et } r_2 = \frac{F_iH_2}{F_iF_{i+1}}$$

Si r_1 ou r_2 est supérieur à 1, le point est alors à l'extérieur du segment.

Annexe C

Etablissement d'abaques taille/densité/comportement

Les défauts inclusionnaires retrouvés dans les lingots d'alliages de titane et cités dans le *chapitre I* de ce manuscrit possèdent des masses volumiques assez différentes. Celles-ci varient entre des valeurs proches de celle du titane (inclusions hard- α) jusqu'à des valeurs 5 fois supérieure (tungstène). On imagine bien par conséquent que chaque inclusion peut avoir un comportement largement différent des autres dès son introduction dans le puits liquide du lingot VAR. Une grosse inclusion très lourde "coulera" rapidement au fond du bain sans être affectée par l'écoulement. Par contre, une petite inclusion de densité relative proche de 1 sera entraînée par l'écoulement et pourra même être prisonnière d'une boucle de recirculation. Entre ces deux limites, un comportement intermédiaire pourra éventuellement exister.

Dans le *chapitre III*, nous avons présenté un modèle numérique permettant de simuler la trajectoire et la dissolution des inclusions hard- α dans le puits liquide du lingot VAR. La partie trajectographique de ce modèle peut également être appliquée pour décrire la trajectoire d'une inclusion HDI (voir les perspectives de cette étude). Cependant, il est intéressant du point de vue de l'utilisateur industriel, de pouvoir prédire rapidement, à l'aide d'abaques simplifiés, dans quelle mesure une inclusion de taille et de masse volumique donnée sera affectée par l'écoulement du métal liquide. Ainsi un modèle numérique simple permettant de tracer de tels abaques fait l'objet de cette annexe.

C.1. Principe du modèle

Le modèle, dont le principe est schématisé sur la *Figure 91*, permet de représenter la sédimentation d'une particule sphérique dans un fluide semi-infini en mouvement. La particule est lâchée dans le fluide à une hauteur H et parvient au fond du domaine sous l'action de la pesanteur. Le liquide est supposé animé d'un mouvement homogène et horizontal.

La trajectoire de la particule est calculée en prenant en compte trois forces s'appliquant sur elle: la force de gravité qui regroupe le poids et la poussée d'Archimède, la force de trainée et la force de masse ajoutée. (Pour l'expression de chacune de ses forces, se référer au *chapitre III*).

Sous l'influence de l'écoulement du fluide, la trajectoire de la particule sera déviée, dans le sens de l'écoulement, d'un angle α par rapport à la verticale. Nous définissons alors un angle α_{crit} au dessus duquel nous considérons que la particule a été suffisamment affectée par le mouvement du fluide.

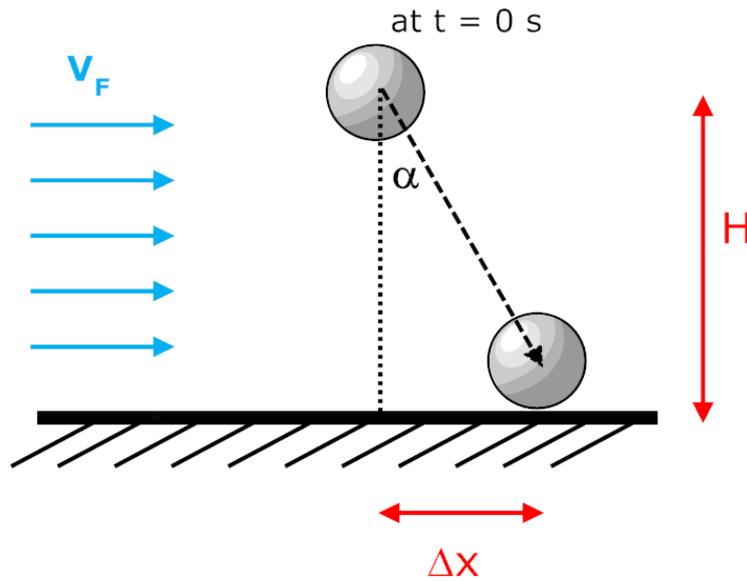


Figure 91. Schéma représentatif du principe du modèle.

Une particule légère (masse volumique proche de celle du fluide) suivra les lignes de courants et sa déviation sera supérieure à α_{crit} . En augmentant progressivement la densité de cette inclusion, on parvient à une densité critique pour laquelle l'inclusion est déviée de α_{crit} . Pour chaque diamètre de particule, une densité critique est donc calculée (V_F et α_{crit} étant fixés). Une courbe de densité critique en fonction du diamètre est donc obtenue. Un exemple de courbes $\rho_{crit}(V_F, \alpha_{crit}) = f(d_p)$ est illustré sur la Figure 92. La région située au dessus de la courbe correspond aux couples (ρ_p, d_p) pour lesquels une inclusion n'est "pas affectée" par l'écoulement de vitesse V_F , alors que la région située au dessous de la courbe correspond aux inclusions déviées d'un angle supérieur à l'angle critique choisi. Les lignes horizontales correspondent aux valeurs de masse volumique de quelques inclusions.

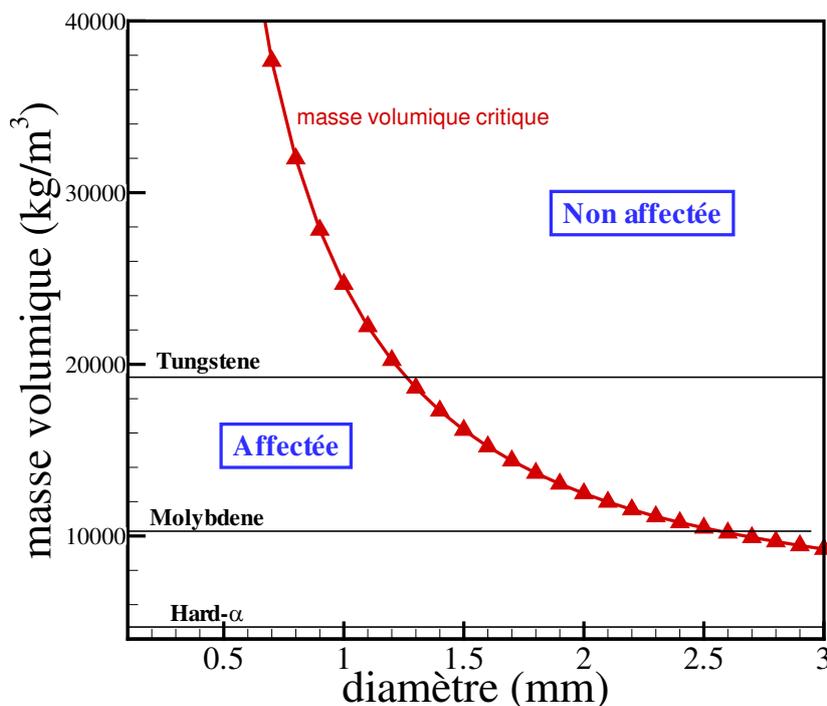


Figure 92. Exemple de courbe de masse volumique critique en fonction du diamètre ($V_F = 0,03 \text{ m.s}^{-1}$ et $\alpha_{crit} = 5^\circ$).

C.2. Résultats

En calculant de la même manière une courbe pour différentes valeurs de V_F , nous obtenons une famille de courbes constituant un abaque comme celui représenté sur la *Figure 93*. Pour la *Figure 93a*, nous avons choisi un angle α_{crit} de 10° qui correspond à un déplacement horizontal final de 17 cm pour une hauteur H de 1 m. Les vitesses de l'écoulement testées dans la *Figure 93* correspondent aux vitesses radiales (0,01 – 0,06 m/s) et orthoradiales (0,02 – 0,14 m/s) typiquement rencontrées dans un lingot VAR de titane (estimées d'après un grand nombre de calculs SOLAR). La *Figure 93b* est l'abaque obtenu pour $\alpha_{crit} = 5^\circ$. Un angle critique inférieur entraîne un décalage des courbes vers des valeurs plus élevées de masses volumiques critiques.

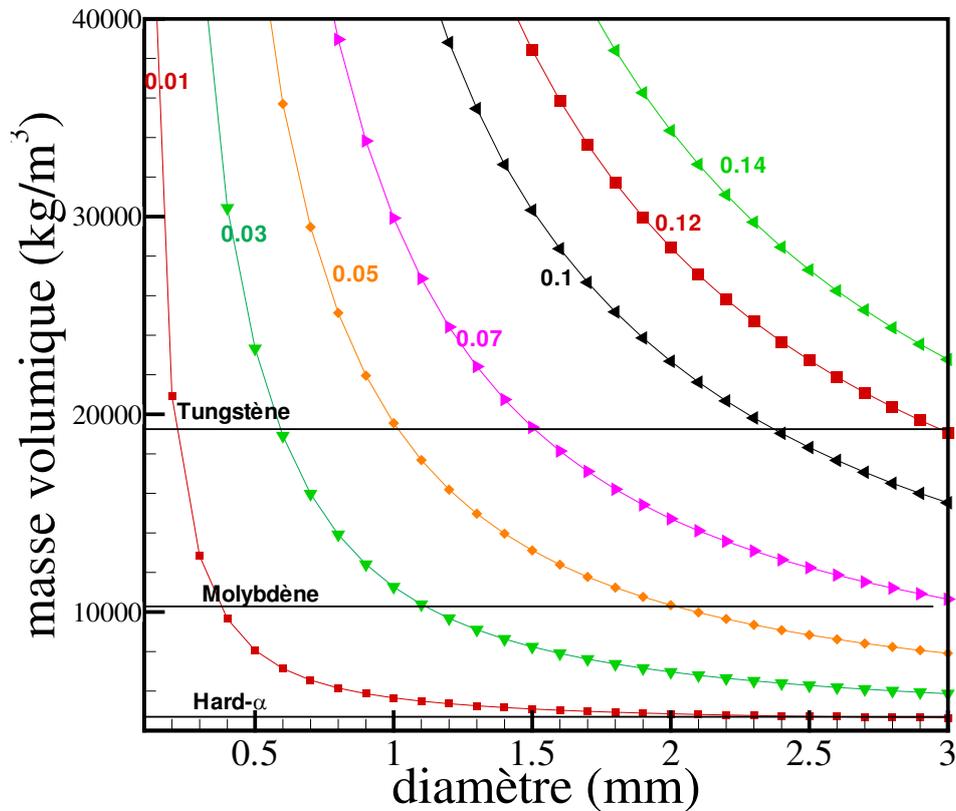


Figure 93a. Abaque correspondant à un angle critique de 10° (les vitesses d'écoulement sont exprimées en $m.s^{-1}$).

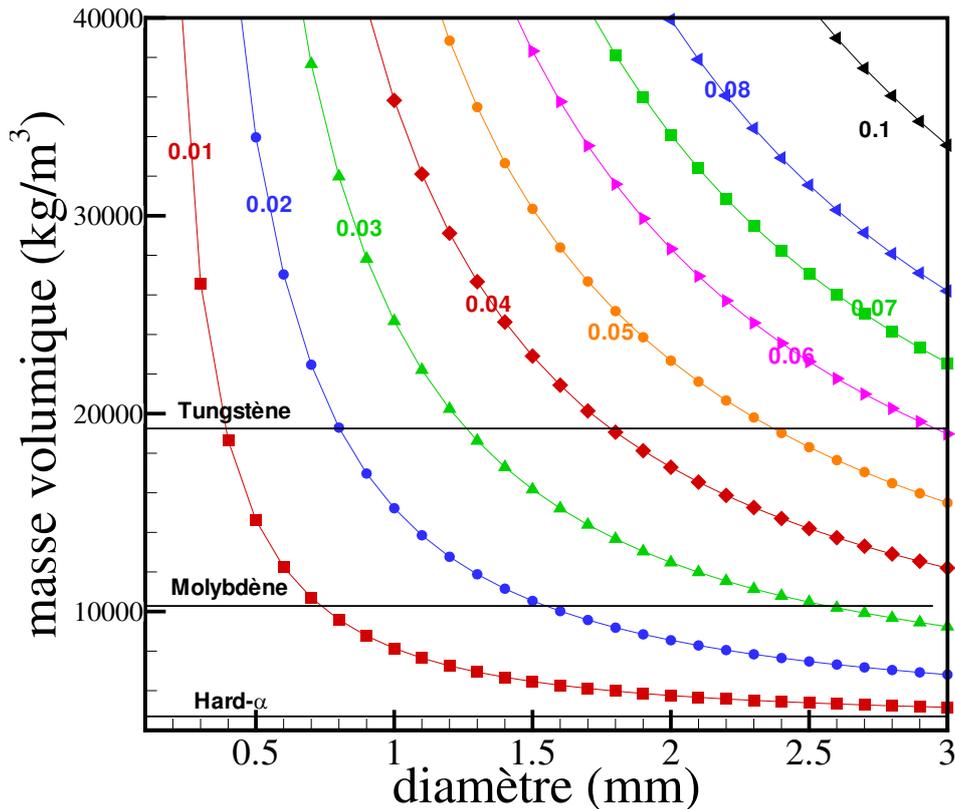


Figure 93b. Abaque correspondant à un angle critique de 5° (les vitesses d'écoulement sont exprimées en m.s^{-1}).

C.3. Conclusions

D'après ces abaques, quelques conclusions générales peuvent être tirées:

- Les inclusions de titane nitruré, même relativement grosses, sont toujours affectées par le mouvement du fluide.
- Si leur taille est suffisamment importante, les inclusions de tungstène ne seront pratiquement pas affectées par l'écoulement du métal au sein du puits d'un lingot VAR, et couleront quasi-verticalement jusqu'à leur arrivée au fond du puits.
- Le comportement trajectographique des autres inclusions (Mo, Nb) dépend de leur taille et de la vitesse du fluide.

Finalement, il est important de signaler que ces abaques sont d'un usage rapide, mais fortement simplificateur, et ne permettent pas la détermination précise du comportement d'une inclusion, surtout quand elles sont utilisées dans le contexte du procédé VAR. En effet, l'écoulement dans le puits liquide d'un lingot VAR est complexe et instationnaire et une inclusion subit généralement un gradient de vitesse temporel et spatial. De même, plusieurs autres effets, notamment la turbulence, l'inertie de l'inclusion et les variations de masse volumique pourront entrer en jeu et modifier la trajectoire.

Annexe D

Interaction particule-front de solidification

Les inclusions HID détectées dans les lingots industriels sont souvent localisées dans des régions plus proches du centre du lingot que de la paroi latérale. Notre modèle, dont les résultats ont été exposés dans le *chapitre III*, prédit le plus souvent des positions finales plutôt situées à proximité de la paroi latérale. L'interaction entre la particule et le front de solidification, qui n'a pas été prise en compte dans les calculs précédents, peut être la raison de ces différences. Une modélisation plus précise du comportement au niveau du front de solidification, qui fait l'objet de cette annexe, pourrait permettre ainsi une meilleure prédiction de la position finale d'une inclusion de titane nitruré dans le lingot VAR.

La compréhension de l'interaction entre une inclusion et le front de solidification a reçu récemment beaucoup d'attention dans la littérature scientifique. Ce phénomène est en effet d'une importance capitale dans plusieurs domaines d'application tels que l'élaboration des matériaux composites, la biologie et la métallurgie. Plusieurs modèles théoriques et études expérimentales ont été réalisés afin d'étudier les phénomènes physiques régissant cette interaction (à titre d'exemple, citons les travaux de Stefanescu et al. [65-69], Kaptay et al. [70,71] et Yuan et al. [72]). La plupart de ces études considèrent le cas où le front de solidification plan s'approche d'une particule initialement immobile (densité relative proche de 1) et de faible taille (dans la plupart des cas largement inférieure à 500 μm). Elles consistent à déterminer une vitesse critique d'avancée du front de solidification au dessus de laquelle l'inclusion est capturée par le solide et au dessous de laquelle elle est repoussée. L'effet de répulsion est expliqué par l'apparition de forces supplémentaires (forces de van der Waals, forces interfaciales) qui agissent sur l'inclusion quand elle est très proche du solide et qui peuvent être répulsives selon les propriétés du métal et de la particule.

Or, ces différentes approches ne s'appliquent pas au cas des inclusions hard- α dans un lingot VAR. En effet, les forces agissant à des échelles microscopiques sont négligeables à l'échelle du lingot industriel, où la rugosité du front colonnaire est de l'ordre de grandeur de la taille de l'inclusion. De plus, les inclusions parviennent dans la zone pâteuse avec une vitesse relativement élevée.

Notre modélisation de l'interaction entre une inclusion sphérique hard- α et le front de solidification incliné d'un lingot VAR a consisté alors à étudier deux aspects :

- Premièrement, l'influence du front de solidification sur la trajectoire de la particule quand elle se trouve dans son voisinage. Ceci est un effet hydrodynamique dû à la modification de l'écoulement à proximité de l'inclusion.
- Deuxièmement, le comportement de l'inclusion après contact et la possibilité pour l'inclusion de rouler sur le front incliné et de se trouver piégée dans des régions plus profondes, et par conséquent plus proches du centre.

Dans les deux cas, la porosité de la zone pâteuse n'est pas prise en compte. L'interface solide/liquide est représentée par un front de solidification plan dont la position est calculée par SOLAR à chaque pas de temps (cf. *annexe B*).

D.1. Comportement d'une inclusion sphérique à proximité d'une paroi

D.1.1. Introduction

Lorsqu'une particule immergée dans un fluide se dirige vers une paroi solide, son mouvement est influencé par cette paroi avant que le contact n'ait réellement lieu. Ceci est dû à une modification de l'hydrodynamique de l'écoulement au voisinage de l'inclusion.

L'influence des parois solides dans le voisinage d'une particule se traduit de deux manières différentes sur la trajectoire. Le premier effet correspond au cas où une particule s'approche de la paroi solide. Un volume de fluide doit être déplacé. La résistance visqueuse causera une augmentation de la force de trainée et donc un retard dans le mouvement dans les directions perpendiculaires et parallèles. Deuxièmement, les gradients de vitesse peuvent causer un déséquilibre dans les forces et une asymétrie dans l'écoulement causant un mouvement transversal du à une force de portance. Il est évident que, plus l'inclusion est proche de la paroi, plus ces effets seront visibles. Par conséquent, la distance entre la particule et la paroi, notée d , est une variable importante dans la détermination de ces interactions.

Plusieurs études ont considéré le mouvement de sphères immergées à proximité d'une paroi plane quand la direction principale du mouvement est soit perpendiculaire soit parallèle à la paroi. Ces deux configurations, présentées respectivement sur les *Figures 94* et *95*, ont été étudiées séparément. Quelques auteurs ont combiné les deux aspects dans leurs calculs numériques [73,74].

La plupart de ces études concernent des interfaces planes et des écoulements en régime de Stokes ($Re_p < 1$), où les effets inertiels et instationnaires dues à la variation de la distance à la paroi sont négligés. Notons aussi que des résultats analytiques ont été également obtenus dans le cadre de l'approximation de lubrification pour des rapports d/r_p faibles.

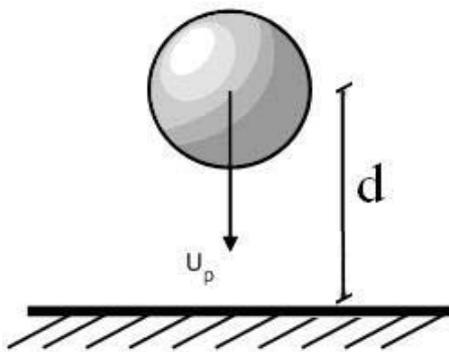


Figure 94: Mouvement perpendiculaire à la paroi.

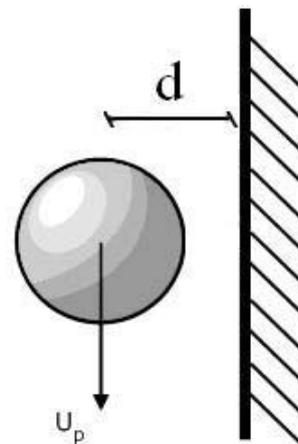


Figure 95: Mouvement parallèle à la paroi.

D.1.2. Mouvement perpendiculaire à la paroi

Quand un objet immergé s'approche d'une interface (*Figure 94*), la présence de cette paroi va retarder le mouvement. En effet, quand l'espace entre l'objet et la paroi diminue, le liquide doit être repoussé, causant une résistance supplémentaire au mouvement. Ceci équivaut à une augmentation de la force de trainée (ou du coefficient de trainée) due à la résistance visqueuse de l'écoulement. Si F est la force de trainée à proximité de la paroi et F_∞ est la force de trainée de Stokes "habituelle", le coefficient de correction est défini de la manière suivante :

$$f = \frac{F}{F_\infty}$$

où $F_\infty = 6\pi\mu_f r_p \mathbf{u}_p$ pour une sphère

Brenner [75] et Maude [76] ont été les premiers à étudier le cas d'une sphère se déplaçant perpendiculairement vers une interface. Ils ont calculé analytiquement, en coordonnées bipolaires, la force de trainée s'appliquant sur la sphère en régime de Stokes, le fluide étant immobile, et ont obtenu la prédiction du premier ordre suivante pour le coefficient de correction :

$$f_\perp = \frac{4}{3} \sinh(\alpha) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n(n+1)}{(2n-1)(2n+3)} C(n, \alpha)$$

$$\text{où } \alpha = \cosh^{-1} \left(\frac{d}{r_p} \right) = \ln \left[\frac{d}{r_p} + \sqrt{\left(\frac{d}{r_p} \right)^2 - 1} \right]$$

et d est la distance entre le centre de la particule et l'interface.

Dans le cas d'une interface rigide :

$$C(n, \alpha) = \left[\frac{2 \sinh[(2n+1)\alpha] + (2n+1) \sinh[2\alpha]}{4 \sinh^2 \left[\left(n + \frac{1}{2} \right) \alpha \right] - (2n+1)^2 \sinh^2[\alpha]} - 1 \right]$$

Signalons que dans le cas d'une interface non rigide (cas d'une interface métal liquide/laitier par exemple) :

$$C(n, \alpha) = \left[\frac{4 \cosh^2 \left[\left(n + \frac{1}{2} \right) \alpha \right] + (2n+1)^2 \sinh^2[\alpha]}{2 \sinh[(2n+1)\alpha] - (2n+1) \sinh[2\alpha]} - 1 \right]$$

La solution analytique de Brenner, illustrée sur la *Figure 96*, montre une augmentation considérable de la traînée pour des valeurs très faibles de la distance particule-paroi. Cette augmentation atteint 28 % lorsque $d = 5r_p$, et environ 100 % lorsque $d = 2r_p$, ce qui montre que l'effet de la paroi est loin d'être négligeable en régime visqueux.

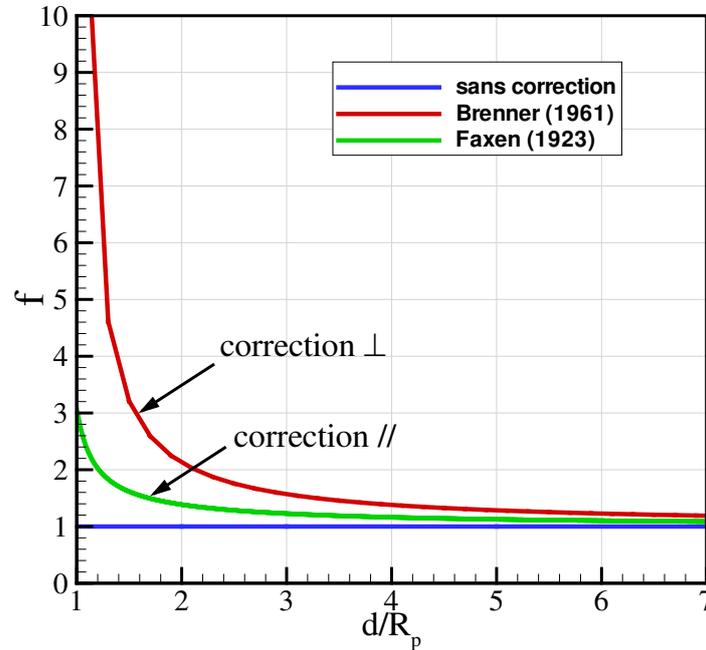


Figure 96 : Coefficient de correction de la force de traînée pour une particule en mouvement perpendiculaire ou parallèle par rapport à la paroi.

Cox et Brenner [77] ont étendu l'analyse précédente pour la région très proche de la paroi ($d \approx r_p$) et ont obtenu le coefficient de correction suivant :

$$f_{\perp} = \frac{1}{\varepsilon} \left[1 + \frac{1}{5} \varepsilon \ln \frac{1}{\varepsilon} + k \varepsilon \right]$$

où $\varepsilon = \frac{d - r_p}{r_p}$ est la distance entre la surface de la particule et la paroi et $k = 0,971264$.

En prenant en compte les effets inertiels précédemment négligés, l'expression devient :

$$f_{\perp} = \frac{1}{\varepsilon} \left[1 + \frac{1}{5} \left(1 + \frac{1}{2} Re \right) \varepsilon \ln \frac{1}{\varepsilon} \right]$$

D.1.3. Mouvement parallèle à la paroi

Concernant le mouvement parallèle à la paroi, la première correction approximée a été développée par Faxen [78], et est valide pour de faibles valeurs de r_p/d :

$$f_{//} = \left(1 - \frac{9}{16} \frac{r_p}{d} + \frac{1}{8} \left(\frac{r_p}{d} \right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{r_p}{d} \right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{r_p}{d} \right)^5 \right)^{-1}$$

La solution de Faxen est également représentée sur la *Figure 96*. Elle fait apparaître une augmentation de la trainée de 12,5% lorsque $d = 5r_p$, et d'environ 38% à une distance $d = 2r_p$ de la paroi.

Un facteur de correction similaire a été obtenu par O'Neill [79] à travers la solution exacte du problème en coordonnées bisphériques polaires.

Ces expressions ont été validées expérimentalement par Adamczyk et al. [80] dans le cas d'un mouvement vers une interface rigide, et par Malysa et van de Ven [81] pour un mouvement parallèle.

La correction qui correspond au mouvement perpendiculaire paraît ainsi nettement supérieure à celle due au mouvement parallèle. L'effet de compression du liquide et la nécessité de le repousser en dehors de l'espace situé entre la particule et la paroi requièrent beaucoup plus d'énergie que son simple entrainement à proximité de la paroi.

Notons que la modification de la trainée dans le cas du mouvement parallèle est généralement accompagnée d'une force de portance perpendiculaire à la paroi et dirigée dans le sens opposé [82]. Cet effet répulsif a été démontré dans plusieurs études expérimentales, dont la première fut celle de Segre et Silberberg [83]. Ces auteurs ont montré que, dans un écoulement laminaire unidirectionnel, les particules ont tendance à présenter une migration latérale. Deux phénomènes peuvent être à l'origine de la force de portance dans la région proche de la paroi. Le premier provient directement du gradient de vitesse au niveau de la paroi. Le second est lié au gradient de cisaillement qui induit une force de portance supplémentaire sur la sphère, même si le fluide est stagnant à l'infini.

Plusieurs expressions analytiques, expérimentales et numériques, ont été dérivées pour décrire cette force, sous la condition que l'écoulement soit en régime permanent et que la particule se déplace à une vitesse constante avec un nombre de Reynolds très faible et parallèlement à l'écoulement cisailé dont le profil de vitesse est linéaire.

Citons uniquement les travaux de Wang et al. [84] qui, en compilant tous les résultats disponibles dans la littérature et en examinant leur limite de validité, ont développé ce qu'ils ont nommé "force de lift optimale", qui représente une formulation de la portance exercée sur une particule sphérique se déplaçant parallèlement à la paroi dans un écoulement de gradient de vitesse $G > 0$. Cette force n'a pas été prise en compte dans les calculs présentés dans le prochain paragraphe.

D.1.4. Exemple d'application

Nous avons répété quelques simulations déjà exposées dans le *chapitre III* en corrigeant la force de trainée s'appliquant sur l'inclusion de façon à prendre en compte l'effet de la proximité de la paroi, précédemment négligé. Afin d'introduire ces corrections, la force de trainée a été écrite à chaque pas de temps de la façon suivante :

$$\mathbf{F}_{trainée} = f_{\perp} F_{\perp} \mathbf{i}_{\perp} + f_{//} F_{//} \mathbf{i}_{//} + f_{\theta} F_{\theta} \mathbf{i}_{\theta}$$

où f_{\perp} et $f_{//}$ sont les coefficients de correction de Brenner et de Faxen dont les expressions ont été exposées précédemment, calculés en fonction de la distance au front de solidification. F_{\perp} , $F_{//}$ et F_{θ} sont les composantes de la force de trainée dans les directions perpendiculaires au front de solidification, parallèle au front et orthoradiale respectivement. Notons que la composante orthoradiale, parallèle au front, est également corrigée par $f_{//}$. Le calcul de ces composantes requiert un changement de référentiel afin de passer du repère (x,y,z) dans lequel est réalisé le calcul trajectographique habituel au repère $(\perp, //, \theta)$ lié au front de solidification et schématisé sur la *Figure 97*. La distance au front est calculée de la façon présentée dans l'*annexe B*.

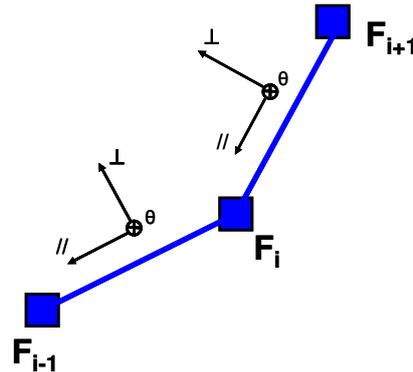


Figure 97. Référentiel lié au front de solidification.

L'examen de l'expression de la force de trainée donnée ci-dessus montre que l'effet de la paroi se traduit, d'une part par un retard apporté au mouvement à cause de l'augmentation de la trainée, et d'autre part par une favorisation du mouvement parallèle par rapport au mouvement perpendiculaire puisque le coefficient f_{\perp} est supérieur à $f_{//}$. Pour une particule se dirigeant vers une paroi inclinée, cela implique un effet répulsif. Par ailleurs, si la particule est suffisamment retardée (à cause de l'augmentation de la force de trainée), de sorte qu'elle subisse un changement de conditions hydrodynamiques par rapport au cas où la présence de la paroi n'est pas prise en compte, une modification de la trajectoire due uniquement à l'instationnarité de l'écoulement pourra être observée.

Les exemples de calcul que nous montrons par la suite ont été réalisés pour 3 inclusions (1, 8 et 12) du *chapitre III*, dont nous rappelons les principales caractéristiques dans le *Tableau 20*. Les trajectoires de chacune de ces inclusions, sans et avec les corrections, peuvent être observées sur la *Figure 98*. La position du front de solidification prédite par SOLAR au moment du contact est également illustrée sur chacune de ces figures. La *Figure 99* montre l'évolution temporelle de la distance entre le front de solidification et le centre de l'inclusion 8 ainsi que celle des coefficients de correction f_{\perp} et $f_{//}$ correspondants.

Tableau 20. Caractéristiques des inclusions simulées.

	Densité Relative	Diamètre initial (mm)	Teneur initiale en N (% massique)	Refusion
Inclusion 1	1,02	1	5	1
Inclusion 8	1,02	1	7	2
Inclusion 12	1,02	0,5	7	2

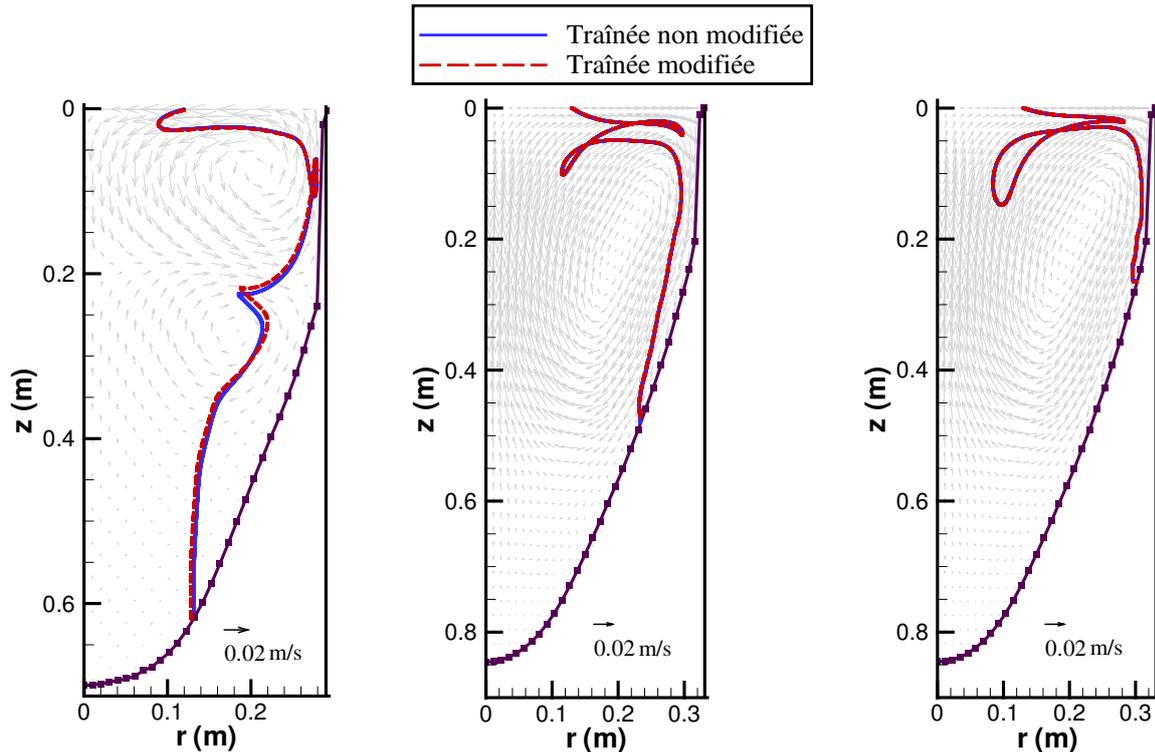


Figure 98. Trajectoire projetée dans le plan (r, z) de l'inclusion 1 (à gauche), de l'inclusion 8 (au centre) et de l'inclusion 12 (à droite) avec et sans les corrections dues à la proximité de la paroi.

Il apparaît ainsi que les corrections n'ont pratiquement aucune influence sur le comportement de l'inclusion et que la proximité de l'inclusion et du front n'entraîne pas de modification visible de sa trajectoire. Même pendant les derniers instants, lorsque la distance d est très faible et que la force de traînée augmente considérablement comme le montre la *Figure 99*, la trajectoire n'est pas affectée. En effet, quand l'inclusion arrive au niveau du front de solidification et en l'absence de mouvement de fluide, la force de gravité est prédominante. Le temps pendant lequel la force de traînée augmente n'est pas suffisamment long pour modifier la trajectoire de manière remarquable.

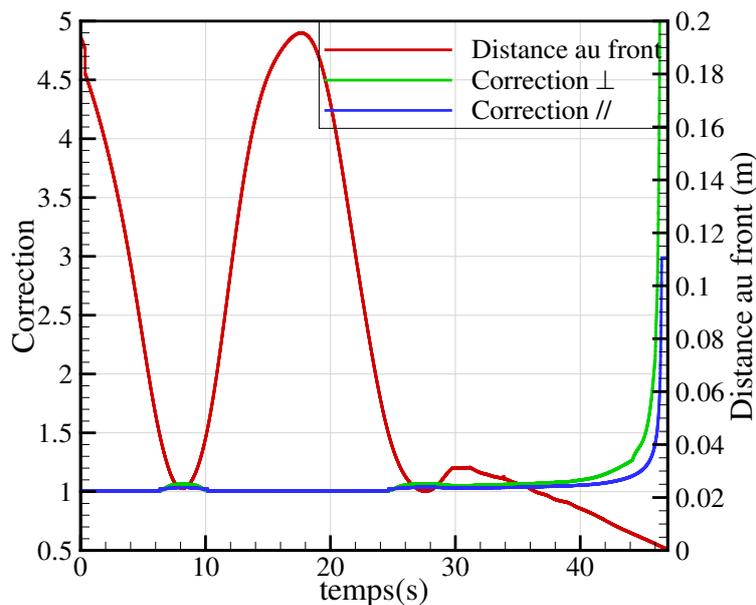


Figure 99. Evolution de la distance entre l'inclusion 8 et le front de solidification et des corrections correspondantes apportées à la force de traînée.

Cependant, en réalisant d'autres simulations, nous avons remarqué que cette conclusion n'est pas toujours valide. Dans certains cas, si l'inclusion passe suffisamment près de la paroi et reste à sa proximité pendant quelque temps sans être capturée, et si sa taille est suffisamment importante pour que le rapport d/r_p soit faible, la trajectoire peut être légèrement affectée comme le montre l'exemple de la *Figure 100* et de la *Figure 101*. Dans cet exemple, l'inclusion possède un diamètre initial de 2 mm et une densité relative de 1,04. L'introduction de l'effet de la paroi entraîne une modification de trajectoire plus marquée que dans les cas précédents. La position finale est décalée de quelques centimètres par rapport aux calculs obtenus sans prendre en compte la présence de la paroi. Le temps de résidence est augmenté de 2 secondes.

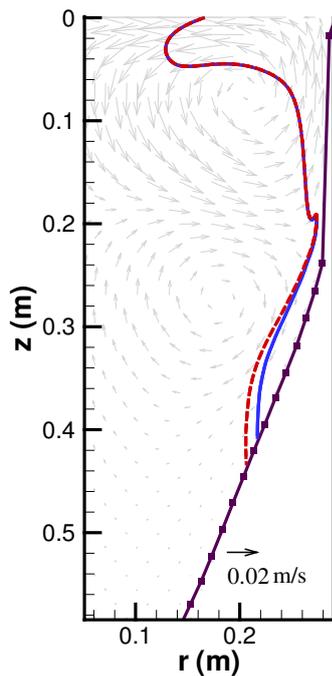


Figure 100. Trajectoire de l'inclusion projetée dans le plan (r, z) avec et sans la correction de la force de trainée.

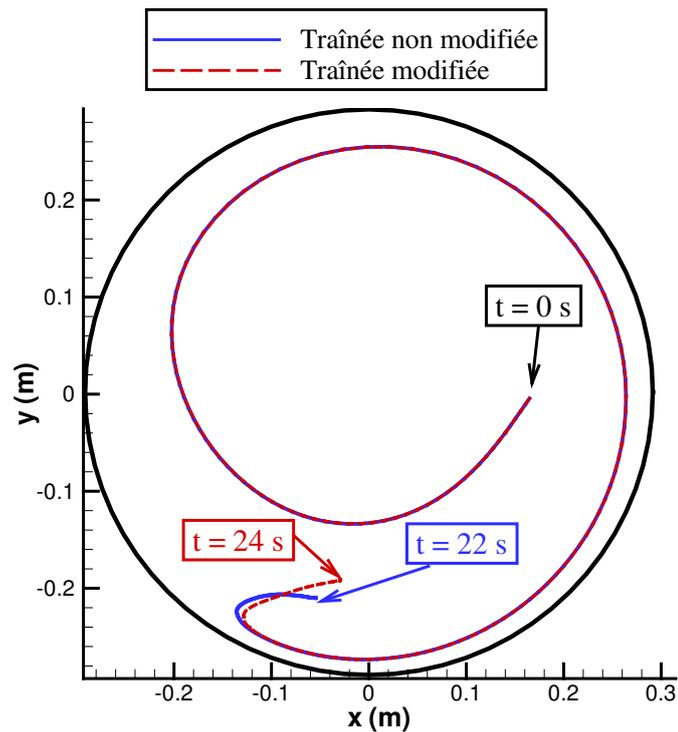


Figure 101. Vue de dessus du lingot montrant la trajectoire de l'inclusion.

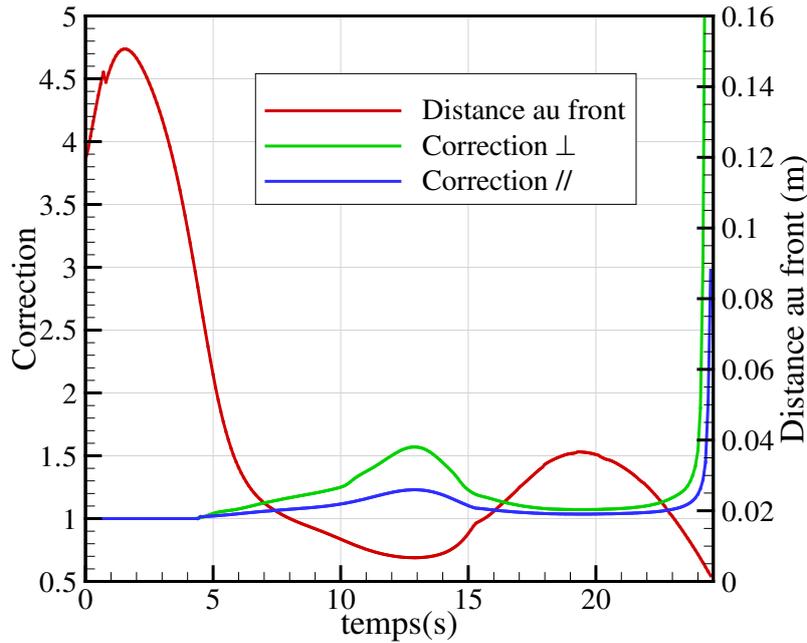


Figure 102. Evolution de la distance entre la particule et le front de solidifications et des corrections correspondantes apportées à la force de trainée.

D.1.5. Conclusions

Les calculs ont montré que la proximité du front de solidification a généralement un effet négligeable sur la trajectoire d'une inclusion.

Les formulations et corrections que nous avons étudiées ont été développées pour des inclusions se déplaçant avec de faibles nombre de Reynolds particulaires. Malheureusement, des études exploitables pour des nombres de Reynolds plus élevés n'existent pas dans la littérature. Par ailleurs, la paroi a été supposée plane. En réalité, le front de solidification d'un lingot VAR est "rugueux" (zone pâteuse) et les inclusions parviennent au voisinage du solide avec un nombre de Reynolds particulaire élevé, de l'ordre de quelques dizaines dans certains cas. Toutes ces hypothèses rendent les expressions proposées très simplificatrices dans le cas de notre étude.

D.2. Roulement sur le front de solidification

D.2.1. Introduction

Sur une tranche radiale, la microstructure d'un lingot VAR de titane se compose généralement de trois parties. La première est une couche mince equiaxe qui se forme dans la zone de contact avec le creuset. Une seconde région est constituée de longues dendrites colonnaires dont les pointes définissent le front de séparation entre la région solide et la région liquide. Enfin, au centre du lingot, une microstructure equiaxe est souvent observée. Dans la "région colonnaire", la distance entre les pointes des dendrites, appelée PDAS (Primary Dentricle Arm Spacing), n'est généralement pas connue avec précision pour les alliages de titane. Cependant,

il est généralement admis que, pendant l'élaboration des alliages métalliques, la distance interdendritique primaire peut varier entre quelques dizaines et quelques centaines de micromètres.

Un exemple de front dendritique formé lors de la solidification d'une solution de chlorure d'ammonium est représenté sur la *Figure 103*. Le but de cette figure est de montrer qualitativement la morphologie de la zone de contact entre la particule et le solide. Cette région se présente ainsi comme une surface rugueuse inclinée sur laquelle une inclusion peut rouler, comme représenté sur la *Figure 104*.

Le logiciel SOLAR, dans sa version actuelle, ne prend pas en compte la formation de la région equiaxe au centre du lingot. Par ailleurs, le front de solidification est défini à partir de la zone pâteuse en effectuant une invariance barycentrique des phases liquide et solide (cf. *annexe B*).

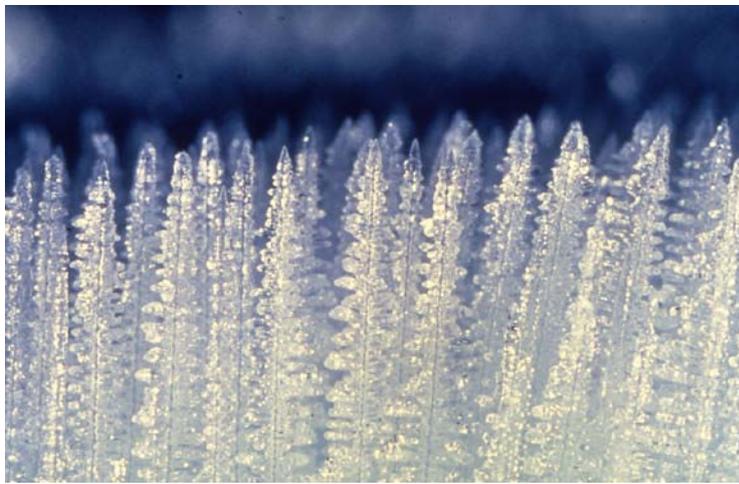


Figure 103. Dendrites en croissance dans une solution de chlorure d'ammonium. Photo de Mark Hallworth [85].

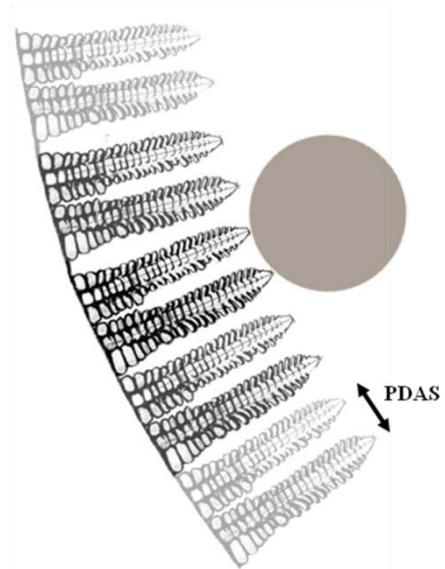


Figure 104. Schéma représentant une inclusion roulant sur un front de solidification dendritique incliné.

Dans cette section, nous étudions numériquement le roulement d'une inclusion de type hard- α sur le front de solidification du lingot VAR, phénomène qui pourrait expliquer la présence des inclusions dans des régions proches du centre du lingot solidifié.

D.2.2. Présentation du modèle

Une fois en contact avec le front de solidification, l'inclusion peut subir deux comportements différents selon sa taille. Si son diamètre est inférieur à l'espacement interdendritique primaire (PDAS) elle sera incorporée entre les branches des dendrites en croissance. Dans la littérature, on utilise souvent le terme "entrapment" pour décrire ce phénomène. Dans le cas contraire, entraînée par son poids et à cause de l'inclinaison du front de solidification, l'inclusion aura tendance à rouler sur la pointe des dendrites pour atteindre des régions plus profondes (Nous avons vu dans le *chapitre III* qu'une inclusion hard- α peut avoir une masse volumique

inférieure à celle du titane liquide. Par contre, si une inclusion parvient au niveau du front de solidification au fond du bain, elle est nécessairement plus lourde que le métal).

Plusieurs forces s'exercent sur la particule pendant son roulement et s'opposent à son mouvement. Ces forces qui proviennent d'une part de la viscosité du fluide et d'autre part des frottements entre les deux surfaces en contact, peuvent causer un arrêt du roulement qui sera suivi par l'incorporation de la particule dans le métal en cours de solidification ("engulfment").

Le modèle que nous avons développé décrit ces phénomènes d'une manière simplifiée. Il consiste à suivre la trajectoire de l'inclusion par une approche lagrangienne similaire à celle du modèle trajectographique du *chapitre III*, en prenant en compte les nouvelles forces de frottement qui agissent sur l'inclusion et la nouvelle géométrie qui s'impose.

Avant de rentrer dans les détails, mentionnons quelques hypothèses simplificatrices adoptées :

- Le modèle de roulement n'est pas couplé à SOLAR. En d'autres termes, nous ne prenons pas en compte la dynamique du front de solidification, mais nous considérons que la position de ce dernier est constante depuis le moment d'arrivée de l'inclusion et jusqu'à la fin des calculs.
- La déformation des dendrites due aux collisions avec la particule n'est pas prise en compte.
- Le problème a été réduit à 2 dimensions (radiale et axiale), et nous n'avons pas considéré le mouvement orthoradial de l'inclusion.
- Dans la réalité, la longueur des dendrites pourrait varier le long du front. Si l'inclusion entre en contact avec une aspérité de taille supérieure aux autres, elle pourrait être soit arrêtée, soit rejetée dans le métal liquide. Cet effet géométrique aléatoire n'est pas décrit par le modèle.
- Nous avons négligé la vitesse du fluide au niveau du front de solidification. La présence d'un écoulement à ce niveau pourrait amplifier le phénomène de roulement, ou s'opposer à celui-ci.

Appliquées à la particule, les relations fondamentales de la dynamique de translation et de rotation s'écrivent :

$$\Sigma \mathbf{F} = m_p \frac{d\mathbf{V}_p}{dt}$$

$$\Sigma \mathbf{M} = J \frac{d\boldsymbol{\omega}}{dt}$$

Dans la première équation, m est la masse de l'inclusion, \mathbf{V}_p sa vitesse linéaire et \mathbf{F} les forces agissant sur l'inclusion et représentées sur la *Figure 105*. En plus de la force de gravité, de la force de trainée et de l'effet de masse ajoutée qui agissaient précédemment sur l'inclusion, deux nouvelles forces de frottement apparaissent dans le cas du roulement. Ces forces sont dues au contact entre la particule et les aspérités du front de solidification. Les expressions de ces forces sont exposées ci-dessous.

Dans la seconde équation, J est le moment d'inertie, $\boldsymbol{\omega}$ sa vitesse rotationnelle, et \mathbf{M} les moments des couples s'exerçant sur la particule.

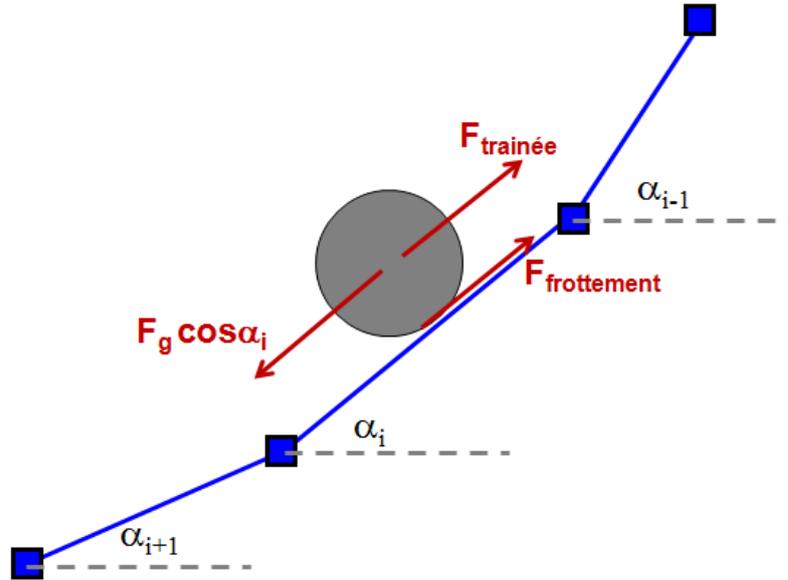


Figure 105. Forces agissant sur la particule projetées dans le repère parallèle au front de solidification.

a) La force de gravité projetée dans la direction parallèle au front est la force motrice du mouvement. Cette force regroupe le poids de l'inclusion et la poussée d'Archimède.

$$\mathbf{F}_{\text{gravité}} = \frac{\pi}{6} (\rho_p - \rho_f) d_p^3 \mathbf{g}$$

b) Comme pour la force de gravité, la force de trainée du fluide est similaire à celle exposée dans le *chapitre III* (cf. § III.2.1) et s'exprime en fonction du coefficient de trainée C_D qui dépend à son tour du nombre de Reynolds particulaire. La seule différence consiste à remplacer la vitesse relative par celle de la particule puisque nous supposons que le fluide est stagnant.

$$\mathbf{F}_{\text{trainée}} = -\frac{\pi}{8} \rho_f d_p^2 C_D \|\mathbf{V}_p\| \mathbf{V}_p$$

Par ailleurs, plusieurs études expérimentales [86-90] ont montré que le coefficient de trainée d'une particule sphérique en roulement sur un plan incliné dans un fluide visqueux est largement supérieur à celui d'une particule loin des parois. La *Figure 106* montre une comparaison entre les coefficients de trainée standard et ceux d'une sphère en roulement sur un plan incliné rugueux proposés dans [88].

Bien que cette augmentation de trainée paraisse logique à cause d'une modification éventuelle du gradient de pression autour de la particule en roulement, les larges différences observées par ces auteurs [86-90] pourraient être dues à une sous-estimation des forces de frottement dans leurs différentes analyses.

c) La force de masse ajoutée (cf. § III.2.1)

$$\mathbf{F}_{\text{masse_ajoutée}} = -\frac{\pi}{12} \rho_f d_p^3 \frac{d\mathbf{V}}{dt}$$

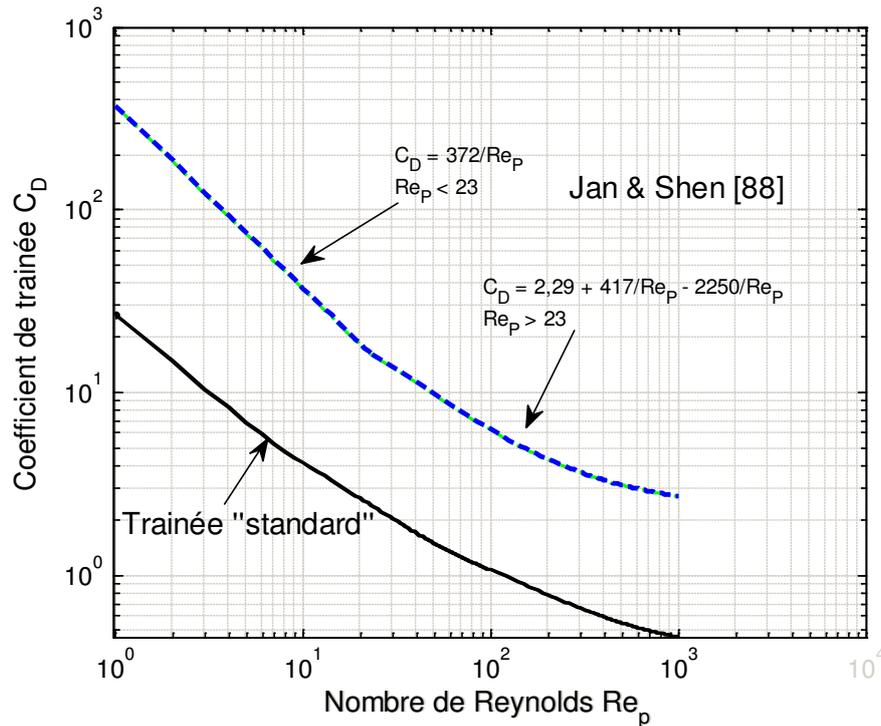


Figure 106. Coefficient de trainée standard [38] et coefficient de trainée d'une particule en roulement sur un plan rugueux (corrélation proposée par Yan & Shen [88]).

d) Le comportement de la particule peut varier entre un mouvement de glissement pur et un mouvement de rotation pure. La force de frottement de glissement f_g est inférieure ou égale à μN . N étant la force de réaction du plan et μ le coefficient de frottement de glissement. Pour des faibles valeurs de ω (glissement important) nous supposons que:

$$\|f_g\| \approx \mu \|N\| = \mu (\|F_g\| \sin \alpha - \|F_L\|)$$

F_L est la force de portance que nous avons négligée pour le moment. Le coefficient de frottement de glissement μ a été souvent déterminé par voie expérimentale [88,91]. La méthode adoptée consiste à coller deux sphères (pour éviter leur roulement) et les placer sur un plan à inclinaison modifiable. Ce coefficient est alors défini comme étant la tangente de l'angle maximum pour lesquels les sphères arrêtent de glisser après avoir reçu une impulsion initiale. Quelques valeurs trouvées dans la littérature sont listées dans le *Tableau 21*.

Ce coefficient est inconnu dans le cas de notre système et pratiquement impossible à mesurer. Pour le moment, nous le considérons comme un paramètre ajustable. Le modèle utilise actuellement la valeur $\mu = 0,5$.

Tableau 21. Valeurs de μ trouvées dans la littérature (h étant la rugosité de la surface en mm).

Matériaux en contact	Valeur du coefficient μ
Galet sphérique sur du verre [91]	0,05
Galet sphérique sur du plastique [91]	0,1-0,25
Particules en Pb ($h = 0,27 \pm 0,2$) sur du verre ($h=0,04$) [93]	0,27
Galet sphérique sur un plan couvert de sable [91]	0,5
Particule en céramique sur du verre [92]	0,51

e) Puisque la particule roule, une force de frottement liée au roulement doit être également prise en compte. Cette force est due aux pertes de quantité de mouvement et de moment cinétique et peut provenir de plusieurs causes :

- les collisions entre la particule et les rugosités du front,
- la dissipation d'énergie due aux déformations plastiques,
- la décalage de la force de réaction par rapport à sa position habituelle, qui crée un moment opposé au mouvement.

La force de frottement de roulement est généralement beaucoup plus faible que la force de frottement de glissement. Dans notre modèle nous avons choisi une équation simple, proposée par Jan et Shen [88,89].

$$f_R = -k_R \|V_p\| V_p$$

Le coefficient k_R demeure inconnu et représente un autre paramètre ajustable du modèle. Il a été déterminé empiriquement par ces auteurs à partir de leurs résultats expérimentaux. Sous cette forme, la force de frottement de roulement est similaire à une force de traînée supplémentaire appliquée au système.

Résolution

En utilisant les expressions ci-dessus, seule la résolution de l'équation fondamentale de la dynamique en translation est nécessaire pour déterminer la vitesse de l'inclusion et par la suite sa position.

L'équation est résolue dans un repère monodimensionnel dont la direction est parallèle à l'interface solide/liquide. Ce repère n'est pas fixe puisque le front de solidification défini par SOLAR est constitué d'une suite de segments de droites dont l'inclinaison par rapport à l'horizontale est variable. Chaque fois que la particule arrive sur un nouveau segment, sa vitesse doit être réactualisée de la façon suivante:

$$V_{i+1} = V_i \cos(\alpha_i - \alpha_{i+1})$$

où V_i est la vitesse de l'inclusion sur le segment i et α_i l'inclinaison de ce segment.

D.2.3. Exemples de résultats

Le modèle a été appliqué pour simuler le comportement de l'inclusion 3 (diamètre initial 1 mm, densité relative 1,02) du *chapitre III* après que cette inclusion ait atteint le front de solidification.

Les valeurs des coefficients de frottement de glissement et de roulement retenues pour cette simulation sont 0,5 et 10^{-4} respectivement. Dans un premier temps, les coefficients de traînée standard ont été utilisés.

La *Figure 107* montre l'ensemble de la trajectoire de cette inclusion qui comprend les calculs présentés dans le *chapitre III*, relatifs au comportement dans le bain, ainsi que les résultats du modèle de roulement. Un zoom sur une partie du front (*Figure 108*) montre plus clairement la trajectoire de l'inclusion parallèlement au front de solidification.

L'évolution de la vitesse linéaire de la particule en fonction du temps, depuis son arrivée sur le front et jusqu'à son arrêt au fond du bain, peut être observée sur la *Figure 109*. La forme

particulière de cette courbe est due à la discrétisation du front de solidification en une série de segments. Chacun des paliers correspond à la vitesse de l'inclusion sur l'un de ces segments. L'inclusion atteint très rapidement, sur chacun des segments, une vitesse constante à cause de la résistance visqueuse du fluide. Puisque l'inclinaison du front diminue avec la profondeur, la vitesse de la particule diminue à son tour globalement jusqu'à s'annuler pour une profondeur de 66 cm. A ce point, la force de gravité n'est plus suffisamment élevée pour vaincre le frottement. L'arrêt intervient alors après 40 s de roulement, à 9 cm du centre du lingot.

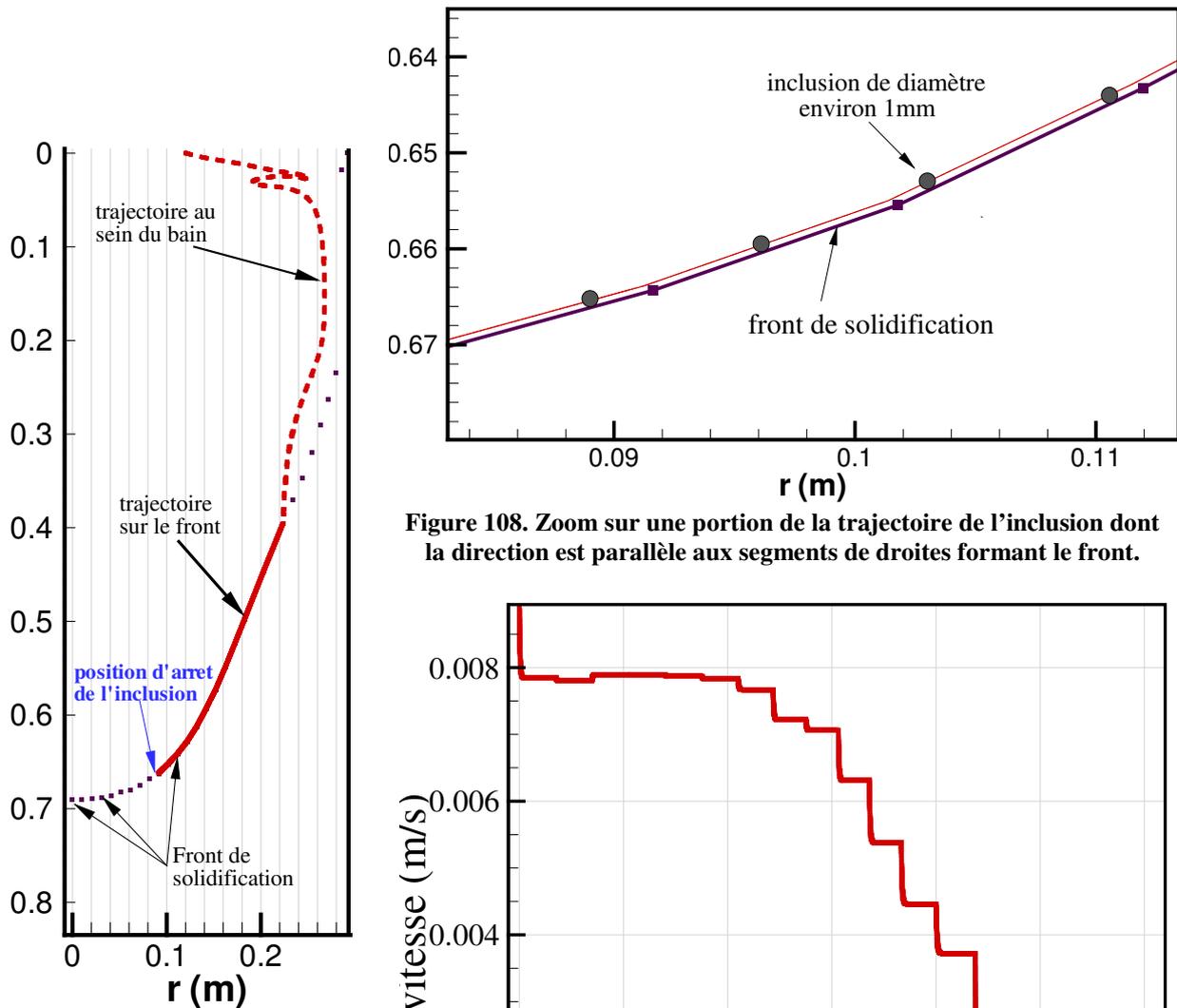


Figure 107. Trajectoire de l'inclusion 3 dans le bain de titane liquide et sur le front de solidification.

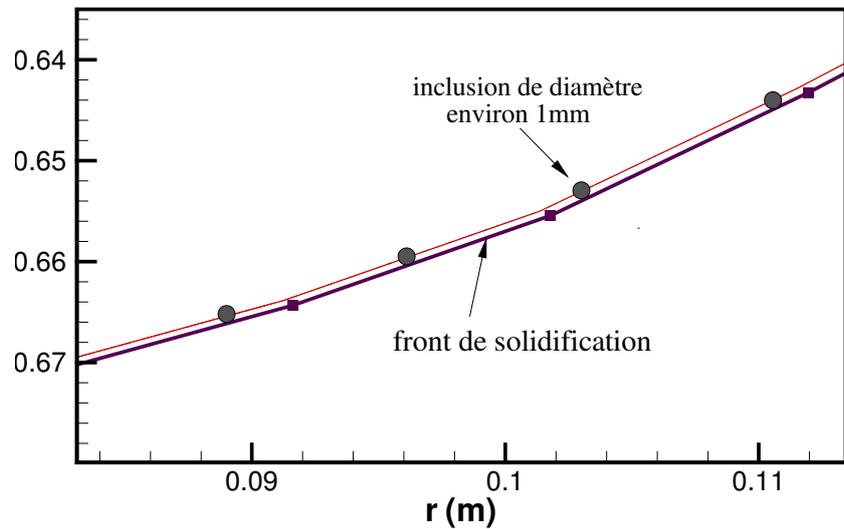


Figure 108. Zoom sur une portion de la trajectoire de l'inclusion dont la direction est parallèle aux segments de droites formant le front.

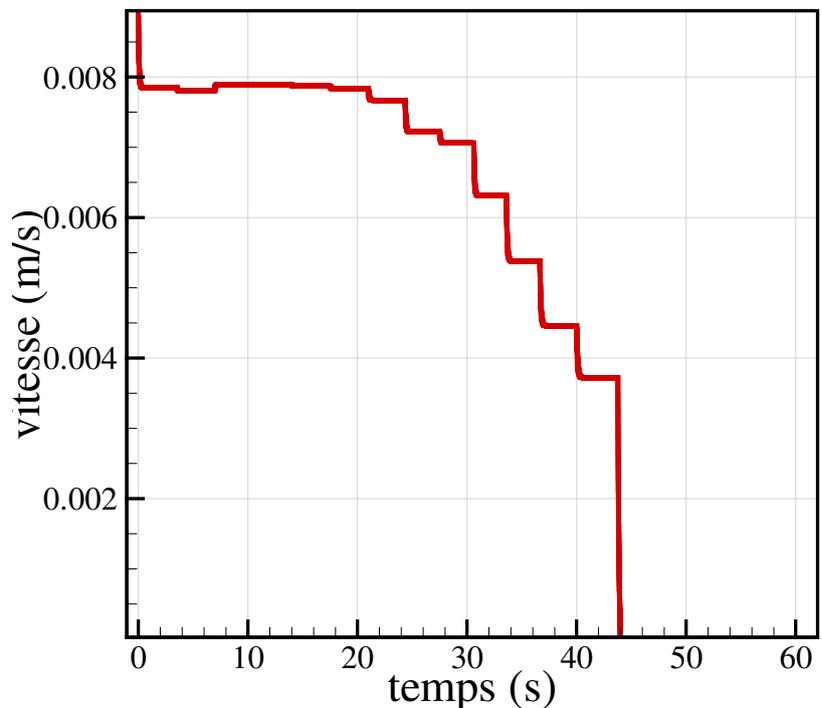


Figure 109. Evolution temporelle de la vitesse de l'inclusion pendant le roulement.

En utilisant ce premier calcul comme référence, nous avons réalisé deux autres simulations pour étudier dans un premier lieu l'influence de la variation de du coefficient μ et pour tester, dans un second temps, les corrélations du coefficient de trainée relatives à une particule en roulement. Notons, que l'effet d'une variation du coefficient de frottement de roulement sur le comportement de l'inclusion, similaire à celui du coefficient de trainée, ne sera pas étudié.

Dans la première simulation, le coefficient μ est pris égal à 0,3, alors que dans le deuxième calcul, nous avons remplacé les coefficients de trainée standard par ceux provenant de la corrélation de la *Figure 106*. Les résultats, en termes d'évolution de la vitesse de la particule, sont représentés sur la *Figure 110* et la *Figure 111*.

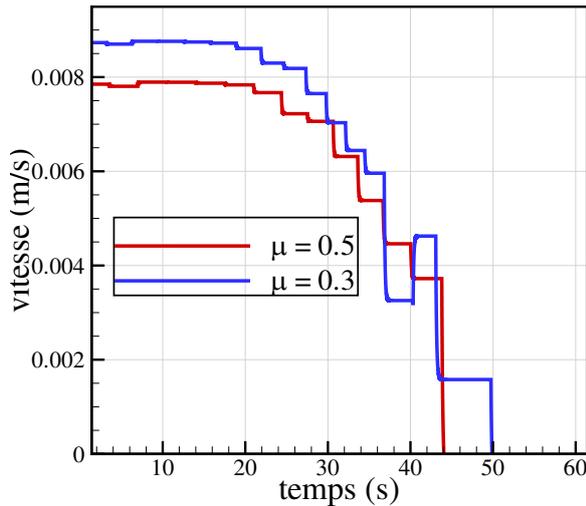


Figure 110. Evolution temporelle de la vitesse de l'inclusion pendant le roulement (comparaison entre le cas de référence et la simulation 1).

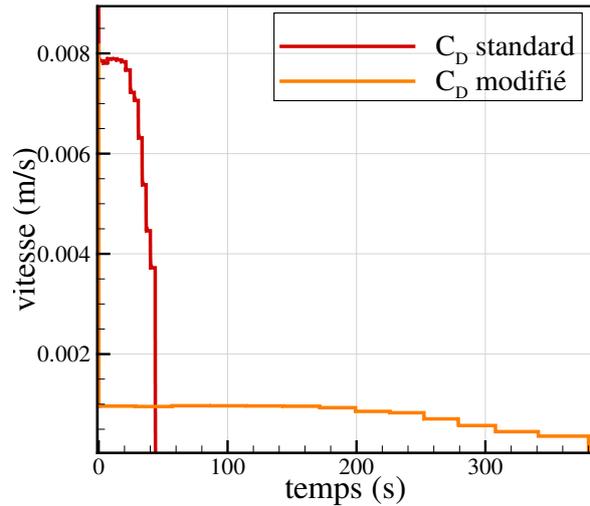


Figure 111. Evolution temporelle de la vitesse de l'inclusion pendant le roulement (comparaison entre le cas de référence et la simulation 2).

Dans ces figures, nous comparons le cas de référence aux deux nouveaux résultats. La *Figure 110* montre que la vitesse calculée de la particule sur le front augmente légèrement lorsqu'on utilise un coefficient de frottement de glissement plus faible. De plus, l'arrêt de l'inclusion dans ce cas intervient un peu plus tard, d'où une position finale plus proche de l'axe du lingot ($r = 6$ cm).

Dans la *Figure 111*, nous remarquons une diminution spectaculaire de la vitesse due à l'utilisation d'un coefficient de trainée plus important. Par contre, la position finale de l'inclusion reste inchangée.

La position d'arrêt paraît ainsi directement liée au coefficient de frottement de glissement et bien évidemment à l'inclinaison du front. Un coefficient de frottement de glissement plus élevé entraîne une capture dans des régions moins profondes. Le coefficient de trainée et le coefficient de frottement de roulement jouent plutôt sur la vitesse de l'inclusion pendant le roulement.

D.2.4. Conclusions et perspectives

Un module complémentaire au modèle de simulation du comportement d'une inclusion hard- α a été développé. Ce modèle décrit le roulement d'une particule sur le front de solidification

incliné d'un lingot VAR. Il convient de mentionner que ce modèle simplifié contient certains coefficients (C_D, μ, f) qui peuvent être considérés comme des paramètres ajustables.

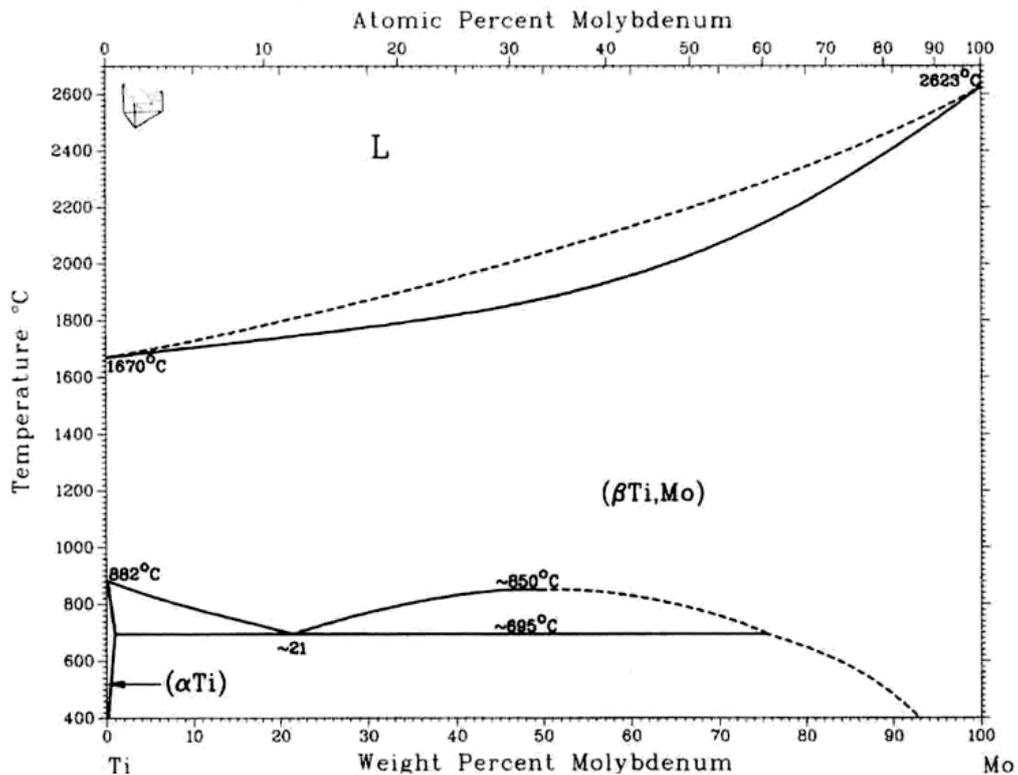
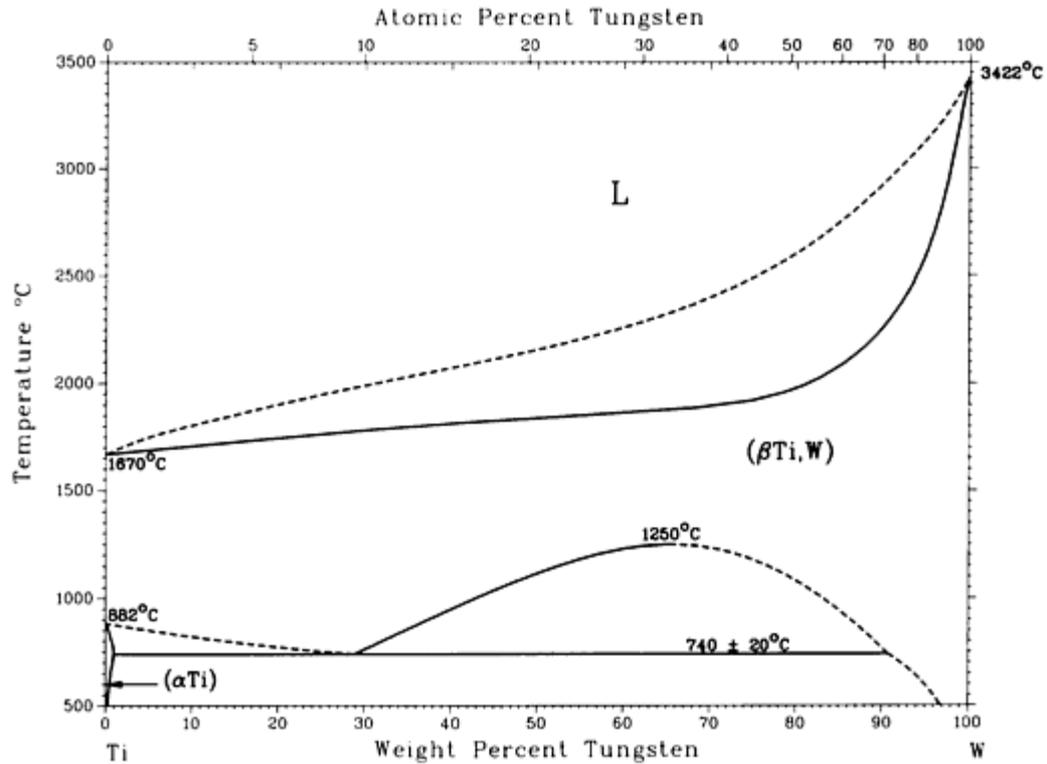
Les résultats ont montré que, une fois la particule au contact du front de solidification, elle est susceptible de rouler sous l'influence de la gravité pour atteindre des régions plus profondes, où l'inclinaison du front est peu prononcée.

Des améliorations sont évidemment nécessaires, principalement au niveau de la description des forces de frottement, pour s'affranchir des paramètres ajustables.

Par ailleurs, il conviendrait de mieux décrire le phénomène de solidification dans le logiciel SOLAR, surtout en ce qui concerne la modélisation de la formation de grains equiaxes au centre du lingot, susceptibles de jouer un rôle déterminant dans la capture des inclusions dans cette région. Une étude est actuellement en cours dans le cadre du projet ANR OPERAS, pour améliorer la modélisation de la formation des structures de solidification pendant une refusion VAR.

Annexe E

Diagrammes de phase Ti-W et Ti-Mo [94,95]



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Madame Jacqueline ETAY, Directeur de Recherche, CNRS-SIMAP-EPM, St Martin d'Hères

Monsieur Frédéric GRUY, Maître de Recherche, ENSM, Saint Etienne

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur GHAZAL Ghassan

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
une thèse intitulée :

« Etude de la propreté inclusionnaire des lingots VAR – Application aux alliages de titane »

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
de - 5 4 5 0 1
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

en « Sciences des Matériaux » Spécialité : « Science et Ingénierie des Matériaux et
Métallurgie »

Fait à Vandoeuvre, le 06 avril 2010

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



Etude de la propreté inclusionnaire dans les lingots VAR - Application aux alliages de titane

L'apparition d'inclusions exogènes demeure un problème majeur pour les élaborateurs de titane. Afin d'améliorer la propreté inclusionnaire des lingots élaborés par le procédé de refusion à l'arc sous vide (Vacuum Arc Remelting), une étude numérique et expérimentale a été réalisée.

La partie numérique de la thèse consiste à modéliser le comportement d'un défaut hard- α provenant de l'électrode consommable et tombant dans le puits liquide du lingot. Un modèle décrivant le processus de dissolution prédit l'évolution de la taille d'une inclusion durant son séjour dans le puits liquide. La trajectoire est déterminée à l'aide d'un modèle lagrangien tenant compte de la turbulence de l'écoulement en modifiant le coefficient de traînée. Les deux modèles ont été couplés et implémentés dans le logiciel SOLAR, qui simule la croissance d'un lingot VAR.

Les résultats mettent en évidence la difficulté d'éliminer une inclusion hard- α avec une seule refusion, principalement à cause de la croissance d'une couche de phase β pendant les premiers moments de l'immersion. Le comportement global du défaut dépend fortement de l'hydrodynamique du puits et des caractéristiques de l'inclusion.

Pour étudier la dissolution expérimentalement, des défauts synthétiques (hard- α et HDI) ont été immergés dans un bain de titane liquide chauffé dans un four à bombardement électronique. Les vitesses de dissolution ont été déterminées en mesurant les dimensions des défauts avant et après les expériences et ont été ensuite utilisées pour valider les modèles numériques. Par ailleurs, nous avons mis en évidence la grande influence de la température et de la vitesse de l'écoulement sur les cinétiques de dissolution.

Mots clés : Refusion à l'arc sous vide, alliages de titane, inclusion hard- α , défaut HDI, modélisation mathématique, étude expérimentale, trajectoire, dissolution.

Study of Inclusion Cleanliness of VAR ingots – Application to Titanium Alloys

The presence of exogeneous inclusions has always been a major concern for the titanium industry. To help improve the inclusion cleanliness of VAR (Vacuum Arc Remelting) titanium ingots, a numerical and experimental study was undertaken.

The numerical model is capable of predicting the motion and dissolution of a hard- α defect falling from the electrode tip into the ingot melt pool during vacuum arc remelting. It is implemented in SOLAR, a CFD code that simulates the ingot growth and solidification. The dissolution of the inclusion is governed by nitrogen diffusion from the defect towards the surrounding molten metal. A model describing this phenomenon predicts the particle size evolution and the nitrogen profile at each moment. The motion of the spherical particle is tracked using a Lagrangian model and the influence of turbulence is accounted for by a modification of the drag coefficient.

Results show that inclusion removal is difficult with a single melt since the growth of a β -phase layer leads to an initial increase in the defect size. The inclusion behaviour is highly dependent on the pool hydrodynamics and on inclusion characteristics.

In order to clarify dissolution aspects of these defects and to measure their dissolution kinetics, synthetically processed defects were introduced into molten titanium heated in an electron beam melting furnace. Dissolution rates were calculated by measuring the size of the defects before and after the experiments and the results were used to validate the numerical models. Furthermore, the experiments show that dissolution kinetics highly depend on fluid motion and temperature.

Keywords: Vacuum arc remelting, titanium alloys, hard- α inclusion, HDI defect, mathematical modelling, experimental study, trajectory, dissolution.