



**HAL**  
open science

# Étude de la formation des structures de solidification et des macroségrégations en coulée semi-continue d'aluminium

Marie Bedel

► **To cite this version:**

Marie Bedel. Étude de la formation des structures de solidification et des macroségrégations en coulée semi-continue d'aluminium. Autre. Université de Lorraine, 2014. Français. NNT : 2014LORR0013 . tel-01750672

**HAL Id: tel-01750672**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750672>**

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](mailto: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.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



# THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Sciences des Matériaux  
Science et Ingénierie des Matériaux et Métallurgie

Présentée par :

**Marie BEDEL**

---

## Étude de la formation des structures de solidification et des macroségrégations en coulée semi-continue d'aluminium

---

Thèse soutenue publiquement le 28 janvier 2014 à Nancy devant le jury composé de :

M. Charles-André Gandin	Directeur de recherche CNRS CEMEF, Mines ParisTech, Sophia Antipolis	Rapporteur
M. Henri Nguyen-Thi	Professeur des universités IM2NP, Université Aix-Marseille	Rapporteur
Mme Sabine Denis	Professeur des universités IJL, Université de Lorraine, Nancy	Examinatrice
M. Michel Rappaz	Professeur des universités LSMX, EPFL, Lausanne, Suisse	Examineur
M. Philippe Jarry	Ingénieur expert entreprise Constellium, Voreppe	Examineur
M. Hervé Combeau	Professeur des universités IJL, Université de Lorraine, Nancy	Directeur de thèse
M. Miha Založnik	Chargé de recherche CNRS, IJL, Université de Lorraine, Nancy	Co-directeur de thèse

*Institut Jean Lamour – UMR 7198- Département SI2M – Equipe 302  
Parc de Saurupt - CS 50840- 54011 NANCY Cedex*

*Université de Lorraine – Collegium Sciences et Technologies  
Pôle M4 : matière, matériaux, métallurgie, mécanique*



## Remerciements

Tout au long de la thèse, on rêve au moment où notre unique préoccupation sera de rédiger les remerciements... et ce moment arrivé, on réalise qu'il n'est pas si aisé de rendre justice à toutes les personnes qui l'ont rendu possible ! Mais comme il m'est plus facile de faire des compliments par feuille interposée, je me lance...

La valeur d'un travail peut se juger à la qualité des personnes qui le valident. Je remercie donc les membres du jury, Charles-André Gandin, Henri N'Guyen Thi, Michel Rappaz, Philippe Jarry ainsi que la présidente Sabine Denis, pour le temps qu'ils ont consacré à l'étude de mon travail. Leur regard extérieur est d'une grande valeur, aussi bien pour l'évaluation du travail mené que pour l'orientation du travail futur.

L'évaluation du travail de thèse reste le dénouement d'un parcours de plus de trois ans, qui n'aurait pu exister sans mes deux directeurs de thèse, Hervé Combeau et Miha Založnik. Il est de coutume de remercier ses directeurs mais j'ai la chance de pouvoir le faire en toute franchise. Après m'avoir convaincue de faire une thèse, ils m'ont prouvé chaque jour que j'avais fait le bon choix : de faire une thèse mais également de la faire avec eux. Peu de doctorants peuvent se targuer d'avoir des directeurs aussi compétents, investis et motivants ! Je les ai respectés et appréciés même dans les moments plus difficiles, même pendant la rédaction, même lorsqu'ils m'affirmaient que la soutenance, « c'est que du plaisir » !!! Alors merci à eux deux, merci pour tout.

En plus de mes directeurs de thèse, de nombreuses personnes m'ont aidée dans mon travail. Merci donc à toute l'équipe Solidification. Je vais regretter les soirées bowling et les séminaires au vert ! Merci à Mohammed M'Hamdi et Knut Tveito du Sintef en Norvège avec qui nous avons collaboré. Merci aussi à Géraldine et Martine qui ont rendu les corvées administratives bien plus agréables. Merci à Hervé Combeau et à Silvère Barrat qui m'ont fait confiance pour l'encadrement de leurs travaux dirigés. Merci à Nicolas et Laurent, qui m'ont aidée plus d'une fois lorsque SOLID refusait de faire ce que je voulais ! Merci à Francis et Bernard pour leur efficacité à répondre à mes SOS concernant le cluster. Merci à Vincent le pro de Thermocalc et merci à toutes les personnes qui m'ont aidée d'une manière ou d'une autre et que j'oublie de citer.

De façon plus générale, si je garde un si bon souvenir de ces trois années passées au laboratoire, c'est bien évidemment grâce à toutes les personnes que j'y ai côtoyées. L'ambiance était studieuse mais aussi détendue et amicale, et j'ai été heureuse de venir travailler chaque matin. La vie d'un labo est faite d'arrivées et de départs, et c'est au bilan plein de très belles rencontres. Je pense aux thésards et post-doc qui sont partis avant moi : Aurore, Ashish, Valerio, Jef, Laura, Stefania, Gaël, Vladimir... et plus encore à ceux qui restent et qui pour certains s'impatientent d'arriver au bout : Mathilde, Vincent, Nicolas, Laurent, Youssef, Jessica, Akshay, Garry, Dimitri, Mathieu, Léa... je suis de tout cœur avec eux ! J'ai trop de bons souvenirs pour pouvoir les évoquer tous ici, mais viennent dans le désordre les soirées indienne, de Noël, d'Halloween ou réunionnaise, les soirées apéro et les soirées sushis, la

sortie au lac de Madine, les déplacements en Norvège et en Autriche, les weekends dans les Vosges, et puis aussi les petits détours par le Pérou et l'Inde. Mais la vie en thèse ne tourne pas uniquement autour du labo. Je pense aux pique-niques et aux barbecues avec Olivier, Raphaëlle, Lila, Miha, Julien, Ghassan, Benoit,... Et la vie en thèse n'est pas non plus une histoire de thésards uniquement. Merci donc à toutes les secrétaires sans qui la pause café n'aurait pas eu le même charme : Anne-Marie, Géraldine, Sophie, Martine, Katty, Isabelle et toutes les autres. Merci à Dédé et Robert, toujours là pour rendre service et résoudre les petits tracas du quotidien.

Et puis bien sûr je pense à toutes les personnes qui me connaissaient avant la thèse, m'ont supportée pendant et sont heureuses pour moi maintenant. Je pense aux amis que j'ai eu la chance de rencontrer à chaque étape, depuis mon petit village de Bretagne jusqu'aux mines de Nancy. Les « marathons » et autres weekends d'anthologie m'ont apporté un équilibre précieux au cours de ces trois années. Spéciale dédicace à Elise dont le soutien téléphonique du jeudi a été capital ! Et bien évidemment, je ne peux achever ces remerciements sans une tendre pensée pour ma famille. Leur présence et leur soutien sont pour moi inestimables. C'est parce que mes parents ont cru en moi que j'ai pris confiance et que je me suis lancée dans cette aventure. Et c'est parce qu'ils n'attendaient rien d'autre de moi que d'être heureuse que j'ai pu la vivre sereinement...enfin presque. Et lorsque ce n'était pas le cas, j'ai toujours pu compter sur mon frère qui n'a pas son pareil dans l'art de dédramatiser les situations, comme j'ai pu compter sur ma tante qui fait toujours passer les autres avant elle-même. Alors avec autant de gens incroyables autour de moi, vraiment, je ne pouvais que réussir !

# Table des matières

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I: ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DES PHENOMENES A L'ORIGINE DES HETEROGENEITES DE STRUCTURE ET DE COMPOSITION.....</b>	<b>5</b>
<b>1. Phénomènes microscopiques à l'origine des hétérogénéités de structure et de composition</b>	<b>5</b>
1.1. Mécanismes de la germination .....	5
1.2. Croissance des grains.....	20
1.3. Compétition germination/croissance.....	30
1.4. Hétérogénéités à l'échelle microscopique.....	33
1.5. Conclusion.....	35
<b>2. Phénomènes macroscopiques à l'origine des hétérogénéités de structure et de composition</b>	<b>35</b>
2.1. Hétérogénéités macroscopiques de composition.....	35
2.2. Hétérogénéités macroscopiques de taille de structure .....	41
2.3. Etat de l'art de la modélisation de la solidification à l'échelle macroscopique .....	46
2.4. Conclusion.....	51
<b>OBJECTIFS DE LA THESE .....</b>	<b>53</b>
<b>CHAPITRE II: AMELIORATION DE LA MODELISATION DE LA CINETIQUE DE CROISSANCE .....</b>	<b>55</b>
<b>1. Diffusion du soluté à l'échelle microscopique : Impact sur la microstructure et sur les macroségrégations</b>	<b>55</b>
1.1. Impact des hétérogénéités microscopiques de soluté sur la formation des macroségrégations .....	55
1.2. Nouvelle expression de la longueur de diffusion.....	57
1.3. Adimensionnalisation du système régissant le problème et choix des cas tests.....	62
1.4. Validation de la nouvelle expression de la distance caractéristique de diffusion dans un cas purement diffusif .....	65
1.5. Application à la solidification d'un lingot.....	70
1.6. Conclusion.....	79
<b>2. Prise en compte de la morphologie des grains</b>	<b>79</b>
2.1. Modèle actuel de croissance dendritique.....	80
2.2. Modèle de croissance à trois phases .....	82
2.3. Relations complémentaires .....	85
2.4. Impact du modèle de diffusion solutale sur la croissance.....	87
2.5. Choix du modèle de croissance.....	90
<b>3. Conclusion</b>	<b>92</b>

**CHAPITRE III : COMPETITION GERMINATION/CROISSANCE EN PRESENCE DE TRANSPORT : IMPACT SUR LA FORMATION DES HETEROGENEITES A L'ECHELLE MACROSCOPIQUE..... 95**

<b>1. Introduction</b>	<b>95</b>
<b>2. Couplage germination/croissance</b>	<b>96</b>
2.1. Germination instantanée.....	96
2.2. Effet de l'écart type de la distribution de germes .....	100
2.3. Effet de la moyenne de la distribution de germes.....	103
2.4. Loi correspondant à des affinants de type $TiB_2$ .....	105
<b>3. Couplage germination/croissance/transport et impact sur la formation des hétérogénéités de composition et de structure</b>	<b>109</b>
3.1. Introduction.....	109
3.2. Définition du cas étudié .....	110
3.3. Définition des différents cas traités .....	111
3.4. Compétition germination/croissance sans l'effet du transport (Cas 1) .....	112
3.5. Impact du transport des germes (Cas 2).....	114
3.6. Impact du transport des grains (Cas 3).....	118
3.7. Impact couplé du transport des germes et des grains (Cas 4).....	119
3.8. Impact du modèle de croissance.....	120
3.9. Comparaison aux résultats expérimentaux.....	125
3.10. Impact du procédé et de l'alliage .....	133
3.11. Résumé de l'étude .....	140
<b>4. Conclusion</b>	<b>141</b>

**CHAPITRE IV : APPLICATION A LA COULEE SEMI-CONTINUE : IMPACT DES PHENOMENES DE TRANSPORT SUR LA FORMATION DES HETEROGENEITES A L'ECHELLE MACROSCOPIQUE ..... 143**

<b>1. Introduction</b>	<b>143</b>
<b>2. Impact des phénomènes de transport sur la formation des hétérogénéités de composition et de tailles de structure en CCV</b>	<b>143</b>
2.1. Introduction.....	143
2.2. Définition du cas étudié .....	144
2.3. Définition des cas traités .....	145
2.4. Compétition germination/croissance sans transport (Cas 1).....	146
2.5. Impact de la convection du liquide (Cas 2-a).....	148
2.6. Impact du transport des germes (Cas 2-b).....	150
2.7. Impact du transport des grains (Cas 3-a) .....	151
2.8. Impact couplé du transport des grains et des germes.....	152
2.9. Impact du modèle de croissance (Cas 4).....	154
2.10. Conclusion .....	156
<b>3. Application à la coulée industrielle EMPACT</b>	<b>156</b>



---

3.1.	Introduction .....	156
3.2.	Définition du cas étudié.....	157
3.3.	Définition des cas traités.....	163
3.4.	Modélisation sans mouvement des grains.....	164
3.5.	Effet du mouvement des grains .....	168
3.6.	Effet du modèle de croissance.....	175
3.7.	Alliage non affiné.....	188
<b>4.</b>	<b>Conclusion</b> .....	<b>194</b>
<b>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....</b>		<b>197</b>
<b>1.</b>	<b>Résumé et conclusions</b> .....	<b>197</b>
<b>2.</b>	<b>Perspectives</b> .....	<b>199</b>
<b>ANNEXES .....</b>		<b>201</b>
<b>A.</b>	<b>Description du modèle SOLID</b> .....	<b>201</b>
<b>B.</b>	<b>Données thermodynamiques</b> .....	<b>205</b>
<b>C.</b>	<b>Flux d'extraction de chaleur – coulée EMPACT</b> .....	<b>209</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>		<b>211</b>



# NOTATIONS

## Notations latines

$A^{\alpha\beta}$	Surface de l'interface entre les phases $\alpha$ et $\beta$	$m^2$
$C_0$	Composition nominale en soluté	wt.%
$C_p$	Capacité thermique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
$C_m$	Composition moyenne en soluté	wt.%
$C_{\alpha,ref}$	Composition moyenne en soluté de la phase $\alpha$ référence pour l'estimation de la masse volumique	wt.%
$\langle C_\alpha \rangle^\alpha = C_\alpha$	Composition moyenne en soluté dans la phase $\alpha$	wt.%
$C_\alpha^*$	Composition en soluté à l'interface du côté $\alpha$	wt.%
$C_\alpha^\infty$	Composition en soluté dans la phase $\alpha$ loin de l'interface	wt.%
$C_{\alpha\beta}^*$	Composition en soluté à l'interface $\alpha/\beta$ du côté $\alpha$ (lorsqu'il y a plus que deux phases)	wt.%
$DAS$	Distance caractéristique pour l'écoulement dans le milieu poreux	$m$
$D_\alpha$	Coefficient de diffusion chimique dans la phase $\alpha$	$m^2.s^{-1}$
$E$	énergie interne du système	$J$
$f_\alpha$	Fraction massique de la phase $\alpha$	-
$g^{bloc}$	Fraction volumique de grains pour le blocage des grains	-
$g_{eut}$	Fraction volumique de la phase eutectique	-
$g_i$	Fraction interne, correspondant au rapport de la fraction volumique de solide sur la fraction volumique d'enveloppe	-
$g_\alpha$	Fraction volumique de la phase $\alpha$	-
$\mathcal{G}$	Fonction caractéristique pour un système en relation avec un réservoir à pression et température constantes.	$J$
$h_\alpha$	Enthalpie massique de la phase $\alpha$	$J.kg^{-1}$
$I$	Taux de germination	$m^{-3}.s^{-1}$
$K$	perméabilité	$m^2$
$k$	Coefficient de partage	-
$k_B$	Constante de Boltzmann	$J.mol^{-1}$
$L_f$	Chaleur latente de fusion massique	$J.kg^{-1}$
$\overline{M}$	Force de trainée	$N$
$m$	Pente du liquidus	$K.wt\%^{-1}$
$N$	Densité de grains	$m^{-3}$
$\dot{N}$	Taux de germination	$m^{-3}.s^{-1}$
$N_{nuc}$	Densité de germes	$m^{-3}$
$N_{nuc}^j$	Densité de germes de la classe $j$	$m^{-3}$
$n_0$	Densité initiale de particules affinant disponibles pour la germination	$m^{-3}$

$n_\alpha$	Nombre de moles de la phase $\alpha$	mol
$\overrightarrow{n_{\alpha/\beta}}$	Vecteur unitaire normal à l'interface $\alpha/\beta$ dirigé vers la phase $\beta$	$\text{m.s}^{-1}$
$n(t)$	Densité de particules affinantantes disponibles pour la germination à l'instant $t$	$\text{m}^{-3}$
$P_0$	Pression extérieure exercée sur le système	Pa
$Pe_C$	Nombre de Péclet solutal	-
$Pe_T$	Nombre de Péclet thermique	-
$P_\alpha$	Pression dans la phase $\alpha$	Pa
$Q$	Coefficient de restriction de croissance	K
$q$	Extraction de chaleur volumique	$\text{W.m}^{-3}$
$r$	Rayon d'une phase en formation	m
$R$	Rayon du grain	m
$R_{bras}$	Longueur du bras primaire de dendrite	m
$R_c$	Rayon critique pour la croissance libre	m
$R_e$	Nombre de Reynolds	-
$R_{env}$	Rayon de l'enveloppe sphérique	m
$R_f$	Rayon final de grain	m
$S$	Entropie du système	$\text{J.K}^{-1}$
$Sc$	Nombre de Schmidt	-
$Sh$	Nombre de Sherwood	-
$Sh_{conv}$	Terme convectif du nombre de Sherwood	-
$Sh_{diff}$	Terme diffusif du nombre de Sherwood	-
$Ste$	Nombre de Stefan	-
$S_v$	Surface spécifique de l'interface solide/liquide	$\text{m}^{-1}$
$S_v^\alpha$	Surface spécifique de la phase $\alpha$	$\text{m}^{-1}$
$T_0$	Température à l'extérieur du système ou température initiale	K
$T_{eut}$	Température eutectique	K
$T_f$	Température de fusion du corps pur	K
$T_{liq}$	Température de liquidus	K
$T_{ref}$	Température de référence pour l'estimation de la masse volumique	K
$T_{sol}$	Température de solidus	K
$T_\alpha$	Température de la phase $\alpha$	K
$T^*$	Température à l'interface	K
$T_l^\infty$	Température dans le liquide loin de l'interface	K
$V$	Volume du système	$\text{m}^3$
$v_c$	Vitesse de coulée	$\text{m.s}^{-1}$
$V_{env}$	Vitesse de l'enveloppe	$\text{m.s}^{-1}$

$\overrightarrow{v_f}$	Vitesse du front de solidification	m.s <sup>-1</sup>
$v_g(t)$	Vitesse de croissance du grain	m.s <sup>-1</sup>
$V_{pointe}$	Vitesse de pointe de dendrite	m.s <sup>-1</sup>
$\langle \overrightarrow{v_\alpha} \rangle^\alpha = \overrightarrow{v_\alpha}$	Vitesse intrinsèque de la phase $\alpha$	m.s <sup>-1</sup>
$V_\alpha$	Volume de la phase $\alpha$	m <sup>3</sup>
$V_m^\alpha$	Volume molaire de la phase $\alpha$	m <sup>3</sup> .mol <sup>-1</sup>
$X_{liq}$	Position du liquidus	m

### Notations grecques

$\alpha$	Diffusivité thermique	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$\beta_C$	Coefficient d'expansion volumique solutale	(wt.%) <sup>-1</sup>
$\beta_T$	Coefficient d'expansion volumique thermique	K <sup>-1</sup>
$\Gamma$	Coefficient de Gibbs-Thomson	m.K
$\Gamma_\alpha$	Taux de production de la phase $\alpha$	kg.m <sup>-3</sup> .s <sup>-1</sup>
$\gamma$	Energie interfaciale	J.m <sup>-2</sup>
$\Delta$	Distance du film stagnant	m
$\Delta G$	Variation d'énergie pour la croissance libre	J
$\Delta G_{hom}$	Variation d'énergie pour la croissance libre sous l'hypothèse d'une germination homogène	J
$\Delta G_{hété}$	Variation d'énergie pour la croissance libre sous l'hypothèse d'une germination hétérogène	J
$\Delta_l^s G_m$	Energie de Gibbs de solidification	J.mol <sup>-1</sup>
$\Delta_l^s S_m$	Entropie molaire de solidification	J.K <sup>-1</sup> .mol <sup>-1</sup>
$\Delta T$	Surfusion	K
$\Delta T_C$	Surfusion minimale pour la croissance libre, dite surfusion de courbure	K
$\Delta T_g$	Surfusion minimale pour la formation d'une calotte sphérique sur une particule affinante, dite surfusion géométrique	K
$\Delta T_{hété}$	Surfusion nécessaire à la germination hétérogène	K
$\Delta T_{hom}$	Surfusion nécessaire à la germination homogène	K
$\Delta T_S$	Surfusion solutale	K
$\Delta T_T$	Surfusion thermique	K
$\delta_C$	Longueur caractéristique de diffusion solutale	m
$\delta_\alpha$	Longueur caractéristique de diffusion solutale dans la phase $\alpha$	m
$\delta_T$	Longueur caractéristique de diffusion thermique	m
$\theta$	Angle de mouillage	rad
$\lambda_2$	Distance interdendritique secondaire	m
$\lambda_\alpha$	Conductivité thermique de la phase $\alpha$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>

$\mu$	Moyenne de la distribution en surfusion des germes	K
$\mu^\alpha$	Potentiel chimique de la phase $\alpha$	J.mol <sup>-1</sup>
$\mu_\alpha$	Viscosité dynamique de la phase $\alpha$	Pa.s
$\rho_0$	Masse volumique de référence	kg.m <sup>-3</sup>
$\rho_\alpha$	Masse volumique de la phase $\alpha$	kg.m <sup>-3</sup>
$\sigma$	Ecart type de la distribution en surfusion des germes	K
$\Phi$	Diamètre d'une particule affinante	m
$\varphi$	Flux d'extraction de chaleur	W.m <sup>-2</sup>
$\Omega$	sursaturation	-

## Introduction

La production mondiale d'aluminium primaire a très fortement augmenté depuis la découverte de cet élément au milieu du 19<sup>ème</sup> siècle, pour atteindre 40 millions de tonnes en 2010 (Association Française de l'Aluminium 2013). L'aluminium occupe ainsi une place de choix dans la métallurgie des métaux non ferreux. Ses propriétés sont en effet recherchées dans de nombreux secteurs d'activités. Léger, ductile, résistant à la corrosion, mais également bon conducteur électrique et thermique (Association 2013), il est aussi bien utilisé dans le domaine du transport (aéronautique, nautique, automobile) que dans l'alimentaire (boîtes boissons), le bâtiment ou le transport d'électricité. L'ajout d'éléments d'alliage permet de modifier encore ces propriétés tout en conservant les avantages de l'aluminium.

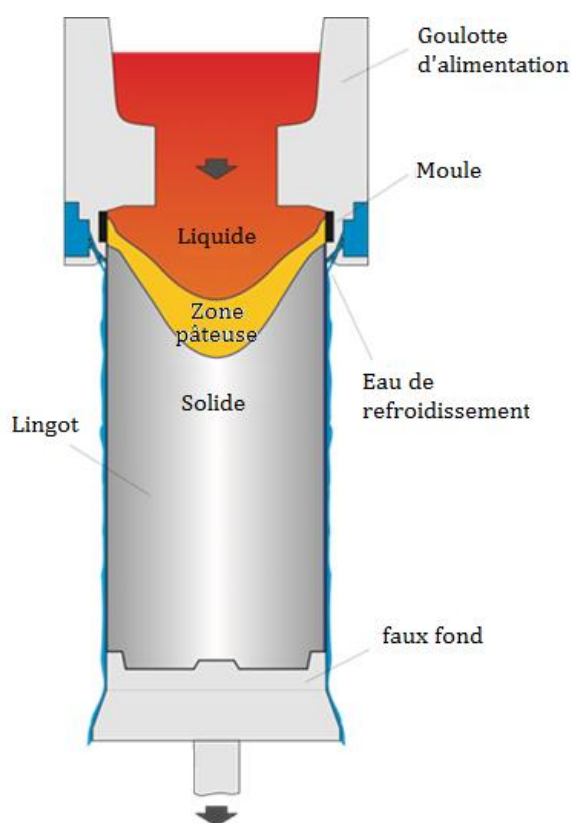


Figure 0- 1 : Schéma de la Coulée semi-Continue Verticale (CCV) -tiré de (Založnik M. 2006).

De l'extraction de la bauxite à la production de produits finis, plusieurs étapes sont nécessaires. La bauxite est composée principalement d'alumine, de silice et d'oxydes de fer et de titane. L'alumine est extraite grâce au procédé chimique Bayer, puis celle-ci permet l'obtention d'aluminium par le procédé électrolytique Héroult-Hall (Association 2013). L'aluminium est ensuite fondu et généralement associé à d'autres éléments d'alliage. Le métal liquide obtenu peut servir à former directement des produits finis par la méthode de coulée en moule ou peut être solidifié sous forme de billettes ou de plaques qui seront retravaillées

ultérieurement. La méthode de coulée en moule est couteuse et complexe pour former des produits de grandes dimensions, et la coulée continue n'est pas adaptée aux alliages d'aluminium qui ont une plus faible résistance mécanique à haute température et une conductivité thermique plus grande que l'acier (Dantzig J.A. 2009). La méthode de coulée semi-continue verticale est donc la méthode la plus couramment utilisée pour la solidification des alliages d'aluminium. Des étapes de filage ou de laminage permettent ensuite de donner la forme souhaitée au produit.

Dans ce travail, nous nous intéressons plus particulièrement à l'étape de solidification primaire. Le procédé est illustré Figure 0- 1. L'alliage liquide est introduit via une goulotte dans un moule à fond mobile, appelé faux-fond. Les parois latérales du moule constituent la lingotière. Lorsque le métal est solidifié près des parois du moule, le faux-fond descend à vitesse constante tandis que la lingotière reste fixe. L'objectif est ainsi d'atteindre un régime permanent lors duquel le métal liquide est injecté dans la lingotière et le métal solide descend avec le faux-fond. Le métal est refroidi dans un premier temps au contact du moule, puis par contact avec l'eau de ruissellement injectée par le bas de la lingotière. Entre ces deux zones de refroidissement, le métal se contracte généralement en se solidifiant, laissant apparaître une lame d'air. A cœur, l'extraction de chaleur étant plus lente, le métal est encore liquide lorsqu'il quitte la zone de la lingotière. Le métal n'est généralement pas pur donc la solidification n'intervient pas instantanément à une température donnée mais a lieu sur un intervalle de température schématisé Figure 0- 2. Il existe donc une zone dite « pâteuse » dans laquelle la fraction solide augmente progressivement. Plus précisément, on distingue une zone dite « poreuse » aux fortes fractions solides où les grains sont supposés se toucher et sont donc bloqués, du reste de la zone pâteuse dite « zone mobile » où les grains solides sont libres de se déplacer. Selon la composition en élément d'alliage du métal, celui-ci commence donc à solidifier à la température de liquidus donnée dans le diagramme de phase par la courbe de liquidus.

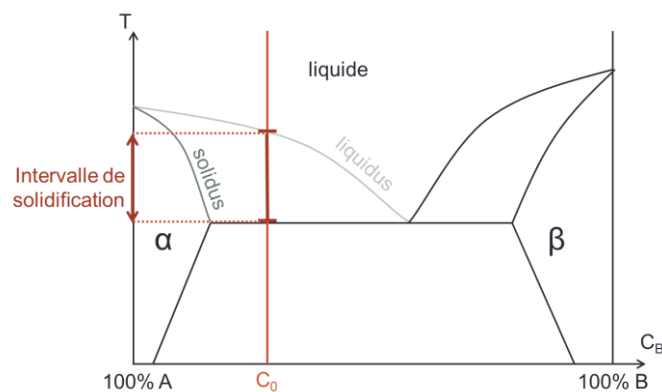


Figure 0- 2 : Représentation schématisée d'un diagramme de phase dans le cas d'un alliage binaire.

Bien que ce procédé soit utilisé depuis des décennies, la complexité des phénomènes mis en jeu et leurs interactions rendent sa maîtrise délicate. Des défauts majeurs tels les criques à chaud ou les porosités peuvent apparaître. De façon plus systématique, des défauts tels que les hétérogénéités de composition et de taille de structure apparaissent. On remarque en effet que les éléments d'alliage ne se répartissent pas de façon homogène dans



le lingot au cours de la solidification. Cette ségrégation des espèces chimiques à l'échelle macroscopique est appelée macroségrégation. De même, la taille des structures n'est pas identique en tout point du produit. Ces hétérogénéités induisent à leur tour des hétérogénéités dans les propriétés du métal qui peuvent être préjudiciables.

Afin de mieux maîtriser l'apparition de ces hétérogénéités, l'étude de la formation des structures de solidification et des macroségrégations est donc primordiale. L'étude expérimentale à l'échelle d'un lingot étant coûteuse, la modélisation s'avère être un outil précieux. Au cours des dernières décennies, différents modèles ont été développés, qui se confrontent à la même difficulté : modéliser des phénomènes multi-échelles interdépendants. En effet, de l'interface solide/liquide de quelques nanomètres au produit de coulée de l'ordre du mètre, de nombreuses échelles intermédiaires sont à prendre en compte : la pointe de dendrite de l'ordre du micron, le grain de l'ordre du millimètre ou la zone pâteuse de l'ordre du centimètre. Un modèle est donc développé au sein de l'équipe 302 de l'Institut Jean Lamour dans ce but depuis les années 90 : le modèle SOLID. L'objectif général de ce travail de thèse est donc d'améliorer la physique prise en compte dans ce modèle afin de contribuer à une meilleure compréhension des phénomènes à l'origine des hétérogénéités de tailles de structures et de composition en soluté.



# Chapitre I : Etude bibliographique des phénomènes à l'origine des hétérogénéités de structure et de composition

## 1. Phénomènes microscopiques à l'origine des hétérogénéités de structure et de composition

### 1.1. Mécanismes de la germination

La thermodynamique nous indique que sous la température de fusion d'un système homogène, celui-ci est plus stable sous la forme solide. Cependant, la solidification n'est pas instantanée et pour comprendre le phénomène de naissance et de croissance des grains, la thermodynamique n'est plus suffisante car nous sommes hors équilibre. Il est donc nécessaire d'étudier la cinétique de la solidification en considérant les contraintes s'exerçant sur le système lors de sa solidification.

Afin d'étudier la formation du premier solide, nous définissons les termes utilisés par la suite. Les *clusters* d'atomes de structure cristalline qui se forment spontanément dans le liquide sont appelés *embryons*. Si ces embryons sont trop petits, ils sont instables et refondent. Dans le cas contraire, ils donnent naissance à des *grains*. Les clusters peuvent se former spontanément au sein du liquide ou sur un *substrat*. Nous entendons par substrat une *particule étrangère* présente dans le métal liquide ou encore une interface telle le moule. Des particules étrangères sont toujours présentes dans le métal. Lorsqu'elles sont volontairement ajoutées au métal pour favoriser la formation de grains, on les appelle *particules affinantes*, car elles permettent d'affiner la taille finale des structures. La *germination* correspond au passage de l'état de germe à celui de grain. Les particules affinantes sont alors dites *activées*.

#### 1.1.1. Barrière pour la croissance libre

Le modèle décrit ci-dessous est développé dans (Lesoult G. 2010) et résumé dans (Dantzig J.A. 2009). Considérons un système unaire fermé dans lequel se trouve une phase solide sphérique entourée de la phase liquide majoritaire. On suppose que ce système est contenu dans un réservoir à pression  $P_0$  et température  $T_0$  constantes. La fonction caractéristique de ce système est alors :

$$G = E + P_0V - T_0S \quad (1.1)$$

Le système diphasique est à l'équilibre si et seulement si la variation de  $G$  au cours d'une transformation élémentaire du système est nulle, avec la variation s'exprimant :

$$dG = (P_0 - P_l)dV + \left( P_l - P_s + \frac{2\gamma_{sl}}{r} \right) dV_s + (T_l - T_0)dS_l + (T_s - T_0)dS_s + (\mu^s - \mu^l)dn_s \quad (1.2)$$

avec  $S = S_l + S_s$  l'entropie du système,  $V = V_l + V_s$  son volume,  $n = n_l + n_s$  son nombre de moles, et  $\mu^i, T_i, P_i$  respectivement le potentiel chimique, la température et la pression de la phase  $i$ .  $\gamma_{sl}$  correspond à l'énergie interfaciale et  $r$  au rayon de la sphère solide. En supposant l'équilibre thermique et mécanique atteint, le système est à l'équilibre lorsque :

$$(\mu^s - \mu^l) dn_s = 0 \quad (1.3)$$

Quand la surfusion  $\Delta T = T_0 - T_f$  est faible (avec  $T_f$  la température de fusion du système), on peut approximer :

$$\Delta_l^s G_m(T_f, P_0) \approx -\Delta_l^s S_m(T_f, P_0) \cdot \Delta T \quad (1.4)$$

Donc la fonction caractéristique du système peut s'écrire :

$$G = -\frac{\Delta_l^s S_m(T_f, P_0)}{V_m^s} \cdot \Delta T \frac{4}{3} \pi r^3 + \gamma 4 \pi r^2 \quad (1.5)$$

Avec  $V_m^s$  le volume molaire de la phase solide et  $\Delta_l^s S_m(T_f, P_0)$  l'entropie molaire de solidification à la température  $T_f$  et à la pression  $P_0$  (de signe négatif). Le premier terme correspond à l'énergie relâchée lors de la solidification lorsque  $\Delta T < 0$ , et le second terme correspond à l'énergie nécessaire à la création de la surface d'interface. En considérant les valeurs de ces grandeurs pour l'aluminium (Dantzig J.A. 2009) et en prenant une surfusion  $\Delta T = -0,1^\circ\text{C}$  ou  $\Delta T = -1^\circ\text{C}$  (correspondant aux ordres de grandeurs des surfusions obtenues expérimentalement), on peut voir l'importance de chaque terme sur l'évolution de la fonction caractéristique Figure 1- 1:

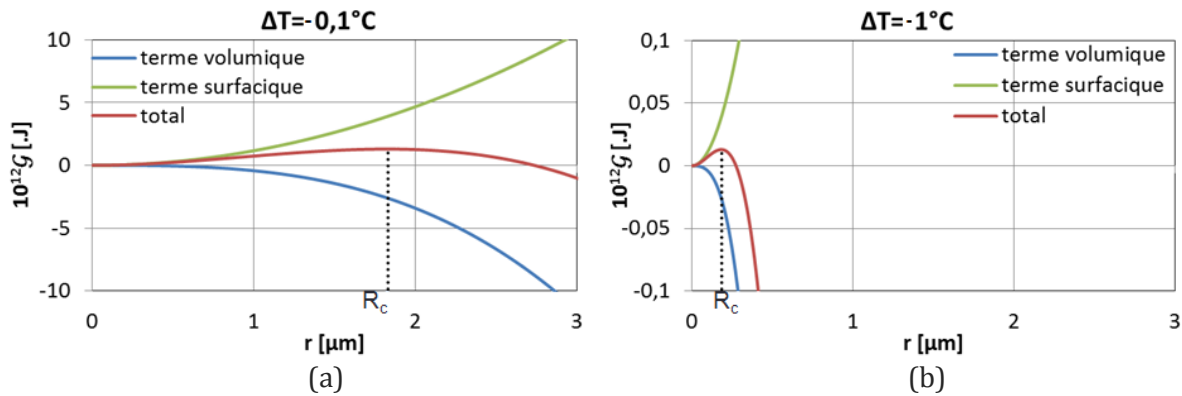


Figure 1- 1 : Fonction caractéristique  $G$  d'une sphère solide d'aluminium entourée d'aluminium liquide en fonction de son rayon, pour une surfusion de (a)  $\Delta T = -0,1\text{K}$  et (b)  $\Delta T = -1\text{K}$  ainsi que ses composantes surfacique et volumique.  $R_c$  est le rayon critique pour la croissance libre.

Pour des rayons faibles, l'énergie nécessaire à l'augmentation de la surface est trop importante vis-à-vis de l'énergie libérée par le phénomène de solidification, donc la croissance est impossible : l'embryon est refondu. Il faut atteindre un rayon critique  $R_c$  (noté en pointillés sur la Figure 1- 1) tel que ces deux énergies se compensent :

$$\frac{dG}{dr} < 0 \rightarrow R > R_c = \frac{2\gamma_{sl}V_m^s}{\Delta_l^s S_m(T_0, P_0) \cdot \Delta T} = -\frac{2\Gamma}{\Delta T} \quad (1.6)$$

avec  $\Gamma$  le coefficient de Gibbs-Thomson. La formation d'un embryon stable nécessite donc l'apport extérieur d'énergie :

$$\Delta G_{\text{hom}o} = \frac{16\pi}{3} \frac{\gamma_{sl}^3 V_m^{s2}}{[\Delta_l^s S_m(T_0, P_0) \cdot \Delta T]^2} \quad (1.7)$$

Lorsque la surfusion est plus élevée (en valeur absolue), l'apport d'énergie nécessaire à la formation d'un embryon stable est réduit et la taille critique du cluster pour être stable est abaissée.

### 1.1.2. Germination thermique homogène

Plusieurs théories tentent d'expliquer la formation de ces clusters d'atomes, appelés embryons, qui, s'ils atteignent une taille critique, deviennent des grains. Une première façon de concevoir la formation des grains est de la considérer comme un phénomène homogène thermiquement activé. L'agglomération aléatoire d'atomes dans le bain liquide dépend alors de la fréquence de vibration des atomes et de la probabilité pour un embryon de capturer un nouvel atome. La densité d'embryons atteignant le rayon critique dépend donc directement de l'agitation thermique. Le taux de germination  $I_{\text{hom}o}$ , soit le taux de formation de grains à partir d'embryons noté  $\frac{dN(t)}{dt}$  peut alors être exprimé en considérant l'énergie atomique décrite par la distribution de Maxwell-Boltzmann comme une fonction de la température :

$$I_{\text{hom}o} = I_0 \exp\left(-\frac{\Delta G_{\text{hom}o}}{k_B T}\right) \quad (1.8)$$

Cependant, ce modèle amène à la conclusion que la germination est extrêmement lente tant que la surfusion n'est pas très importante (plusieurs dizaines de degrés). En pratique, quelles que soient les dimensions du système et les conditions de refroidissement, de telles surfusions ne sont pas atteintes. Cela implique que d'autres mécanismes sont à l'origine de la germination.

### 1.1.3. Germination thermique hétérogène

En pratique, des particules étrangères sont souvent le déclencheur principal de la solidification. Ces particules jouent le rôle de substrat : selon leur structure et leur composition, il va être plus ou moins intéressant énergétiquement pour les atomes de se fixer et de solidifier. En effet, les valeurs relatives des énergies d'interface des couples considérés parmi les trois phases solide, liquide et substrat dictent le comportement du système (Figure 1- 2):

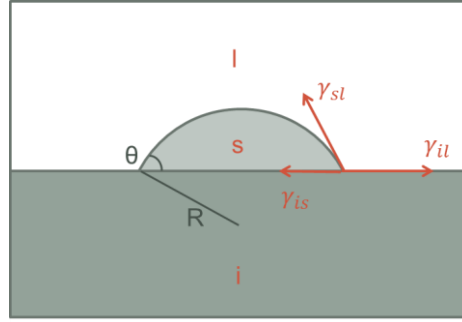


Figure 1- 2 : Forces s'exerçant sur la particule en cours de solidification sur un substrat (tiré de (Dantzig J.A. 2009)).

avec  $\gamma_{sl}$  l'énergie d'interface solide-liquide,  $\gamma_{il}$  l'énergie d'interface particule affinante-liquide et  $\gamma_{is}$  l'énergie d'interface particule affinante-solide. L'équation de Laplace-Young donne la relation entre ces énergies d'interface définissant l'angle de mouillage (l'angle de contact entre la particule affinante et le solide noté  $\theta$ ):

$$\cos\theta = \frac{\gamma_{il} - \gamma_{is}}{\gamma_{sl}} \quad (1.9)$$

Il faut donc  $\left| \frac{\gamma_{il} - \gamma_{is}}{\gamma_{sl}} \right| \leq 1$  pour que la phase solide se développe sous la forme d'une calotte sphérique sur la particule affinante. L'expression de  $\mathcal{G}$  est modifiée pour prendre en compte les 3 interfaces et sachant que  $dA^{il} = -dA^{is}$ , sa variation infinitésimale peut s'écrire :

$$d\mathcal{G} = -\frac{\Delta_l^s S_m(T_f, P_0)}{V_m^s} \Delta T dV^s + (\gamma_{is} - \gamma_{il}) dA^{is} + \gamma_{sl} dA^{sl} \quad (1.10)$$

Les considérations géométriques donnent :

$$\Delta\mathcal{G}_{hété} = f(\theta)\Delta\mathcal{G}_{homo} \text{ avec } f(\theta) = \frac{(2 + \cos\theta)(1 - \cos\theta)^2}{4} \quad (1.11)$$

Donc le rayon critique pour la germination reste le même que celui estimé dans le cas d'une germination homogène mais l'énergie à fournir est réduite par un facteur  $f(\theta)$ , comme on peut le voir Figure 1- 3. La croissance libre est donc possible dès une surfusion  $\Delta T_{hété}$  plus faible en valeur absolue que la surfusion limite  $\Delta T_{homo}$  nécessaire lorsque le grain se forme de façon homogène. La surfusion  $\Delta T_{hété}$  se rapproche des valeurs obtenues expérimentalement.

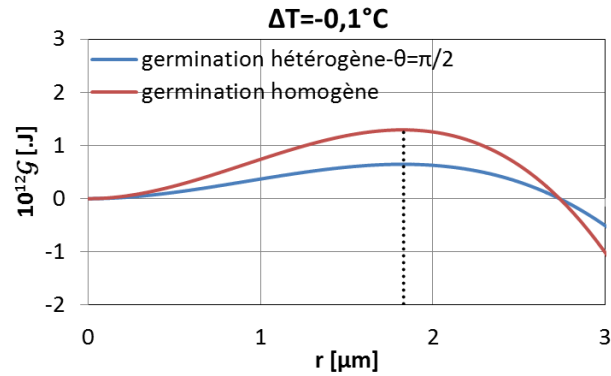


Figure 1- 3 : Fonction caractéristique  $G$  d'une sphère solide d'aluminium entourée d'aluminium liquide en fonction de son rayon pour une surfusion  $\Delta T = -0,1K$ , obtenue par le modèle de germination thermique homogène et par le modèle de germination thermique hétérogène.

Désormais, chaque atome n'est plus un site potentiel pour la germination, mais seules les particules étrangères le sont. Le taux de formation des grains dépend donc également de la densité de particules étrangères. Il y a saturation et le taux de formation des grains devient nul dès lors que toutes les particules étrangères sont activées. Turnbull dès 1950 (Turnbull D. 1950) puis Hunt en 1984 (Hunt J.D. 1984) proposent de modifier l'expression du taux de germination pour prendre en compte la disparition de ces sites au cours de leur activation :

$$I = I_0^{hete} \exp\left(-\frac{\Delta G_f(\theta)}{k_B T}\right) \rightarrow I = K \cdot (n_0 - n(t)) \exp\left(-\frac{\Delta G_f(\theta)}{k_B T}\right) \quad (1.12)$$

Le taux de germination est pondéré par la densité de particules non encore utilisées  $n_0 - n(t)$  avec  $n_0$  la densité initiale de particules et  $n(t)$  sa densité à l'instant  $t$ . Ainsi lorsque la densité initiale de particules n'est pas trop importante, toutes les particules sont activées, mais ce n'est plus le cas lorsque la densité initiale devient trop importante. La croissance des premiers grains formés, en libérant de la chaleur latente, limite la surfusion et prévient la formation de grains supplémentaires. La longueur caractéristique de diffusion thermique dans l'aluminium en solidification correspond en effet à plus de cent fois la taille des grains dans le cas de la croissance equiaxe, donc la croissance d'un grain impacte la thermique autour de ce grain. C'est ainsi que Maxwell et Hellawell justifient la faible proportion de particules affinantes réellement activées (Maxwell I. 1975). En effet, en réalité, pas plus de 1% des particules affinantes sont utilisées comme sites pour la formation des grains (McCartney D.G. 1989).

Cependant, ce modèle ne permet pas de retrouver les tendances obtenues par l'expérience. Il présente en effet deux problèmes majeurs. Tout d'abord, il ne prend pas en compte l'hétérogénéité d'efficacité des particules affinantes. Pour ce faire, il faudrait déterminer les paramètres de chaque groupe de particules, caractérisé par un angle de mouillage et une densité initiale. De nombreuses expériences menées dès les années 1950 par Turnbull (Turnbull D. 1950) mettent en évidence l'hétérogénéité de nature des particules affinantes. Prenons l'exemple de l'étude menée par Perepezko en 1996 sur la solidification de gouttes d'étain de taille variable (Perepezko J.H. 1996), et illustrée Figure 1- 4. Lorsque les gouttes sont relativement grandes, le pic de température différentielle, qui correspond à la

formation des grains, a lieu à 180°C. Mais plus la taille des gouttes diminue, plus la formation des grains est retardée. L'explication qu'il en donne est la suivante : des particules affinantes d'efficacité variable sont présentes dans le métal liquide. Lorsque le volume des gouttes est suffisamment important, presque toutes les gouttes contiennent une particule d'efficacité maximale et germent donc à 180°C. Lorsque le métal est divisé en plus petites gouttes, un nombre moins grand d'entre elles contient toujours une particule d'efficacité maximale et dans la plupart des gouttes, la formation des grains est retardée. Ceci illustre bien l'hétérogénéité des particules affinantes en termes d'efficacité.

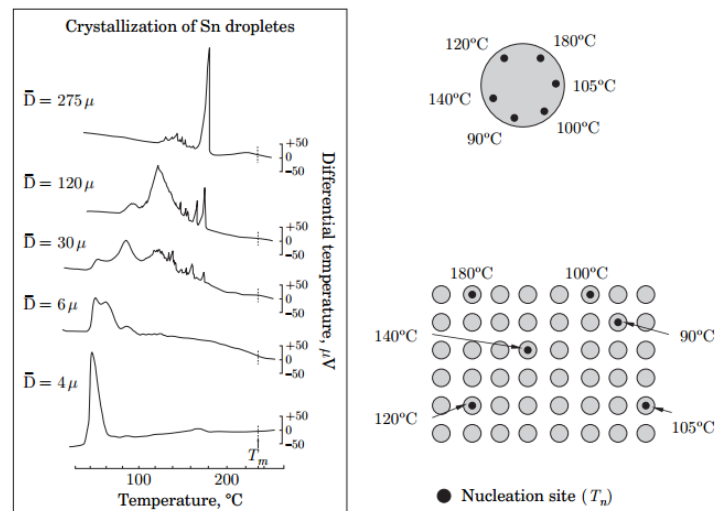


Figure 1- 4 : Spectre d'analyse thermique différentielle obtenu sur des gouttes d'étain (Perepezko J.H. 1996) et schéma illustrant l'isolement des particules affinantes lors de la diminution de taille des gouttes - tiré de (Dantzig J.A. 2009).

Enfin, la deuxième incohérence relevée avec ce modèle concerne la sensibilité aux conditions de solidification. Le modèle prédit en effet que toutes les particules sont activées dès lors que la densité initiale de particules affinantes est suffisamment faible, indépendamment des conditions de solidification, ce qui n'est pas le cas expérimentalement. En effet, nous verrons plus tard que des paramètres tels la vitesse de refroidissement influent sur la densité finale de grains dès de faibles densités de particules affinantes.

Le modèle de germination thermique hétérogène ne permet donc pas de retrouver les tendances observées expérimentalement : l'hypothèse de grains activés thermiquement ne paraît pas adaptée.

#### 1.1.4. Germination athermique hétérogène

La germination instantanée ou athermique est dépendante uniquement de la géométrie des particules affinantes. La différence fondamentale entre les deux approches est donc la suivante : dans le cas de la germination thermique, il y a une probabilité de formation d'un grain à toute température, tandis que dans l'hypothèse de germination athermique, la géométrie des particules affinantes caractérise entièrement la surfusion à laquelle elles sont activées. Dès que cette surfusion est atteinte, la germination est instantanée.



Nous avons vu dans le paragraphe précédent qu'il y a germination hétérogène si les énergies interfaciales vérifient la relation :

$$\gamma_{il} < \gamma_{sl} + \gamma_{is} \quad (1.13)$$

Plus précisément, deux cas sont distingués.

Lorsque  $\left| \frac{\gamma_{il} - \gamma_{is}}{\gamma_{sl}} \right| \leq 1$ , la phase solide se développe sous la forme d'une calotte sphérique sur la particule affinant, comme on l'a vu précédemment (Figure 1- 5).

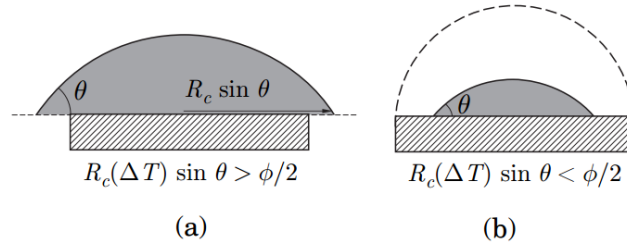


Figure 1- 5 : Schéma de germination hétérogène dans le cas  $\left| \frac{\gamma_{il} - \gamma_{is}}{\gamma_{sl}} \right| \leq 1$  : (a) le rayon de la particule affinant  $\phi/2$  est trop faible pour qu'il y ait germination à la surfusion donnée et (b) le rayon est suffisant- tiré de (Dantzig J.A. 2009).

On suppose que les particules affinant ont la forme de cylindres aplatis de rayon  $\phi/2$ . A une surfusion donnée, si le rayon critique pour la croissance libre de la calotte sphérique est supérieur à  $\phi/2$ , la germination n'est pas possible (Figure 1- 5-a). Il faut attendre que la surfusion augmente, et donc que le rayon critique diminue, pour pouvoir former la calotte sphérique (Figure 1- 5-b). La surfusion minimale pour qu'une calotte sphérique commence à se former sur la particule affinant est donc :

$$\Delta T_g = -\frac{4\Gamma \sin\theta}{\phi} \quad (1.14)$$

puis lorsque la surfusion continue à diminuer, le rayon de courbure de la phase solide diminue jusqu'à former une demi-sphère de rayon égal à celui de la particule affinant, de façon à vérifier l'équation de Laplace-Young. La demi-sphère est formée lorsque la surfusion devient suffisante :

$$\Delta T_c = \Delta T_g \left( \theta = \frac{\pi}{2} \right) = -\frac{4\Gamma}{\phi} \quad (1.15)$$

A cette surfusion, on retrouve donc une phase solide sphérique de diamètre  $\phi$  et le rayon de courbure de la phase solide est minimum. La croissance libre est donc possible dès que la surfusion devient supérieure à  $\Delta T_c$  en valeur absolue.

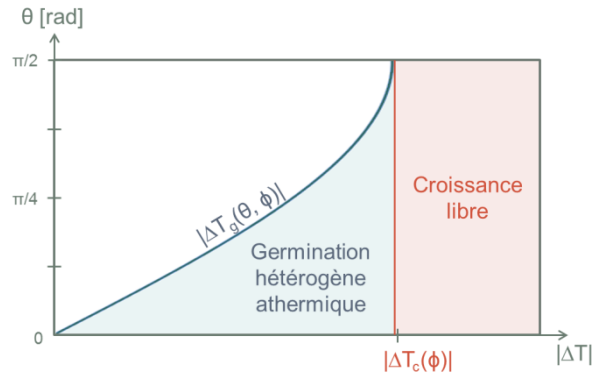


Figure 1- 6 : Zones de formation de la calotte sphérique et de croissance libre pour le modèle de germination hétérogène athermique en fonction de l'angle de mouillage et de la surfusion, pour un diamètre de particule affinant  $\phi$  fixé- reproduit d'après (Dantzig J.A. 2009).

Le schéma Figure 1- 6 récapitule les zones de formation de la calotte sphérique et de croissance libre en fonction de l'angle de mouillage et de la surfusion pour une particule affinant de diamètre  $\phi$ .

En réalité, lorsque la particule affinant est efficace, c'est-à-dire lorsque l'angle de mouillage est faible, la phase solide formée ne fait que quelques atomes d'épaisseur. Son épaisseur devient même inférieure à un atome lorsque cet angle devient inférieur à  $10^\circ$  ! Le modèle de germination hétérogène par formation d'une calotte sphérique n'est donc pas approprié dans ce cas (Kim W.T. 1994).

Ceci nous amène à considérer le deuxième cas pour lequel la germination hétérogène est possible. Il correspond à la condition  $\gamma_{is} < \gamma_{il} - \gamma_{sl}$  énoncée dans le paragraphe précédent. Si la particule affinant de surface  $A_i$  et l'alliage sont tellement différents qu'une couche solide d'épaisseur  $\delta$  recouvre entièrement cette première, l'interface impureté-liquide est remplacée par une double interface impureté-solide et solide-liquide, et la fonction caractéristique  $G$  est modifiée. On a alors :

$$G = -\frac{\Delta_l S_m(T_f, P_0)}{V_m^s} \Delta T A_i \delta + (\gamma_{is} + \gamma_{sl} - \gamma_{il}) A_i \quad (1.16)$$

La contribution de l'énergie interfaciale est cette fois négative, on peut donc avoir une couche solide d'épaisseur  $\delta$  recouvrant la particule pour des surfusions positives (une température supérieure à la température de fusion). Ensuite, lorsque la surfusion devient négative et diminue, la phase solide croît et son rayon de courbure diminue jusqu'à former une demi-sphère de rayon égal à celui du substrat comme dans le premier cas, de façon à vérifier l'équation de Laplace-Young. Ce deuxième cas correspondant au modèle dit d'adsorption (Kim W.T. 1994) est donc plus approprié pour modéliser la germination hétérogène dans le cas de particules affinantes efficaces. Une couche de phase cristalline de nature différente se forme sur la surface des particules affinantes et permet ensuite la croissance.

Ce modèle de germination hétérogène athermique est étayé par des résultats expérimentaux. Schumacher et al. ont montré la possibilité d'étudier la germination

hétérogène grâce à l'utilisation d'alliages d'aluminium amorphes (G. A. Schumacher P. 1998). Par microscopie électronique à transmission, ils ont pu mettre en évidence la formation d'une couche solide de nature différente sur les particules affinantes. Plus précisément, ils ont étudié la germination d'un alliage d'aluminium à partir d'un affinant largement utilisé industriellement : le  $TiB_2$ . Leurs expériences montrent clairement la formation d'une couche de  $Al_3Ti$  sur les particules de  $TiB_2$ . Du fait du faible excès de titane dans la matrice amorphe, la phase  $Al_3Ti$  ne peut pas exister à l'équilibre, mettant en évidence l'effet d'adsorption. Le modèle de germination épitaxiale, développé récemment, décrit les mécanismes d'arrangement atomique à l'interface particule affinante/ liquide (Fan Z. 2013). Au-dessus d'une surfusion critique, l'arrangement atomique augmente à l'interface pour imiter la structure de la particule affinante, formant un solide pseudomorphique. Cette surfusion critique est fonction de la différence des réseaux cristallins de la particule affinante et du métal solide. Cependant, le modèle de germination ne fait pas encore consensus et est encore étudié actuellement (Easton M. 1999).

Mais que la germination sur les particules affinantes se fasse sous forme d'une calotte sphérique ou d'une couche mince, la surfusion nécessaire à formation d'une couche solide sur les particules affinantes est plus faible, en valeur absolue, que la surfusion minimale pour la croissance libre. C'est pourquoi l'étape de croissance libre est communément considérée comme étant l'étape limitante pour la formation des grains. Avec ce modèle, toute particule affinante est donc le siège d'une germination si la surfusion est suffisante, et cette surfusion doit être d'autant plus grande que le diamètre de la particule est petit.

Rappaz et al. ont repris en 1986 le modèle de Maxwell et Hellawell en prenant pour étape limitante non plus la formation du premier solide sur les particules affinantes mais la croissance libre (T. P. Rappaz M. 1986). Ils ont pour cela considéré une distribution en taille des particules affinantes d'après une loi gaussienne. Plus récemment, Greer et al. ont repris ce modèle mais en utilisant une loi exponentielle pour la distribution en taille des particules (B. A. Greer A.L. 2000). Avec ce choix pour l'étape limitante, la prédiction de la densité finale de grains en fonction de la densité initiale de germes est beaucoup plus proche des résultats expérimentaux, comme on peut le voir Figure 1- 7. Les résultats expérimentaux donnés Figure 1- 7 font référence à des expériences de type dit TP-1. Ce protocole expérimental développé par Alcan consiste à solidifier le métal dans des moules de forme conique de la taille du centimètre (TP-1 tests 1987). La vitesse de refroidissement est alors supposée constante et homogène dans le système. Ce type d'expérience sera référencé simplement comme test TP-1 dans la suite.

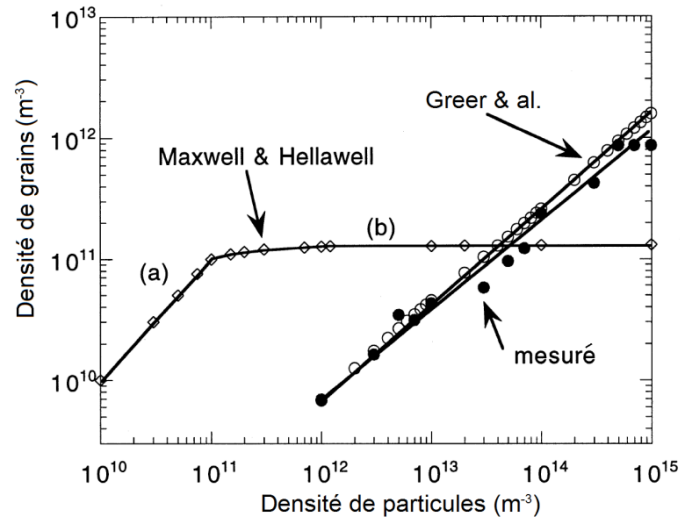


Figure 1- 7 : Densité de grains fonction de la densité de particules affinantes introduites dans le métal, d’après l’expérience, d’après le modèle de Maxwell-Hellawell et d’après le modèle de Greer et al. pour la solidification d’aluminium contenant 1kg/t d’affinant de type Al-5Ti-1B pour un test de type TP-1– tiré de (B. A. Greer A.L. 2000).

On retrouve l’effet du taux d’affinant sur le diamètre de grain. L’impact de différents paramètres tels le coefficient de restriction de croissance sont également vérifiés. Ce paramètre noté  $Q$  permet de quantifier la restriction de croissance, induite par les hétérogénéités de composition à l’échelle du grain :

$$Q = mC_0(k-1) \tag{1.17}$$

avec  $m$  la pente supposée constante du liquidus,  $k$  le coefficient de partage et  $C_0$  la composition nominale en élément d’alliage. La tendance est bien celle observée expérimentalement (Spittle J.A. 1995) : lorsque  $Q$  augmente, le diamètre de grain diminue et atteint un minimum.

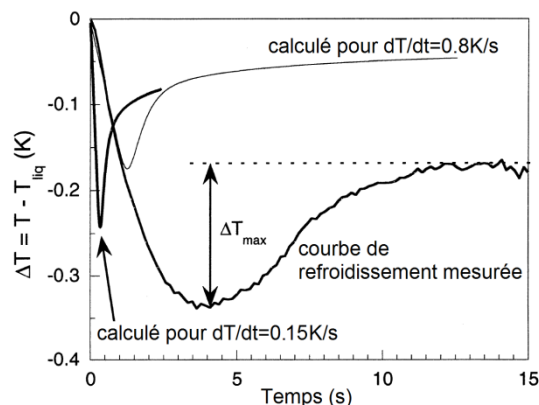


Figure 1- 8 : Courbe de refroidissement pour un alliage Al-0.5%Fe avec 5ppt de Al-5Ti-1B, obtenue expérimentalement et par le modèle de Greer et al. – issu de (B. A. Greer A.L. 2000)

Cependant, la comparaison des courbes de refroidissement est moins concluante. Dans l’expérience réalisée dans (B. A. Greer A.L. 2000), la vitesse de refroidissement est initialement de  $-0,8K.s^{-1}$ , puis lorsque la solidification commence, elle passe à  $-0,15 K.s^{-1}$ . Des

calculs ont donc été réalisés pour ces deux valeurs, et permettent de comparer l'évolution de la surfusion. Pour les résultats expérimentaux, la surfusion est obtenue par comparaison à la température au niveau du plateau. On constate que les trois courbes (données Figure 1- 8) donnent une surfusion maximale d'environ  $-0,2K$ . Cependant, le temps avant la recalescence est plus de deux fois plus grand que celui obtenu par la modélisation, pour les deux vitesses de refroidissement. Les auteurs avancent que cet écart peut être dû à la non isothermalité du métal. Cependant, si le refroidissement est surestimé par le modèle, on constate que la taille finale des grains est correctement estimée pour ces tests de petites dimensions.

### 1.1.5. Lois de distribution en taille des germes

Dès 1950, Cibula a montré que l'ajout de titane, plus particulièrement combiné à du carbone ou à du bore, permettait d'affiner la microstructure (Cibula A. 1949). Ces deux principaux affinants sont utilisés industriellement dans la solidification de l'aluminium encore aujourd'hui. Plus précisément, un affinant de type Al-Ti-B est constitué de particules  $TiB_2$  et de particules  $Al_3Ti$  dans une matrice d'aluminium. Greer et al. ont pu constater expérimentalement que les grains se forment autour des particules  $TiB_2$  (Greer A.L. 2003). Il semble que la fine couche de  $Al_3Ti$  qui se forme sur les particules  $TiB_2$  favorise la solidification du métal sur ces dernières. L'affinant de type Al-Ti-C a été développé plus récemment et a donc moins été étudié, mais il semble que les grains se forment autour des particules  $TiC$  (Greer A.L. 2000). C'est pourquoi le  $TiB_2$  et le  $TiC$  ont été étudiés et leur distribution en taille déterminée. Ils diffèrent par leurs réactions éventuelles avec des éléments d'alliage mais surtout par leur distribution en taille, comme on peut le voir Figure 1-9:

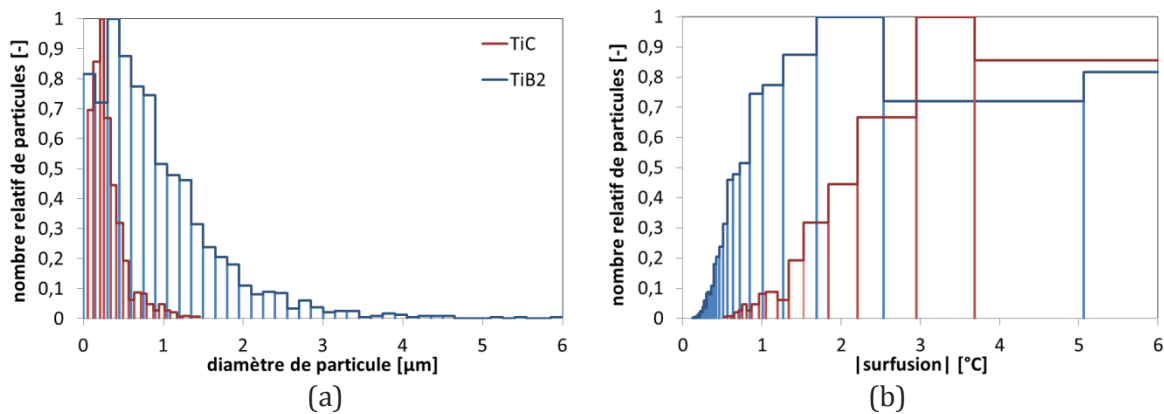


Figure 1- 9 : Répartition (a) en taille et (b) en surfusion ( en valeur absolue) des particules affinantes pour les affinants Al-5Ti-B et Al-3Ti-0,15C- tiré de (Greer A.L. 2000).

Les particules de  $TiB_2$  sont donc activées plus rapidement que celles de  $TiC$  car les particules deviennent actives par ordre décroissant de taille, c'est-à-dire par ordre croissant de surfusion (en valeur absolue). Ces courbes permettent également de constater qu'une partie seulement des particules affinantes sont utilisées comme lieu de germination car la surfusion ne dépasse pas quelques degrés pour des conditions de solidification classiques. Elle dépasse même rarement  $1^{\circ}C$  lors de l'utilisation de  $TiB_2$ . Ces distributions

expérimentales servent de référence dans la détermination de lois de distribution utilisées dans les modèles. De nombreuses ont été proposées au fil des années.

Dès 1966, Oldfield a relié la population de cellules eutectiques au carré de la surfusion maximale pour la solidification de la fonte (Oldfield W. 1966). Il a utilisé cette loi empirique pour modéliser des courbes de refroidissement. En 1989, Thevoz et al. ont proposé d'utiliser une loi normale pour modéliser la distribution (Thevoz Ph. 1989): trois paramètres sont alors définis (l'espérance, l'écart type et la densité totale de germes) à partir de mesures expérimentales de la densité de grains et de la surfusion maximale atteinte. Plus récemment, ce type de distribution a été utilisé dans le modèle CA-FE par Gandin et al. (D. J. Gandin Ch.A. 1999). Dans (G. A. Quested T.E. 2004), les auteurs constatent cependant que ce type de distribution ne permet pas de modéliser correctement la distribution mesurée pour des affinants de type  $TiB_2$ . La densité cumulée de germes peut en effet ne pas être nulle en  $d=0$  (diamètre de germes nul), ce qui n'a pas de sens physique. Ils proposent donc un autre type de loi : la distribution log-normale. L'erreur entre les valeurs mesurées et celles obtenues par cette loi pour la distribution en taille des germes ne dépasse alors pas 10%. Enfin, dans d'autres modèles, il est considéré que seules les plus grosses particules affinantes ( $>1\mu m$ ) sont activées car la surfusion reste relativement faible. Il suffit alors de modéliser la fin de la distribution. Pour cela, Greer et al. utilisent une loi exponentielle (B. A. Greer A.L. 2000).

Dans tous les cas, les auteurs se basent sur le modèle développé par Maxwell et Hellawell (Maxwell I. 1975) d'une part et par Turnbull (Turnbull D. 1950) d'autre part. Le volume considéré est supposé isotherme et la germination est limitée par le phénomène de recalescence, c'est-à-dire la remontée en température. Ces lois ont pour but de correspondre au mieux à la distribution expérimentale afin de prendre correctement en compte la germination dans des modèles macroscopiques de solidification.

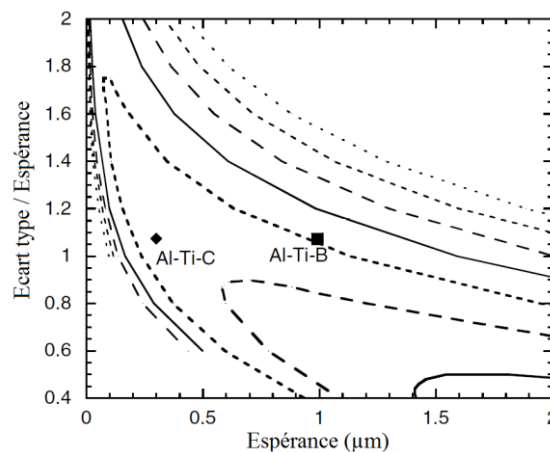


Figure 1- 10 :Schéma 2D de la taille moyenne de grain prédite par le modèle en fonction des deux paramètres de la distribution de particules affinantes pour une loi log-normale, allant de 80microns en trait plein épais à 140microns en pointillés fins par intervalle de 10microns. La vitesse de refroidissement est fixée à  $dT/dt=-3,5K/s$ . Les affinants de type Al-5Ti-B et Al-3Ti-0.15C sont indiqués- issu de (G. A. Quested T.E. 2005)

A l'inverse, ce modèle prédit que l'efficacité des affinants peut être améliorée en modifiant leur distribution en taille. En effet, Quested et al. ont montré qu'en modifiant l'espérance et l'écart type de la distribution en taille des particules log-normale utilisée dans

leur modèle, l'estimation de la taille finale moyenne des grains peut être réduite (G. A. Quedsted T.E. 2005), ce qui est illustré Figure 1- 10.

### 1.1.6. Estimation de la distribution en taille des germes : limitations

Toute la discussion a été menée jusqu'à présent en considérant la germination et la croissance à l'échelle du grain. Tous les résultats expérimentaux présentés concernent des tests de type TP-1, donc des domaines de solidification de l'ordre du centimètre. Mais les phénomènes macroscopiques liés à la solidification ont-ils un impact sur la germination ? On a vu précédemment que la distribution en taille des particules affinantes a un impact majeur sur la taille finale de grain. Cette distribution est-elle homogène et constante dans tout le domaine ?

#### 1.1.6.1. Empoisonnement des particules affinantes

Certains éléments sont connus pour atténuer l'effet des particules affinantes. Typiquement, la présence de zirconium modifie de façon importante la taille finale des grains (Bunn A.M. 1999). Lorsqu'il est ajouté à un alliage affiné, l'empoisonnement, c'est-à-dire la diminution de l'effet des particules affinantes, est progressif. Lorsqu'au contraire les particules affinantes sont ajoutées à un alliage contenant déjà du zirconium, l'empoisonnement est immédiat. Cet effet n'est cependant pas constaté sur les particules affinantes de type TiC. Une analyse par microscopie électronique à balayage par transmission a permis de montrer la présence de zirconium au sein des particules de TiB<sub>2</sub>. Le paramètre de maille des particules est donc modifié et la couche de Al<sub>3</sub>Ti aurait plus de difficultés à se former, réduisant l'efficacité d'affinage des particules. Le zirconium a donc un effet direct sur ces particules affinantes. Connaître la distribution initiale en particules TiB<sub>2</sub> n'est pas suffisant pour estimer la taille finale de grains. De plus, l'empoisonnement au zirconium s'amplifie avec le temps d'attente, c'est-à-dire le temps entre l'ajout des particules affinantes dans l'alliage et la solidification proprement dite, comme on peut le voir dans (Jones G.P. 1976).

#### 1.1.6.2. Agglomération, fragmentation, dissolution et sédimentation

Dès 1976, Jones et Pearson ont mis en évidence l'agglomération de particules de TiB<sub>2</sub> (Jones G.P. 1976). Un grossissement important (17000 fois) a permis d'observer non pas des particules mais des clusters de particules de TiB<sub>2</sub>. La distribution en taille des particules affinantes en est donc totalement modifiée. Dans (G. A. Schumacher P. 1996), les auteurs suggèrent que la couche de Al<sub>3</sub>Ti recouvrant les particules de TiB<sub>2</sub> joue le rôle d'« adhésif » entre les particules. A l'inverse, la fragmentation de bras secondaires de grains dendritiques due à une refusion locale des grains peut mener à la formation de nouveaux grains. En effet, ces fragments une fois détachés sont assimilables à des grains à part entière et continuent à croître. Il a été montré que le détachement de ces bras secondaires est favorisé par l'augmentation de la vitesse de croissance des grains, l'augmentation de la composition en

soluté et la diminution de la vitesse de refusion (Sato T. 1987). Ces phénomènes dépendent donc des conditions de solidification et du temps.

De plus, les particules de  $TiB_2$  comme celles de  $Al_3Ti$  sont plus denses que l'aluminium liquide (Vinod Kumar G.S. 2010) et sédimentent. L'effet de la sédimentation a été mis en évidence pour les particules  $Al_3Ti$  dans (Vinod Kumar G.S. 2010). De l'aluminium pur contenant 1wt.% de l'affinant Al-5Ti est maintenu à 750°C pendant un temps variable avant d'être solidifié. Lorsque le temps d'attente est faible (moins de 5 minutes), la convection forcée juste avant la solidification ne change pas la microstructure. Mais lorsque le temps d'attente augmente (30 minutes), la microstructure devient plus grossière lorsque le métal n'est pas mélangé avant d'être coulé. La convection forcée remettrait en suspension les particules affinantes qui ont sédimenté. Lorsque le temps d'attente augmente encore (60 minutes), la microstructure devient plus grossière mais la convection forcée n'a plus d'effet. Les auteurs suggèrent que les particules affinantes ont eu le temps d'être dissoutes avant la solidification. Lorsque la température initiale du métal est plus élevée, la convection forcée a un effet affinant pour un temps d'attente plus important. Or les auteurs ont montré que dans ce cas, la taille des particules  $Al_3Ti$  est en moyenne plus grande. Elles mettent donc plus de temps à se dissoudre.

L'efficacité de l'affinage varie avec le temps. Il existe un temps d'attente optimal entre le moment où l'affinant est ajouté et le moment où la solidification a lieu, comme on peut le voir Figure 1- 11. Ce temps d'attente est fonction de l'affinant utilisé aussi bien que des conditions de solidification.

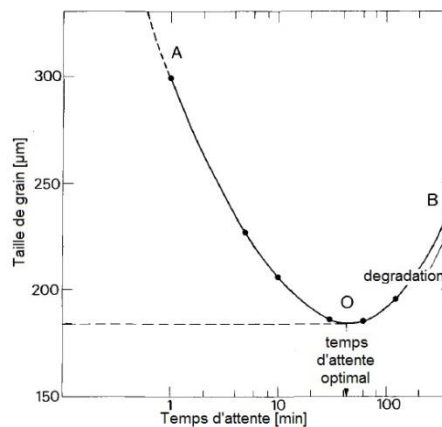


Figure 1- 11 : Courbe caractéristique de l'impact du temps d'attente sur le diamètre moyen de grain – issu de (Jones G.P. 1976).

On a donc vu que l'efficacité d'un affinant dépend à la fois du temps et de l'espace. La distribution en taille des germes est loin d'être uniforme et constante.



### 1.1.6.3. Convection

Jusqu'à présent, les résultats expérimentaux comme les résultats numériques présentés étaient basés sur des tests du type TP-1, donc de l'ordre du centimètre. Les études à l'échelle macroscopique sont rares ; Thevoz et al. ont étudié la solidification d'un cylindre de Al-7wt.%Si de 120 mm de longueur affiné par 5 ppm de Ti refroidi par le bas (Thevoz Ph. 1989). Expérimentalement, 5 points de mesure de la température ont été placés de 20 mm à 100 mm de la paroi refroidie. Numériquement, le cas est supposé 1D. Dans chacune des 60 mailles définies, la température est supposée uniforme et la distribution des particules affinantes est supposée gaussienne. L'évolution de la température en ces 5 points est donnée par le modèle et par l'expérience Figure 1- 12. On constate, comme dans le modèle de Greer et al. (B. A. Greer A.L. 2000), que la vitesse de refroidissement est sous-estimée par le modèle, même si la tendance générale est respectée.

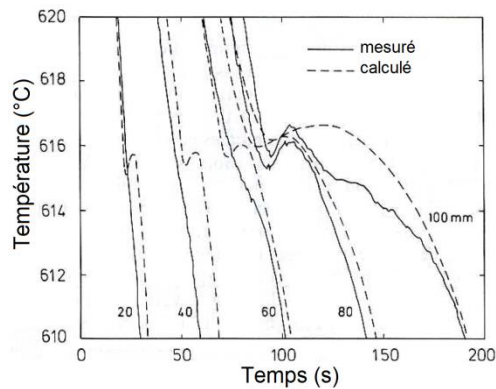


Figure 1- 12 : Courbes de refroidissement à différents points de mesure pour un cylindre de 120mm de long de Al-7%Si, obtenues par la mesure et par la modélisation – issu de (Thevoz Ph. 1989).

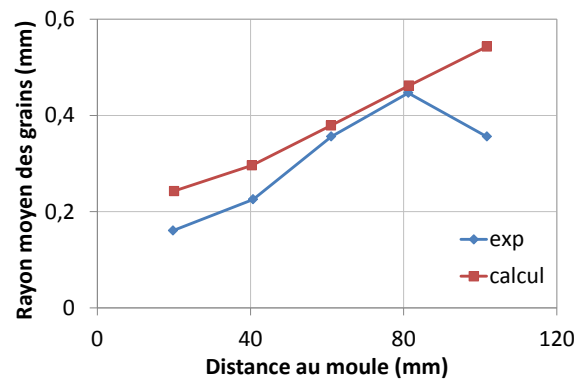


Figure 1- 13 : Rayon final moyen des grains en fonction de la distance à la paroi pour la solidification d'un cylindre de 120mm de long de Al-7%Si, obtenu par l'expérience et par la modélisation – issu de (Thevoz Ph. 1989).

La taille de grain ainsi obtenue par le modèle est proche de celle mesurée, excepté pour le dernier point à 100mm de la paroi (Figure 1- 13). Les auteurs suggèrent que la convection, négligée dans le modèle, devient importante quand le gradient thermique diminue, ce qui est le cas loin de la paroi refroidie. Il semblerait donc que les phénomènes macroscopiques de transport aient un impact sur la microstructure finale.

Nous avons vu au paragraphe 1.1.6 qu'il est complexe d'estimer la distribution en taille des germes. L'empoisonnement des germes aussi bien que des phénomènes de sédimentation, d'agglomération ou de dissolution des particules modifient localement la distribution. Cette dernière est donc loin d'être constante et uniforme dans le bain liquide. De plus, des phénomènes macroscopiques de transport peuvent encore modifier la distribution. Bien que l'effet du transport des germes dans le bain liquide n'ait jamais été étudié, on peut supposer que la convection de la phase liquide ait un impact. L'étude menée par Thevoz et al. dans (Thevoz Ph. 1989) laisse penser que la convection du liquide modifie la taille finale des structures. Afin d'améliorer la modélisation de la germination, il semble donc primordial de prendre en compte ces variations locales de la distribution en taille des particules.

## 1.2. Croissance des grains

On a montré dans les paragraphes précédents qu'il est favorable énergétiquement pour une sphère ayant atteint le rayon critique  $R_c$  de continuer à croître. On cherche donc maintenant à déterminer la cinétique de croissance de cette sphère, c'est-à-dire à relier la vitesse de croissance de la phase solide aux conditions de refroidissement.

On s'intéresse ici uniquement aux structures équiaxes qui sont les structures les plus communes dans la coulée semi-continue d'aluminium. Les structures colonnaires ne seront donc pas abordées dans ce travail.

### 1.2.1. Conservation à l'interface liquide/solide

Lors de la solidification d'un grain équiaxe, la chaleur latente de solidification est extraite par le liquide et le soluté est en général rejeté du solide vers le liquide. Ceci se traduit par les bilans suivants à l'interface solide/liquide :

$$\begin{aligned} \text{conservation du soluté : } \rho_s (C_l^* - C_s^*) \vec{v}_f \cdot \vec{n}_{l/s} &= D_l \rho_l \left. \frac{\partial C_l}{\partial n_{l/s}} \right|_{l/s} + D_s \rho_s \left. \frac{\partial C_s}{\partial n_{s/l}} \right|_{s/l} \\ \text{conservation de la chaleur : } \rho_s L_f \vec{v}_f \cdot \vec{n}_{l/s} &= \lambda_l \left. \frac{\partial T}{\partial n_{l/s}} \right|_{l/s} + \lambda_s \left. \frac{\partial T}{\partial n_{s/l}} \right|_{s/l} \end{aligned} \quad (1.18)$$

La vitesse du front de solidification  $\vec{v}_f$  est en grande partie fonction de l'efficacité de l'évacuation de la chaleur et du soluté. En effet, les diffusions thermiques et solutales n'étant pas parfaites, des gradients de température et de composition apparaissent devant le front de solidification. Ces gradients déterminent l'écart à l'équilibre et donc la force motrice pour la croissance du grain. Cet écart à l'équilibre a plusieurs contributions.

La première est due à la forme de l'interface elle-même. Sa courbure induit une surfusion  $\Delta T_R$  :

$$\Delta T_R = -\frac{2\Gamma}{R}$$

$R$  rayon de courbure de l'interface  
( en supposant les deux courbures principales égales)

(1.19)

La surfusion thermique  $\Delta T_T$  se déduit du bilan de chaleur comme :

$$\Delta T_T = T_l^\infty - T^*$$

$T^*$  température à l'interface  
 $T_l^\infty$  température dans le liquide loin de l'interface

(1.20)

et la surfusion solutale  $\Delta T_C$  se déduit du bilan de soluté comme :

$$\Delta T_C = m(C_l^* - C_l^\infty)$$

(1.21)

$C_l^*$  titre massique du soluté à l'interface côté liquide  
 $C_l^\infty$  titre massique du soluté dans le liquide loin de l'interface

L'écart à l'équilibre est donc donné par la somme de ces trois contributions :

$$\Delta T = \Delta T_R + \Delta T_T + \Delta T_C \quad (1.22)$$

Dans les cas qui nous intéressent, la surfusion solutale est prédominante, donc les deux autres contributions sont négligées. En effet, la distance caractéristique de diffusion thermique  $\delta_T$  est de plusieurs ordres de grandeur supérieure à la distance caractéristique de diffusion solutale  $\delta_C$  :

$$\delta_T \approx \frac{\alpha}{v_f} = \frac{\lambda}{\rho C_p v_f}; \delta_C \approx \frac{D_l}{v_f} \quad (1.23)$$

donc  $\frac{\delta_C}{\delta_T} \approx \frac{D_l}{\alpha} \approx \frac{10^{-9}}{10^{-5}} \ll 1$  pour les alliages d'aluminium

ce qui se traduit par un nombre de Lewis très grand devant 1. De même, la surfusion de courbure est négligeable lorsque le rayon de courbure n'est pas trop faible. Dans le cas d'une pointe de dendrite, que nous étudierons ensuite, le rayon de courbure reste au moins de l'ordre du micron, ce qui donne une surfusion inférieure au dixième de degré. L'impact de cette surfusion sur la taille finale des structures sera étudié au chapitre III.

### 1.2.2. Dendritisation

Afin de relier la vitesse de croissance de la phase solide à la surfusion, il faut encore connaître la morphologie du grain qui croît. Or on constate expérimentalement que les structures de solidification sont rarement purement globulaires, c'est-à-dire que la structure finale ne correspond pas à un simple empilement de sphères. Au cours de la croissance, une sphère devient instable vis-à-vis des perturbations de son interface avec la phase liquide. Des directions privilégiées de croissance apparaissent du fait de l'anisotropie d'interface et les structures deviennent dendritiques. On peut voir la différence entre une morphologie globulaire et une morphologie dendritique Figure 1- 14.

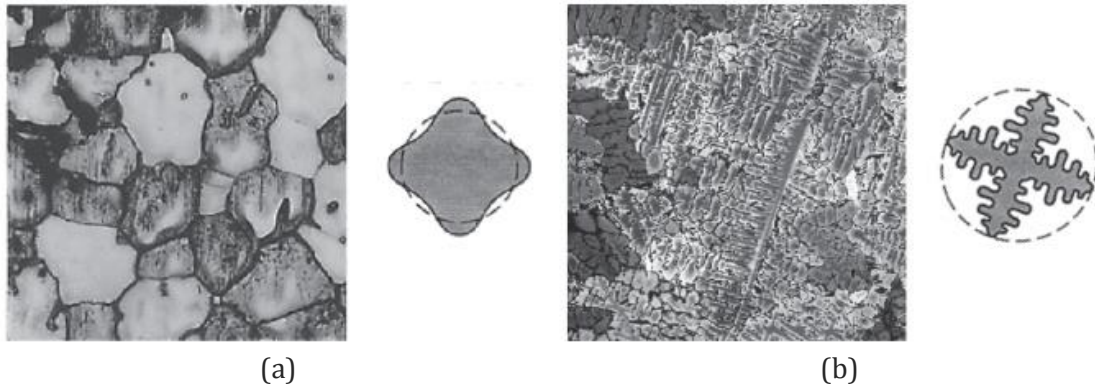


Figure 1- 14 : Structures de solidification équiaxes obtenues expérimentalement : (a) grains globulaires de taille  $\approx 100 \mu\text{m}$  pour un Al-1wt.%Cu et (b) grains dendritiques de taille  $\approx 2 \text{ mm}$  – tiré de (Dantzig J.A. 2009).

Mullins et Sekerka ont étudié la stabilité morphologique d'une particule et ont montré qu'une sphère se déstabilise lorsque son rayon dépasse environ 7 fois le rayon critique pour la croissance libre (Mullins W.W. 1963). Dans le cas de grains formés sur des particules affinant, cela correspond à 7 fois le rayon des particules affinant elles-mêmes.

### 1.2.3. Croissance d'une pointe de dendrite

Une fois la déstabilisation de l'interface atteinte, la croissance du grain est déterminée par la croissance de ses bras primaires, donc par la croissance des pointes de ses bras primaires. La prise en compte de la forme exacte de l'interface serait beaucoup trop complexe. C'est pourquoi dès 1945, Papapetrou a proposé de décrire la forme d'une pointe primaire de dendrite comme un parabololoïde de révolution (Papapetrou A. 1935). Ivantsov a été le premier à déterminer la solution analytique pour ce système en considérant un parabololoïde de révolution de rayon  $r$  isotherme avançant à vitesse constante  $v_f$  dans la direction de son axe principal en ne considérant que la surfusion thermique. Il a ainsi relié le

nombre de Stefan  $Ste = \frac{C_p \Delta T_T}{L_f}$  (donc la force motrice pour la croissance) au nombre de

Peclet (qui traduit la croissance du parabololoïde) :

$$\Omega = Iv(Pe_T); \Omega = Ste ; Pe_T = \frac{v_f \cdot r}{2\alpha} \quad (1.24)$$

Avec la fonction d'Ivantsov :

$$Iv(Pe) = Pe \cdot \exp(Pe) \cdot E_1(Pe) = Pe \cdot \exp(Pe) \cdot \int_{Pe}^{\infty} \frac{\exp(-z)}{z} dz \quad (1.25)$$

Ce résultat a été adapté au cas d'un alliage binaire pour lequel la surfusion est principalement solutale :

$$\Omega = Iv(Pe_c) ; \Omega = \frac{C_l^* - C_l^\infty}{C_l^*(1-k)} = \frac{\Delta T_c}{mC_l^*(1-k)} ; Pe_c = \frac{v_f \cdot r}{2D_l} \quad (1.26)$$

Dans le cas général on a :

$$\Delta T = \Delta T_R + \Delta T_T + \Delta T_C = -\frac{2\Gamma}{r} - \frac{L_f}{C_p} Iv(Pe_T) - mC_l^\infty \left[ 1 - \frac{1}{1 - (1-k)Iv(Pe_c)} \right] \quad (1.27)$$

La solution d'Ivantsov permet de relier la surfusion à un ensemble infini de couples  $(r, v_f)$ . Une seconde relation est alors nécessaire pour déterminer le couple  $(r, v_f)$ . Elle peut être approximée par l'analyse de stabilité marginale basée sur les développements de Mullins et Sekerka (Mullins W.W. 1963). On suppose que le rayon de pointe de dendrite est égal à l'amplitude minimale d'une instabilité de l'interface pour que cette dernière ne s'amortisse pas mais au contraire s'amplifie. Quand on ne prend en compte que la surfusion solutale, la relation entre le rayon de pointe et la vitesse de croissance se réduit à :

$$r^2 v_f \approx \frac{8\pi^2 \Gamma D_l}{mC_l^\infty (1-k)} \quad (1.28)$$

Des modèles cinétiques de croissance dendritique plus complexes sont développés, encore actuellement, afin par exemple de prendre en compte l'effet de la convection sur la pointe de dendrite (Gandin Ch-A. 2003) (Ananth R. 1991). Cependant, l'objectif est ici seulement de mettre en évidence la relation entre la croissance d'une pointe de dendrite et l'écart à l'équilibre à l'origine de cette croissance.

#### 1.2.4. Modélisation de la croissance équiaxe

L'objectif des modèles de croissance est de relier la cinétique de croissance d'une pointe primaire de dendrite à la croissance du grain. Les modèles classiques tels le modèle des bras de levier ou le modèle de Scheil supposent la diffusion du soluté parfaite ou nulle dans les phases solide et liquide, donc ils ne permettent pas de prendre en compte la cinétique de croissance : la fraction solide ne dépend que de la température et ne dépend pas de la vitesse de refroidissement ou de la germination. Pour prendre en compte la cinétique de croissance, on ne peut négliger le gradient de soluté devant le grain. Pour cela, différents modèles ont été développés.

Des modèles de type champ de phase (Karma A. 1998) (Ramirez J.C. 2004) ou « pseudo front tracking » (Jacot A. 2002) permettent de décrire quantitativement la croissance de grains de forme complexe mais ils sont très coûteux en temps de calcul, ce qui ne permet pas de les implémenter dans des modèles macroscopiques de solidification. Nous allons donc présenter ici différents modèles microscopiques prenant en compte la morphologie des grains de manière simplifiée et pouvant ainsi être utilisés à l'échelle des produits industriels.

### 1.2.4.1. Modèle de croissance à deux phases

Dans certains modèles de prise de moyenne comme SOLID, la croissance de la phase solide et la croissance des grains sont découplées. La croissance des enveloppes, supposées octaédriques dans le modèle SOLID, ne dépend que de la vitesse de croissance des pointes primaires, et donc du modèle de pointe considéré. La croissance de la phase solide, supposée sphérique, est quant à elle fonction du modèle de diffusion du soluté adopté. La fraction d'enveloppe n'intervient donc pas dans l'estimation du profil de soluté dans les phases solide et liquide. Seules deux phases sont prises en compte pour le transport du soluté : la phase liquide et la phase solide supposée sphérique. La distance de diffusion dans le liquide est tirée de (Ni J. 1993) et celle dans le solide est obtenue en supposant non pas une géométrie unidimensionnelle plate mais sphérique. Le modèle de croissance de pointe correspond au modèle LGK proposé par Lipton et al. dans (Lipton J. 1984).

Avec ce modèle, la fraction d'enveloppe impacte le mouvement des grains ainsi que leur blocage à l'échelle macroscopique. Cependant, la prise en compte de la dendritisation des grains n'a pas d'impact à l'échelle microscopique sur la croissance de la phase solide et sur le refroidissement, jusqu'à une fraction d'enveloppe limite. En effet, après une fraction d'enveloppe fixée, supposée correspondre au moment à partir duquel les champs solutaux des différents grains interagissent, le système est mis à l'équilibre.

Afin de tester ce modèle, nous comparons la courbe de refroidissement obtenue par l'expérience (T. P. Rappaz M. 1987) et par le modèle SOLID dans le cas d'un échantillon de l'alliage Al-7wt.%Si refroidi à  $-0,3\text{K/s}$  avec ou sans affinant. Des mesures post mortem ont permis aux auteurs de déterminer une taille finale de grains, qui est utilisée dans le modèle (à travers une densité de germes activée au liquidus). Les données thermodynamiques utilisées dans le modèle sont issues de (Gandin Ch.A. 2010). L'extraction de chaleur est imposée constante et égale à  $-7,05.10^5\text{W.kg}^{-1}$  et la densité de particules activée au liquidus est  $12,387.10^8\text{ m}^{-3}$  pour le cas A et  $18,842.10^6\text{ m}^{-3}$  pour le cas B. La Figure 1- 15 montre la comparaison des courbes de refroidissement mesurées (en noir) et estimées numériquement (en couleur) pour les deux échantillons :

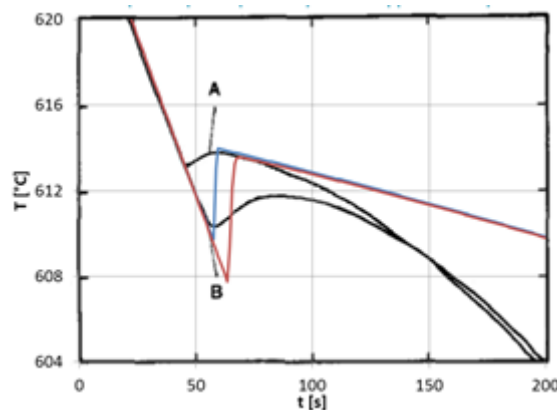


Figure 1- 15 : Comparaison de l'évolution de la température obtenue par l'expérience (T. P. Rappaz M. 1987) (en noir) et par le modèle SOLID (en couleur) pour l'alliage Al-7wt.%Si, refroidi à  $dT/dt=-0.3\text{K/s}$ , pour deux tailles finales de grain : A-1mm (en bleu) et B-3mm (en rouge) (toutes les particules sont activées au liquidus).

On constate donc que le modèle de croissance à deux phases actuellement utilisé dans SOLID ne permet pas d'estimer correctement la recalescence, même pour un cas en diffusion pure. Le modèle à 2 phases semble insuffisant pour prédire correctement la croissance dans le cas de structures dendritiques. Afin de définir des pistes pour améliorer le modèle de croissance, nous allons présenter des modèles proposant des améliorations en termes de phases modélisées, d'estimation des longueurs de diffusion et d'estimation des surfaces spécifiques.

#### 1.2.4.2. Modèle de croissance à trois phases

##### ○ Principe du modèle à trois phases

C'est dans l'objectif d'améliorer la prédiction de la croissance à l'échelle du grain qu'un modèle à trois phases a été développé dès les années 80 par M. Rappaz et Ph. Thévoz (T. P. Rappaz M. 1987). Le système composé d'un grain et du liquide qui l'entoure est supposé sphérique, fermé et isotherme. Les auteurs considèrent que le grain étant dendritique, la fraction solide ne correspond pas à la fraction de grain. Ils introduisent le concept d'enveloppe de grain, supposée de forme sphérique et circonscrite aux pointes primaires de la dendrite. La fraction de liquide intragranulaire correspond à la part du liquide comprise dans l'enveloppe. La surface spécifique d'enveloppe est déterminée en supposant les enveloppes sphériques. La même hypothèse est faite sur la phase solide pour déterminer sa surface spécifique.

La grande différence concerne le modèle de diffusion: la diffusion est nulle dans le solide, parfaite dans le liquide intragranulaire et limitée dans le liquide extragranulaire. Le profil de soluté est donné Figure 1- 16. La croissance de la phase solide, fonction de la sursaturation devant le grain, est donc désormais dépendante de la fraction d'enveloppe. Le système à résoudre est composé de l'équation de diffusion dans le liquide extragranulaire, la conservation du soluté dans le système fermé, l'équation de la chaleur associée à la fraction solide et la cinétique de croissance des grains, en ne considérant que la surfusion solutale et en supposant la pointe hémisphérique. Ce système permet de déterminer simultanément les fractions volumiques de solide et de grain (enveloppe) ainsi que la concentration à l'interface solide/liquide.

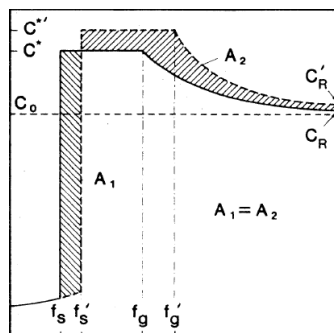


Figure 1- 16 : Profil de concentration en soluté à  $t$  et  $t+dt$  d'après le modèle de M.Rappaz et Ph.Thevoz (T. P. Rappaz M. 1987).

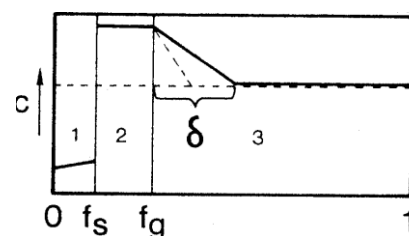


Figure 1- 17 : Profil schématique de concentration en soluté d'après le modèle simplifié de M. Rappaz et Ph. Thévoz (T. P. Rappaz M. 1987).

Dans la version simplifiée de ce modèle (T. P. Rappaz M. 1987), le bilan à l'interface liquide intragranulaire /liquide extragranulaire est simplifié et une distance de diffusion est fixée dans le liquide extragranulaire telle que le profil de concentration est modélisé comme représenté Figure 1- 17. Mais la concentration loin du grain est alors fixée à  $C_0$ , ce qui empêche de modéliser une éventuelle macroségrégation. Afin de valider ce modèle analytique, les résultats de ces deux modèles sont comparés dans le cas de la solidification d'un alliage Al-5wt.%Si. La germination est supposée instantanée au liquidus, le flux d'extraction de chaleur est constant et trois densités de germes sont testées. On constate que les courbes de recalescence sont identiques, validant ainsi le modèle simplifié.

Ce modèle à trois phases permet de prédire l'évolution de la température relativement précisément. La comparaison des courbes de refroidissement obtenues par l'expérience et par le modèle dans le cas de la solidification de l'alliage Al-7wt.%Si sont en effet proches (T. P. Rappaz M. 1987). L'alliage est refroidi à  $dT/dt = -0,3K/s$  avec ou sans affinant et la taille finale de grain mesurée est ensuite utilisée dans le modèle. La recalescence est relativement bien estimée, même si le choix du modèle de croissance de pointe a un impact important. Si le modèle de pointe hémisphérique permet d'estimer précisément la recalescence dans le cas de l'alliage affiné, la vitesse de pointe doit être divisée par 9 pour l'estimer correctement dans le cas de l'alliage non affiné.

#### ○ *Amélioration du modèle*

C.Y. Wang et C. Beckermann ont repris ce modèle en améliorant l'estimation de la longueur de diffusion dans le liquide extragranulaire (B. C. Wang C.Y. 1993) (B. C. Wang C.Y. 1993). Ils supposent un régime quasi-permanent dans le repère fixé à l'interface enveloppe/liquide et ils prennent en compte l'influence du mouvement de l'interface enveloppe/liquide extragranulaire. La morphologie des grains est prise en compte à travers un facteur de forme d'enveloppe dans l'expression des concentrations surfaciques interfaciales. Il correspond au rapport entre l'aire équivalente et l'aire réelle d'interface. Les pointes de dendrites sont supposées paraboloidales.

Comparant leurs résultats avec ceux obtenus par Rappaz et Thevoz, ils constatent que les résultats en termes d'évolution de la température sont très proches lorsque la vitesse de pointe utilisée est la même (pointes hémisphériques) et que les facteurs de forme sont gardés à 1.

Une étude paramétrique portant sur la forme d'enveloppe et le modèle de croissance de pointe a permis de mettre en évidence l'effet prédominant du modèle de croissance de pointe sur l'estimation de la recalescence (B. C. Wang C.Y. 1993). Depuis, de nombreux travaux ont été effectués afin d'améliorer ce modèle. C.Y. Wang et C. Beckermann ont par exemple cherché à prendre en compte le transport des grains (B. C. Wang C.Y. 1996). Une partie du liquide passe entre les dendrites et l'autre partie est déviée et contourne les grains. Pour cela, un tenseur de répartition de l'écoulement est introduit, définissant le rapport du flux massique liquide passant à travers les dendrites sur le flux massique liquide total (une expression est proposée dans (A. S. Wang C.Y. 1995)). L'influence de la vitesse d'interface est



alors négligée car la convection est supposée avoir un effet prédominant sur les transferts solutaux.

Le modèle défini par Appolaire et al. dans (C. H. Appolaire B. 2008) en 2008 reste dans la même lignée. La forme d'enveloppe est cette fois supposée octaédrique. La phase solide est considérée sphérique lorsque la croissance est globulaire et cylindrique sinon. La surface spécifique de cette phase est donc obtenue à partir d'une interpolation entre ces deux cas extrêmes. La convection est prise en compte en faisant l'hypothèse du régime de Stokes, la sursaturation dépend donc de la vitesse de croissance du grain et de la vitesse relative du grain par rapport au liquide. La distance de diffusion dans le solide est obtenue par la méthode de collocation et la distance de diffusion dans le liquide extragranulaire dépend de l'impact relatif de la convection et de la diffusion.

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta_l = \frac{D_l}{v_g} \text{ si } \frac{d_e}{Sh} \gg \frac{D_l}{v_g} \\ \delta_l = \frac{d_e}{Sh} \text{ si } \frac{d_e}{Sh} \ll \frac{D_l}{v_g} \end{array} \right. \quad (1.29)$$

avec  $d_e$  le diamètre équivalent du grain et  $Sh = 2 + 0.6Sc^{1/3} Re^{1/2}$  ou  $Sc$  est le nombre de Schmidt et  $Re$  le nombre de Reynolds.

Le modèle de Wu et Ludwig prend également en compte la convection et le mouvement des grains (L. A. Wu M. 2009). Le modèle de diffusion est plus complexe puisque la diffusion limitée est prise en compte dans les trois phases. Ce modèle est le premier des modèles présentés ici prenant en compte une cinétique de germination. L'activation n'est en effet plus instantanée mais suit une loi normale.

Il est également à noter que si trois phases thermodynamiques sont considérées, seules 2 phases sont prises en compte dans la partie hydrodynamique : la vitesse des phases solide et liquide extragranulaire est la même. Les auteurs ne comparent pas les résultats de leur modèle à ceux obtenus par Rappaz et al. (T. P. Rappaz M. 1987) et par Wang et al. (B. C. Wang C.Y. 1993) mais montrent de la même façon l'impact de la densité de germes sur la recalescence (L. A. Wu M. 2009).

Les caractéristiques principales des modèles présentés ici sont rappelées dans les Tableau 1- 1 et Tableau 1- 2.

Tableau 1- 1 : Longueurs de diffusion utilisées dans les 5 modèles présentés, pour les trois phases.

référence	Solide	Liquide intragranulaire	Liquide extragranulaire
Rappaz et Thevoz (T. P. Rappaz M. 1987)	Pas de diffusion	Diffusion parfaite	Calcul exact ou $\delta_l = \frac{2D_l}{v_g}$
Wang et Beckermann (B. C. Wang C.Y. 1993) et (B. C. Wang C.Y. 1996)	profil parabolique $\delta_s = \frac{d_s}{6}$	Diffusion parfaite	$\delta_l = \frac{R_f}{Pe} \left( 1 - \frac{3}{g_l} \exp[-Pe(1-g_l)^{1/3}] \int_{(1-g_l)^{1/3}}^1 x^2 \exp\left[\frac{Pe(1-g_l)^{2/3}}{x}\right] dx \right)$ Ou $\delta_l = \frac{d_e}{2 + 0.865 \frac{C_\varepsilon}{g_l} \left( \frac{g_l  \vec{v}_l - \vec{v}_s  d_e}{D_l} \right)^{1/3}}$ avec convection
Appolaire et al. (C. H. Appolaire B. 2008)	Méthode de collocation : profil parabolique avec n=1 si globulaire, n=2 si dendritique	Diffusion parfaite	$\begin{cases} \delta_l = \frac{D_l}{v_g} \text{ si } \frac{d_e}{Sh} \gg \frac{D_l}{v_g} \\ \delta_l = \frac{d_e}{Sh} \text{ si } \frac{d_e}{Sh} \ll \frac{D_l}{v_g} \end{cases} \text{ avec } Sh = 2 + 0.6Sc^{1/3} Re^{1/2}$ Prise en compte de la convection
Wu et Ludwig (L. A. Wu M. 2009)	$\delta_s = \frac{(1-g_l)d_s}{2}$	$\delta_d = \beta \frac{(1-g_l-g_s)d_s}{2g_s}$	$\delta_l = \frac{D_l}{v_g} = \frac{D_l}{\max(v_{env}, v_{glob})}$ avec $v_{glob} = \frac{D_l}{r_g} \frac{C_l^* - C_l}{C_l^*(1-k)}$
Modèle SOLID	$\delta_s = \frac{d_s}{10}$	Pas de liquide intragranulaire	$\delta_l = \frac{d_e/2}{\frac{1}{1-(1-g_l)^{1/3}} + \frac{Sc^{1/3} Re^a}{3g_l}} \text{ avec } a = \frac{2Re^{0.28} + 4.65}{3(Re^{0.28} + 4.65)}$

Tableau 1- 2 : Surfaces spécifiques de la phase solide et de l'enveloppe utilisées dans les 5 modèles présentés.

référence	Surface spécifique de la phase solide	Surface spécifique du grain
Rappaz et Thevoz (T. P. Rappaz M. 1987)	Sphère de diamètre $d_s$ : $S_s = \frac{6g_s}{d_s}$	Sphère de diamètre $d_g$ : $S_{env} = \frac{6(1-g_l)}{d_g}$
Wang et Beckermann (B. C. Wang C.Y. 1993) (B. C. Wang C.Y. 1996)	Geométrie 1D plane : $S_s = \frac{2g_s}{(1-g_l)d_s}$	Facteur de forme : $S_{env} = \frac{1}{\phi_{env}} \frac{6(1-g_l)}{d_g}$
Appolaire et al. (C. H. Appolaire B. 2008)	Interpolation sphère/cylindre : $S_s = (1-g_l) \left[ g_i^{10} \frac{3\sqrt{3}}{L} + \frac{4\sqrt{g_i}}{\lambda_2} (1-g_i^{10}) \right]$ avec $g_i = \frac{g_s}{g_{env}}$	Octaèdre d'arrête $\sqrt{2}L$ : $S_{env} = \frac{3\sqrt{3}(1-g_l)}{L}$
Wu et Ludwig (L. A. Wu M. 2009)	Geométrie 1D plane : $S_s = \frac{2g_s}{(1-g_l)d_s}$	Sphère de diamètre $d_g$ : $S_{env} = \frac{6(1-g_l)}{d_g}$
Modèle SOLID	Sphère de diamètre $d_s$ : $S_s = \frac{6g_s}{d_s}$	Octaèdre d'arrête $\sqrt{2}L$ : $S_{env} = \frac{3\sqrt{3}(1-g_l)}{L}$

### 1.3. Compétition germination/croissance

#### 1.3.1. Phénomène de compétition germination/croissance

On a vu dans les paragraphes précédents que la croissance d'un grain induit un gradient thermique et solutal devant l'interface côté liquide, qui se traduit par une surfusion. Or la surfusion est le paramètre clé pour la germination athermique. On comprend donc comment les deux phénomènes sont liés.

Plus précisément, lorsque la température diminue, la surfusion augmente (en valeur absolue) et l'on active les particules affinantes de plus en plus petites. Mais ces particules, une fois activées, croissent en libérant de la chaleur. Le refroidissement est donc ralenti puis s'arrête lorsque la chaleur dégagée par la croissance des grains compense exactement l'extraction de chaleur locale. La germination est alors terminée. Puis la température peut remonter alors même que l'on continue d'extraire de la chaleur, c'est le phénomène de recalescence. Le second terme de l'équation (1.30) devient donc positif alors que le premier terme reste négatif :

$$\frac{dh}{dt} = C_p \frac{dT}{dt} - L_f \frac{dg_s}{dt} \quad (1.30)$$

Ces phénomènes sont illustrés Figure 1- 18:

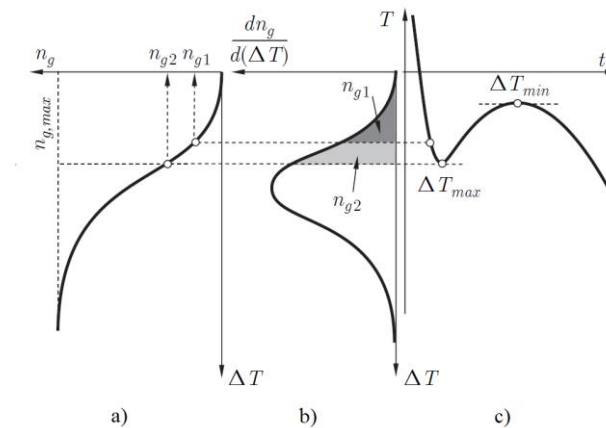


Figure 1- 18 : Modèle de germination basé sur l'hypothèse de la croissance libre comme étape limitante a) densité de grains en fonction de la surfusion maximale atteinte, b) distribution de la densité de germes en fonction de leur surfusion d'activation et c) la courbe de refroidissement – issu de (Dantzig J.A. 2009).

L'idée centrale de la compétition germination/croissance est la suivante : la croissance des grains préexistants impacte la surfusion et donc l'activation des grains suivants. Les deux phénomènes sont donc intimement liés.

### 1.3.2. Impact des paramètres du procédé sur la compétition germination/croissance

#### 1.3.2.1. Taux d'affinage

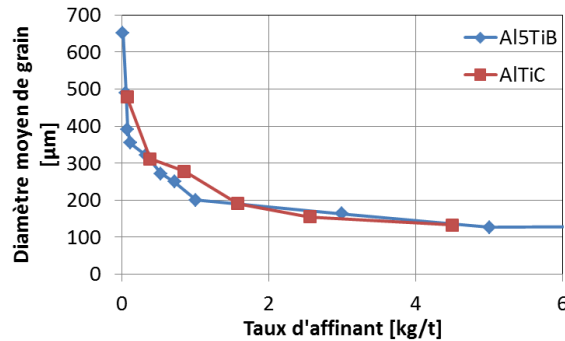


Figure 1- 19 : Impact du taux d'affinants ajouté dans le métal (aluminium de pureté commerciale) sur le diamètre moyen de grain pour un test de type TP-1, pour un affinant Al-5Ti-1B et Al-3Ti-0.15C - données issues de (B. A. Greer A.L. 2000) et (V. M. Tronche A. 2002)

Greer et al. ont étudié l'influence du taux d'affinage sur la taille de grains en utilisant la procédure de test définie dans (B. A. Greer A.L. 2000). L'affinant de type Al-5Ti-1B a été ajouté à différentes concentrations dans l'aluminium liquide pur à plus de 99,7%. Les résultats de cette expérience sont donnés dans (B. A. Greer A.L. 2000) et l'impact du taux d'affinants sur la taille de grains est illustré Figure 1- 19. La tendance est bien celle attendue, à savoir que l'ajout d'affinants est très efficace dès de faibles taux d'affinage. Puis au-delà de 2kg/t, les grains atteignent une taille limite. Dans (V. M. Tronche A. 2002), Tronche et al. ont effectué le même travail en considérant l'affinant Al-3Ti-0,15C. On constate que la tendance est la même, et dans ce cas (aluminium de pureté commerciale), les résultats sont même presque identiques. Cependant, pour un taux d'affinant inférieur à 2kg/t, l'affinant Al-5Ti-1B est plus efficace.

#### 1.3.2.2. Type d'affinant

Schneider et al. ont testé l'impact de la composition et du taux d'affinants sur la taille moyenne des grains dans le cas de la coulée continue d'aluminium sous forme de billettes de 205 mm de diamètre, pour deux alliages : AA1050 et AA6063 (Schneider W.A. 2003). Différentes proportions de titane et de bore ont été utilisées dans l'affinant. L'évolution de la taille moyenne de grain en fonction du taux d'affinant est donnée pour trois proportions de Ti-B Figure 1- 20-a. La Figure 1- 20-b représente la distribution en taille des 3 affinants utilisés.

On constate que l'impact du taux d'affinant sur la taille des structures est le même quelles que soient les proportions de Ti et de B : la structure est affinée lorsque le taux d'affinants augmente, et au-dessus d'un certain taux d'affinage, la taille moyenne des grains tend à se stabiliser, ce qui est cohérent avec les résultats présentés dans le paragraphe précédent. Mais surtout, cette étude montre que les proportions de Ti et de B modifient de façon non négligeable la germination. Le Al-1,2Ti-0,5B est un affinant plus efficace que le Al-5Ti-1B, ce qui peut être corrélé à la distribution en taille de ces deux affinants. Le premier

comporte une plus grande proportion de particules de grande taille. Cette étude montre également que la distribution en taille d'un affinant est très sensible à la composition en titane et en bore.

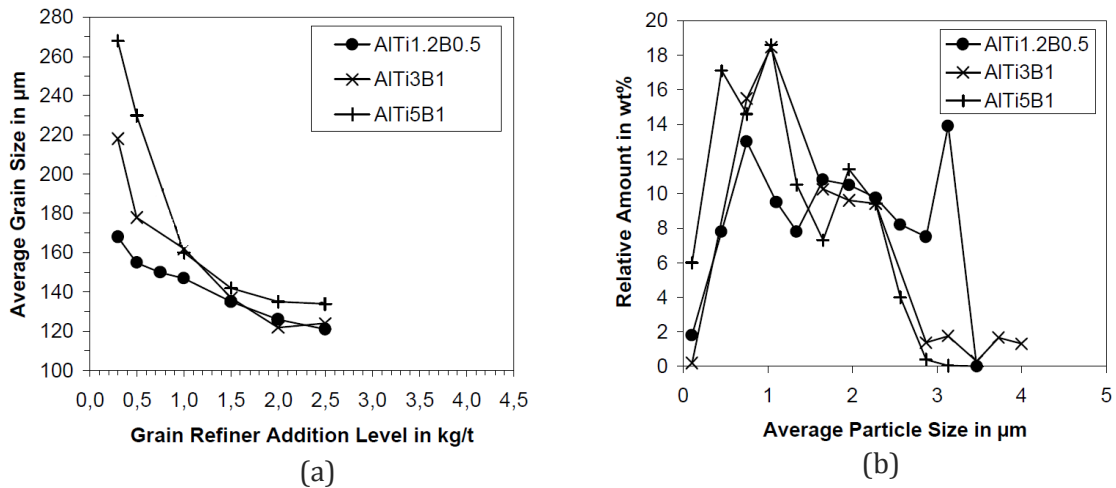


Figure 1- 20 : (a) influence de différents types d'affinants et de leur concentration dans un alliage de type AA6063 sur le diamètre moyen de grain et (b) distribution en taille des 3 affinants testés – issu de (Schneider W.A. 2003).

### 1.3.2.3. Restriction de croissance

La restriction de croissance est quantifiée par le paramètre  $Q$ , défini par  $Q=m(k-1)C_0$  avec  $m$  la pente du liquidus,  $k$  le coefficient de partage et  $C_0$  la concentration nominale en soluté (dans le cas d'un alliage binaire). Spittle et Sadli ont étudié l'effet de ce paramètre sur la taille de grain, par des tests de type TP-1, avec ou sans affinant (Spittle J.A. 1995). Pour cela, plusieurs éléments d'alliage ont été considérés dans leur plage de concentration (couramment utilisée dans l'industrie), et 10kg/t de l'affinant Al-5Ti-1B a été ajouté dans les tests avec affinant. Les résultats sont donnés Figure 1- 21.

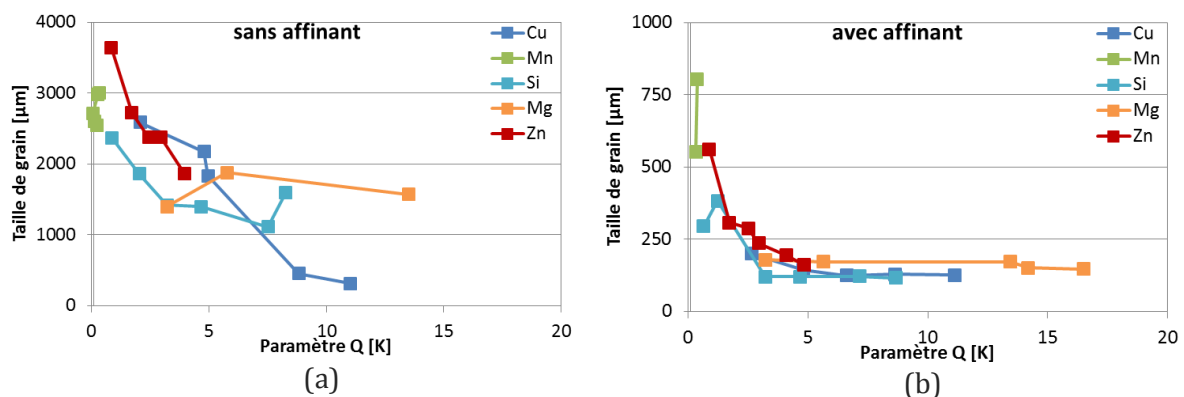


Figure 1- 21 : Taille de grain en μm en fonction du paramètre Q, pour différents solutés, a) sans et b) avec affinage par 10kg/t de Al-5Ti-1B – données issues de (Spittle J.A. 1995).

On remarque qu'avec ou sans affinant, l'impact du coefficient de restriction de croissance est le même : lorsqu'il augmente, la taille moyenne des grains diminue. L'explication qu'en donnent les auteurs est la suivante : lorsque la restriction de croissance augmente, la surfusion devient plus forte donc plus de germes sont activés, affinant la taille

finale moyenne des grains (modèle de germination hétérogène athermique). Mais l'ajout d'affinant a un impact supplémentaire. La taille de grain est non seulement réduite mais elle devient plus facilement prédictible. Elle ne dépend plus de l'alliage mais seulement du paramètre  $Q$ . De plus, on observe un plateau qui n'existait pas dans le cas des alliages non affinés. Lorsque  $Q$  devient plus grand que 5, la taille de grain pour le cas étudié atteint un minimum autour de 120 microns.

#### 1.3.2.4. Vitesse de refroidissement

Enfin, l'impact de la vitesse de refroidissement sur la taille des grains a été étudié par Greer et al. dans (B. A. Greer A.L. 2000). L'effet de la vitesse de refroidissement sur le diamètre final de grain est donné Figure 1- 22. Comme attendu, lorsque la vitesse de refroidissement augmente, l'écart à l'équilibre est plus important, donc la surfusion également. Plus de particules affinantes sont alors activées et le diamètre moyen de grain diminue. Dans les conditions habituelles de solidification de l'aluminium, la vitesse de solidification étant de quelques degrés par seconde, la taille de grain est très sensible à la vitesse de refroidissement (B. A. Greer A.L. 2000).

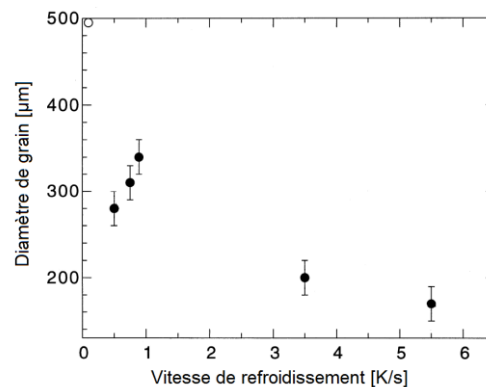


Figure 1- 22 : Impact de la vitesse de refroidissement sur le diamètre moyen de grain pour un test de type TP-1, pour de l'aluminium de pureté commerciale et pour un affinant Al-5Ti-1B - données issues de (B. A. Greer A.L. 2000).

### 1.4. Hétérogénéités à l'échelle microscopique

Après avoir vu les phénomènes microscopiques liés à la solidification, voyons en quoi ils induisent des hétérogénéités à l'échelle microscopique.

Nous avons vu lors de l'écriture des bilans de chaleur et de soluté à l'interface que la croissance de la phase solide est due à un écart à l'équilibre, qui se traduit par des gradients en température et en soluté. On peut voir un profil de composition typique dans le cas simplifié d'un grain globulaire Figure 1- 23.

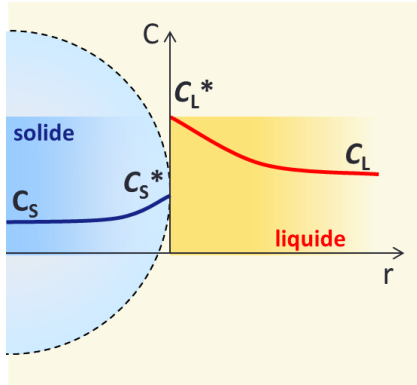


Figure 1- 23 : Représentation schématique de la distribution en composition en soluté dans un grain en croissance et dans le liquide qui l'entoure.

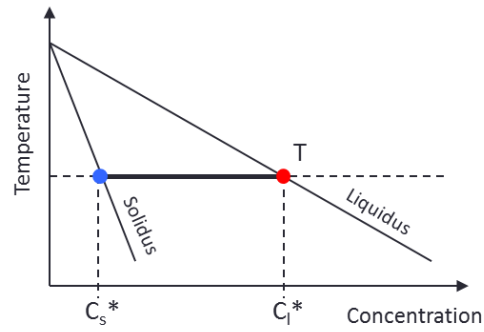


Figure 1- 24 : Représentation schématique d'un diagramme de phase dans le cas d'un alliage binaire – compositions de la phase solide et de la phase liquide à l'interface à une température donnée.

La différence de composition entre le solide et le liquide qui l'entoure est en premier lieu due à la différence de solubilité du soluté entre les deux phases. Le soluté, en général moins soluble dans le solide, est rejeté à l'interface au cours de la solidification. Cette différence de composition à l'interface est illustrée Figure 1- 24. Le coefficient de partage  $k$  indique cette différence de solubilité par la relation :

$$C_s^* = kC_l^* \quad (1.31)$$

Au sein de chaque phase, on observe également un gradient de soluté. Celui-ci est dû à la diffusion limitée du soluté. Lorsqu'il est rejeté dans la phase liquide, il ne se répartit pas instantanément dans toute la phase liquide, induisant un gradient négatif. De même dans la phase solide, chaque nouveau solide formé est plus riche que le précédent puisque le liquide s'enrichit, ce qui induit un gradient positif. A l'échelle du grain, on observe donc déjà des hétérogénéités de composition.

Un exemple de microségrégation est obtenu expérimentalement dans le cas d'une billette de 200mm de diamètre de l'alliage 2024 coulée sans affinant à 80mm/min (Eskin D.G. 2008). Le profil de composition en cuivre et en magnésium est donné Figure 1- 25.

La surfusion locale est fortement liée à la composition en soluté, qui varie à l'échelle du grain. La surfusion n'est donc pas homogène à l'échelle du grain, et il est plus favorable pour les germes de s'activer loin des grains préexistants. De plus, la distance à laquelle un germe peut s'activer dépend de sa taille puisque la surfusion diminue avec la distance au grain. St John et al. ont pris en compte ces critères pour la germination dans leur théorie de l'interdépendance (St John D.H. 2011). La formation des structures est donc liée à la fois aux hétérogénéités de composition et à la distribution locale des germes.



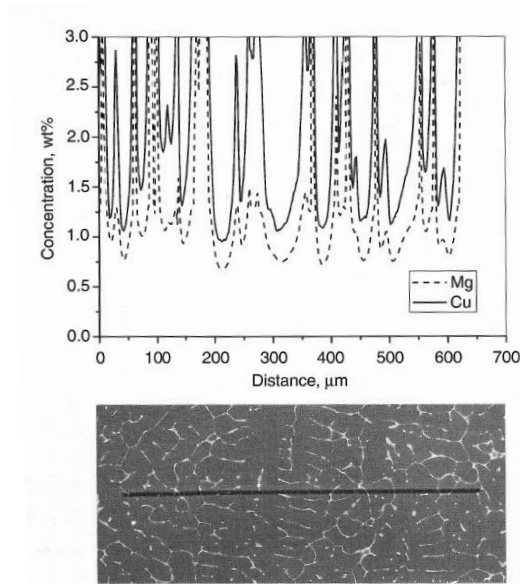


Figure 1- 25 : Microségrégation mesurée sur 700µm sur un échantillon prélevé au centre d'une billette de 200mm de diamètre coulée à 80mm/min pour un alliage de type 2024 – issu de (Eskin D.G. 2008).

## 1.5. Conclusion

Nous avons donc rappelé dans cette première partie les principes de la germination et de la croissance des grains, afin de justifier les modèles développés pour modéliser ces phénomènes. Ainsi, la germination est communément considérée comme hétérogène et athermique et la distribution en taille des germes est le paramètre primordial. Or ce paramètre est délicat à estimer, du fait des phénomènes d'empoisonnement, de sédimentation, d'agglomération, de fragmentation, de dissolution ou de convection. La modélisation de la croissance, quant à elle, nécessite d'estimer correctement la morphologie des grains ainsi que le moteur de la croissance, c'est-à-dire la surfusion devant le grain. Les principaux modèles permettant de modéliser de façon simplifiée ce phénomène, et pouvant donc être implémentés dans les modèles macroscopiques de solidification, ont été présentés.

L'amélioration de la prise en compte de ces deux phénomènes que sont la germination et la croissance ainsi que leurs interactions doit permettre de mieux prédire les hétérogénéités de composition et de structure à l'échelle microscopique. Nous allons voir dans la partie suivante comment ces hétérogénéités sont ensuite retrouvées à l'échelle macroscopique.

## 2. Phénomènes macroscopiques à l'origine des hétérogénéités de structure et de composition

### 2.1. Hétérogénéités macroscopiques de composition

On retrouve les hétérogénéités de composition microscopiques à l'échelle du produit, du fait du mouvement relatif des phases solide et liquide. En effet sans mouvement relatif, la redistribution locale du soluté a un impact négligeable sur la composition moyenne.

### 2.1.1. Origine

Ce mouvement relatif a plusieurs origines, schématisé Figure 1- 26:

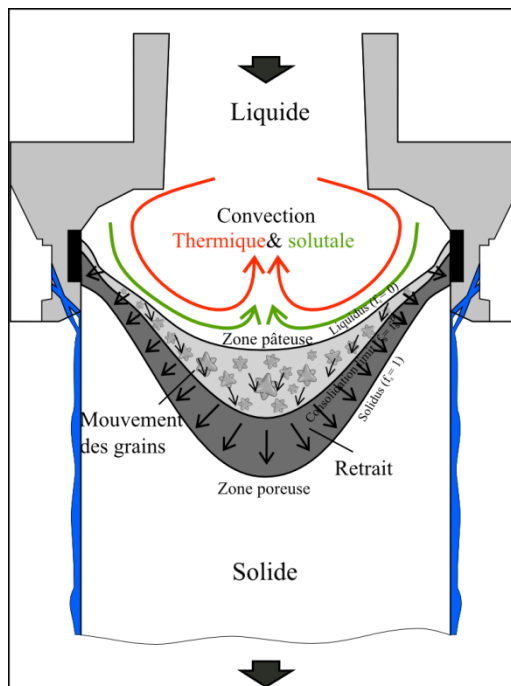


Figure 1- 26 : Phénomènes de transport à l'origine des macroségrégations en coulée semi-continue – tiré de (Založnik M. 2006).

- *La convection forcée*  
L'écoulement peut être volontairement modifié par un mélangeur magnétique ou mécanique.
- *La convection thermo-solutale*  
La masse volumique de la phase liquide dépend de sa composition en soluté et de sa température : 
$$\rho = \rho_0 \left( 1 + \beta_T (T - T_{ref}) + \sum_i \beta_{Ci} (C_i - C_{i,ref}) \right)$$
(d'après le modèle de Boussinesq). En général, elle augmente avec le refroidissement et l'enrichissement en soluté (du fait de la densité supérieure du soluté par rapport à celle de l'aluminium). Le liquide près du moule est refroidi par les côtés et enrichi du fait de la solidification. Il est donc plus dense et est entraîné vers le centre du produit. Ces différences de densité dans le bain liquide et dans le marais induisent donc un mouvement de convection qui tend à enrichir le centre et à appauvrir la zone extérieure du produit.
- *Le retrait*  
La densité de la phase solide est en général plus élevée que celle du liquide, donc le changement de volume lié à la solidification induit un appel du liquide vers les zones de forte fraction solide. Cet appel se fait approximativement orthogonalement aux iso-fractions solides, donc du centre

vers les parois du produit. Le liquide riche en soluté se déplace vers l'extérieur, menant à une zone plus riche près des parois et une zone plus pauvre au centre. L'effet est donc inverse par rapport à celui de la convection thermo-solutale.

- *La déformation du squelette solide*

Si la différence de densité entre les phases solide et liquide induit un appel du liquide, elle peut également impacter la phase solide. Le solide peut en effet se rétracter, modifiant ainsi la section du produit. Le liquide intragranulaire riche en soluté est alors expulsé vers le centre et l'effet du retrait peut être atténué. Dans le cadre de la coulée semi-continue d'aluminium, on néglige souvent ce phénomène.

- *Le mouvement des grains*

Les grains étant plus denses que le liquide qui les entoure, ils ont tendance à sédimenter vers le fond du marais, induisant une ségrégation négative au centre et positive près des parois.

### 2.1.2. Profil type de macroségrégation

Nous verrons plus tard que les paramètres de coulée ont un impact important sur les macroségrégations mais voici Figure 1- 27 un profil typique de macroségrégation :

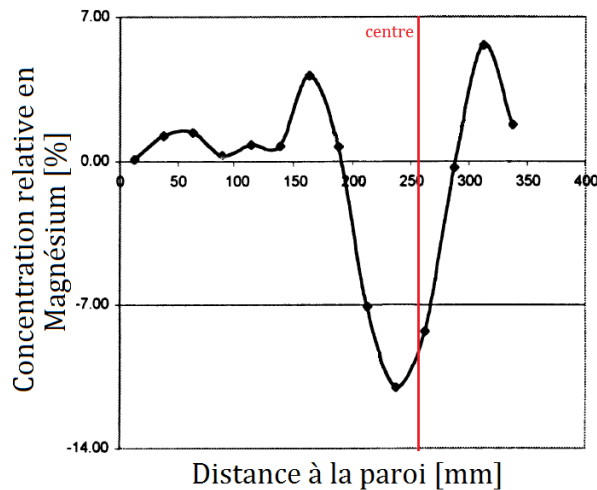


Figure 1- 27 : Profil de ségrégation relative en fonction de la distance à la paroi du produit, pour une plaque de 550mm d'épaisseur d'un alliage 5182, affiné par du TiB2 et coulé à 60mm/min (A. V. Lesoult G. 2001).

La composition en soluté au centre est inférieure à la composition nominale, la ségrégation est donc négative. Dans la région intermédiaire entre le centre et la peau du produit, elle devient positive et elle diminue à nouveau vers la paroi. Si l'effet de chaque phénomène de transport sur la macroségrégation est connu, leur couplage reste mal connu et la prédiction des macroségrégations délicate. Une analyse des résultats expérimentaux et

numériques concernant la ségrégation centrale de billettes faite par Eskin et al. montre que celle-ci peut être positive ou négative selon les paramètres de coulée (D. Q. Eskin D.G. 2008).

### 2.1.3. Impact des paramètres de coulée sur les macroségrégations

Afin de mieux comprendre l'origine des macroségrégations, voyons l'impact des différents paramètres de la solidification sur celles-ci.

#### 2.1.3.1. Vitesse de coulée

Eskin et al. ont testé l'impact de la vitesse de coulée sur le profil de macroségrégation dans des billettes non affinées de 200 mm de diamètre pour l'alliage Al-4,31%Cu-0,11%Si-0,22%Fe (Z. J. Eskin D.G. 2004). Les trois vitesses de coulée testées sont: 120, 160 et 200 mm/min. Les auteurs concluent que l'augmentation de la vitesse de coulée mène à une amplification des macroségrégations. Plus précisément, ils relient l'intensité des macroségrégations à la profondeur de la zone pâteuse, qu'ils mesurent par une tige d'acier reliée à un mètre numérique. Par cette méthode ils considèrent qu'ils mesurent la profondeur du solidus, mais ne peuvent pourtant pas en déduire la profondeur de la zone pâteuse. Leur explication est la suivante : le transport des phases solide et liquide est amplifié lorsque la région pâteuse augmente, ce qui tend à amplifier les ségrégations. Cependant, ils ne concluent pas sur l'importance relative des phénomènes de convection naturelle d'un côté et de retrait et de mouvement des grains de l'autre. Le premier tend à enrichir le centre du produit en soluté lorsque les deux suivants ont l'effet inverse. Il n'est donc pas évident que l'amplification des phénomènes de transport conduise à l'amplification des ségrégations.

#### 2.1.3.2. Géométrie du produit

Livanov et al. ont étudié la macroségrégation dans le cas d'un alliage 2024 pour une large gamme de diamètre de billette : de 50 à 470 mm (Livanov V.A. 1977). Ils ont également fait varier la vitesse de coulée de 30 à 350 mm/min. Les résultats expérimentaux ont montré que lorsque la vitesse de coulée ou le diamètre augmentent suffisamment, la ségrégation centrale devient négative. Plus précisément, ils ont proposé un critère permettant de déterminer le signe de la ségrégation centrale d'après la valeur du paramètre  $v_f d$  pour des billettes de diamètre  $d$ . Lorsque la valeur du paramètre dépasse environ 12000, la ségrégation centrale devient négative. Eskin relie cet effet à la forme du marais (Eskin D.G. 2008) : les dimensions du marais étant fonction à la fois de la vitesse de coulée et des dimensions du produit, lorsque le diamètre du produit ou la vitesse de coulée augmentent, le marais devient plus profond et la concentration relative à cœur diminue.

#### 2.1.3.3. Refroidissement

Le refroidissement latéral par ruissellement d'eau est défini par la température de l'eau et son débit. Eskin et al. ont testé l'impact du débit d'eau de refroidissement sur le profil de macroségrégation dans des billettes non affinées de 200mm de diamètre pour l'alliage Al-4,31%Cu-0,11%Si-0,22%Fe (Z. J. Eskin D.G. 2004). Les auteurs constatent que l'effet du débit d'eau est amplifié avec l'augmentation de la vitesse de coulée, mais pour les deux vitesses de

coulée testées (120 mm/min et 180 mm/min), les ségrégations ont tendance à s'amplifier à cœur et à s'atténuer près de la peau lorsque le débit d'eau augmente (de 150 L/min à 250 L/min). Les auteurs relient cet effet à la modification de la forme et de la profondeur de la zone pâteuse sans rentrer plus dans les détails. L'effet du débit d'eau de refroidissement sur la formation des macroségrégations semble toutefois moins important que celui de la vitesse de coulée ou de la géométrie du lingot.

#### 2.1.3.4. Nature des éléments d'alliage

De par leurs différences en termes de coefficient de partage et de diffusivité dans les phases solide et liquide, les profils de ségrégation ne sont pas identiques pour les différents éléments d'alliage lors d'une même coulée. Nadella et al. ont mesuré la composition de trois éléments pour un alliage 2024 affiné par du  $TiB_2$  dans une billette de 200 mm de diamètre, coulée à une vitesse de 120 mm/min (E. D. Nadella R. 2008). Dans le cas étudié, la ségrégation centrale en titane est positive alors qu'elle est négative pour le fer (Figure 1- 28). En effet, le coefficient de partage est supérieur à 1 donc si les grains sont appauvris en fer, ils sont enrichis en titane au cours de la solidification.

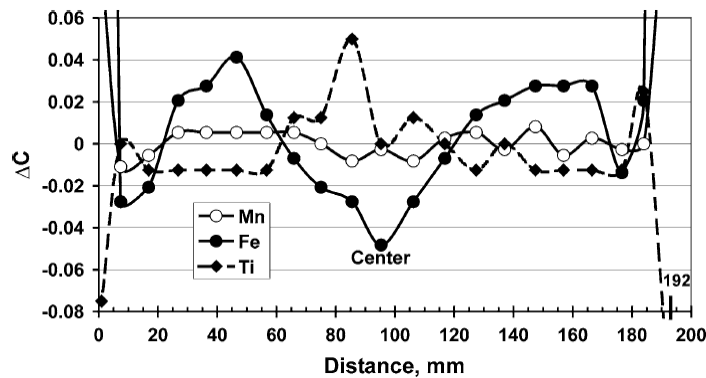


Figure 1- 28 : Alliage 2024, vitesse de coulée 120 mm/min, Profil de ségrégation des éléments Mn, Fe et Ti ( $\Delta C(Ti)$  divisé par 10) – (E. D. Nadella R. 2008)

#### 2.1.3.5. Alimentation en métal liquide

Le mode d'alimentation du métal liquide a un impact important sur la formation des macroségrégations. Un sac de distribution appelé combo-bag est souvent utilisé dans l'industrie pour réduire les mouvements turbulents de fluide. Daloz et al. ont étudié l'impact de ce mode d'injection sur les macroségrégations (Daloz D. 2002). Pour cela, un alliage 5182 a été coulé sous forme de plaque de 550mm d'épaisseur à 60mm/min et le sac de distribution a été retiré après les deux premiers mètres de coulée. Ces expériences ont été menées sans affinants et avec (1kg/tonne de Al-5Ti-1B). Les résultats montrent que dans le cas d'une coulée sans affinants, la répartition en élément d'alliage est nettement plus homogène lorsque le diffuseur n'est pas utilisé. Cet écart s'estompe dans le cas d'une coulée avec affinants. Plus récemment, Zhang et al. ont testé l'impact de l'orientation de l'injection du métal liquide (Zhang L. 2012). Ils ont étudié un alliage 7050 affiné avec du Al-5Ti-1B, coulé en billettes de 315mm de diamètre à une vitesse de 50mm/min. Dans le premier cas, le liquide est injecté verticalement au centre de la billette, et dans le second cas, il est injecté semi-horizontalement dans quatre directions à partir d'un diviseur en forme de croix. Si la

ségrégation en peau est positive dans les deux cas, elle devient très fortement négative tout près de la surface dans le cas de l'alimentation verticale. Elle est également fortement négative à 40-50mm du centre, contrairement à l'alimentation semi-horizontale. Ces différences sont justifiées par les auteurs par la modification de la forme de la zone pâteuse, qu'ils déterminent numériquement. Lorsque l'injection est semi-horizontale, la pénétration de l'écoulement dans la zone pâteuse est plus importante près de la surface, déplaçant le liquide riche en soluté vers le centre. Le marais a une forme relativement plate et continue. Dans le cas de l'injection verticale, le marais est fortement « creusé » au centre et modifie le transport de soluté par convection naturelle mais également par le retrait et le mouvement des grains.

La température d'entrée du métal modifie également la distribution des macroségrégations. Eskin et al. ont étudié leur formation pour un alliage Al-2,8%Cu-0,15%Fe-0,09%Si dans le cas de billettes de 200mm de diamètre pour une vitesse de coulée de 100mm/min (S. V. Eskin D.G. 2005). La surchauffe initiale (différence entre la température initiale du métal et la température de liquidus) est testée entre 48°C et 107°C. On constate que la ségrégation n'est que très peu modifiée à cœur mais la concentration relative près de la peau est beaucoup plus élevée lorsque la surchauffe initiale augmente. D'après leur modélisation, ils concluent que la profondeur de la zone pâteuse est modifiée par l'augmentation de la surchauffe initiale principalement près des parois, tandis qu'elle n'est que peu modifiée au centre. D'après leur modèle, la vitesse de convection est également amplifiée près des parois. Les auteurs ayant corrélé la profondeur de la zone pâteuse à l'intensité des ségrégations dans un travail précédent (Z. J. Eskin D.G. 2004), ils expliquent l'effet de la surchauffe en termes d'intensité de la convection et de profondeur de la zone pâteuse.

#### 2.1.3.6. Convection forcée

Industriellement, un phénomène de convection est parfois imposé dans le but d'homogénéiser la concentration en solutés dans le produit, par agitation mécanique ou magnétique. Ce phénomène, appelé brassage, a été étudié dans le cas d'une billette de 195mm de diamètre coulée à 120mm/min pour un Al-3,7wt.%Cu (J. A. Eskin D.G. 2011). Une pompe est positionnée au centre du produit au niveau du moule et permet d'imposer une circulation vers le haut (dans le sens de la convection naturelle) ou vers le bas (sens contraire). Dans les deux cas, le régime n'est plus permanent : il y a respectivement enrichissement ou appauvrissement du bain liquide en soluté, d'où la non conservation du soluté sur une tranche horizontale. Ainsi, lorsque la convection naturelle est renforcée, les ségrégations deviennent plus négatives tandis que lorsque la convection forcée est inversée, les ségrégations sont atténuées, et même inversées lorsque le flux est plus important. D'après les auteurs, le changement d'écoulement dans la zone liquide et pâteuse et la forme induite du marais, qu'ils estiment numériquement, sont responsables de cette modification des profils. La convection forcée modifie grandement l'écoulement dans la zone pâteuse ainsi que sa géométrie. La macroségrégation peut ainsi être inversée, et surtout elle peut être considérablement réduite.

### 2.1.3.7. Affinage

L'effet de l'affinage sur la macroségrégation n'est pas toujours le même. D.Daloz et al. ont mesuré le profil de ségrégation sur l'épaisseur d'une plaque 1850x550 mm<sup>2</sup> de l'alliage 5182 coulée à 60mm/min sans et avec affinants (1kg/tonne de Al-5Ti-1B) (Daloz D. 2002). On constate que l'ajout d'affinant amplifie la ségrégation centrale négative. Cependant, les auteurs ne donnent pas d'explication précise de cet effet de l'affinage. Ils émettent seulement l'hypothèse qu'il est dû à une combinaison du transport des grains équiaxes et de la circulation du liquide intragranulaire.

Au contraire, des expériences réalisées par T.L. Finn et al. sur des billettes de 535mm de diamètre coulées à 38,1mm/min pour un alliage Al-4,5%wt.Cu affiné (Al-5Ti-0,2B) ou non révèlent que l'ajout d'affinants change le signe de la ségrégation centrale (Finn T.L. 1992). Celle-ci devient en effet positive lorsque des affinants sont ajoutés. Les auteurs affirment que l'effet de l'affinage sur la macroségrégation s'explique par l'effet de la morphologie des grains sur l'écoulement intragranulaire. La structure plus globulaire induite par l'affinage augmenterait la perméabilité de la zone pâteuse, et permettrait donc plus facilement le transport du liquide riche en soluté vers le centre. Vreeman et al. (Vreeman C.J. 2002) ont également étudié l'impact de l'affinage dans le cas d'une billette. Ils ont regardé la formation des ségrégations dans le cas d'un alliage Al-6wt.%Cu coulé dans une billette de 305mm de diamètre à 60mm/min, avec ou sans affinant (Al-3Ti-1B). Cette fois, au contraire, la ségrégation centrale positive devient négative lorsque l'affinant est ajouté.

L'impact de ce paramètre sur les macrosegregations n'est pas encore compris. Il semble que son impact diffère selon d'autres critères comme la vitesse de coulée ou même le type d'affinants utilisés. L'affinage a pour effet direct de modifier la taille des structures. L'impact de l'affinage sur la formation des macroségrégations met donc en évidence les interactions entre taille des microstructures et formation des ségrégations à l'échelle du produit. Ce couplage entre microstructures et macroségrégations a été étudié par H.Combeau et M. Založnik dans (Combeau H. 2009) et (C. H. Založnik M. 2009). La morphologie des grains, en impactant le mouvement des grains mais également le mouvement du liquide dans la zone poreuse, modifie la formation des macroségrégations.

Au vu de cette étude, il semble que le paramètre primordial pour la macrosegregation soit la géométrie du marais. Ainsi, la vitesse de coulée et le diamètre (ou l'épaisseur) du produit sont critiques. Relativement, le système de refroidissement a un impact faible. Nous avons donc pu étudier l'impact de différents paramètres du procédé sur les profils de macroségrégations. Voyons maintenant leur impact sur les structures de solidification.

## 2.2. Hétérogénéités macroscopiques de taille de structure

### 2.2.1. Origine

Nous avons vu dans la présentation des phénomènes microscopiques que la densité de germes activée était directement corrélée à la surfusion maximale atteinte. Or dans le cas de la coulée semi-continue, l'extraction de chaleur s'effectue par les côtés, le refroidissement est donc plus lent au centre du produit que près des parois. L'écart à l'équilibre est alors plus

faible et la densité de germes activés également. La différence de vitesse de refroidissement entre le centre et la paroi du lingot induit donc déjà des hétérogénéités de tailles de structures à l'échelle du produit : les grains tendent à être plus grands au centre et plus petits près des parois.

De plus, l'effet du mouvement des grains et des germes peut s'ajouter à l'effet du refroidissement. Les grains se déplacent relativement au liquide tant que la fraction de grain est suffisamment faible, ils peuvent donc quitter la zone de germination. De même, la zone de germination peut être alimentée en germes lorsque ces derniers se déplacent. La compétition entre germination et croissance est donc impactée par ces phénomènes de transport à l'échelle macroscopique.

### 2.2.2. Coupe type de structure à l'échelle macroscopique

Une coupe typique des structures à l'échelle macroscopique pour une billette est représentée Figure 1- 29. On constate que l'on retrouve expérimentalement l'effet attendu du refroidissement, à savoir que la microstructure est plus fine près des parois. Les phénomènes de transport peuvent modifier ces tendances, nous verrons comment et dans quelle mesure dans les chapitres suivants.



Figure 1- 29 : Evolution de la morphologie des grains du centre à la paroi du produit, pour une billette de 200mm de diamètre d'un alliage 7075 (E. D. Nadella R. 2008).

### 2.2.3. Impact des paramètres de coulée sur les hétérogénéités de taille des structures

#### 2.2.3.1. Vitesse de coulée

J.Dong et al. ont étudié la formation des microstructures dans le cas d'une billette de 100 mm de diamètre pour l'alliage 7075 en faisant varier plusieurs paramètres tels la température du métal liquide, la vitesse de coulée ou l'intensité du refroidissement (Dong J. 2003). L'alliage est affiné mais les auteurs n'ont pas précisé la nature et la quantité de l'affinant utilisé. Dans un premier temps, ils ont fait varier la vitesse de coulée de 50 à 300 mm/min en gardant tous les autres paramètres constants. La température de coulée étant proche du liquidus, les grains restent dans tous les cas globulaires (cf. §2.2.3.4), mais leur taille moyenne augmente avec la vitesse de coulée, passant de 30  $\mu\text{m}$  à 120  $\mu\text{m}$  à 55  $\mu\text{m}$  à 255 mm/min. Leur explication est la suivante : la diminution de la vitesse de coulée induit une diminution du refroidissement par le moule. Cependant, la tendance communément admise est que l'augmentation de la vitesse de refroidissement affine la structure. Les résultats de cette étude sont donc surprenants.

Dans l'expérience menée par D.G. Eskin et al. dans (S. V. Eskin D.G. 2005), au contraire, la taille moyenne des grains diminue lorsque la vitesse de coulée augmente. Ils ont étudié leur



formation pour un alliage Al-2,8%Cu-0,15%Fe-0,09%Si dans le cas de billettes de 200 mm de diamètre pour une vitesse de coulée de 100 mm/min. La structure équiaxe des grains est plus grossière au centre du produit, et ces hétérogénéités sont amplifiées avec la vitesse de coulée, mais la microstructure est globalement affinée. Il en est de même pour la distance interdendritique secondaire, appelée *DAS*. De plus, la vitesse de coulée a un impact sur les grains « grossiers », structures typiques de la coulée semi-continue. Caractérisés par un *DAS* plus important et des bras plus fins, ils tiennent leur différence de ce qu'ils sont transportés dans la zone pâteuse avant d'être bloqués. Les auteurs constatent qu'à faible température d'entrée du métal liquide (701°C), la fraction de ces grains « grossiers » diminue dans tout le produit lorsque la vitesse de coulée augmente, et au contraire augmente lorsque la température d'entrée est plus élevée (au-dessus de 718°C). Les auteurs expliquent ces phénomènes par l'augmentation de la vitesse de refroidissement et l'approfondissement du marais avec la vitesse de coulée. Une étude numérique leur a permis de relier les dimensions de la zone dite « stagnante » au centre du puits et l'écoulement dans le marais à la fraction de grains « grossiers ».

Dans les deux cas, l'impact de la vitesse de coulée sur les microstructures est lié à la modification de la vitesse de refroidissement, mais cette dernière n'est pas impactée de la même manière dans les deux études présentées ici.

#### 2.2.3.2. Refroidissement

J.Dong et al., lors de leur étude sur la formation des microstructures dans une billette de 100 mm de diamètre d'un alliage 7075, ont également testé différentes méthodes de refroidissement en fixant la vitesse de coulée à 120 mm/min (Dong J. 2003). Le refroidissement primaire par contact avec le moule est modifié par la géométrie de la bague de graphite et le refroidissement secondaire dépend du débit d'eau. Ils constatent que lorsque le refroidissement primaire est diminué, la structure des grains devient plus globulaire mais leur taille est inchangée, alors que l'augmentation du débit d'eau (de 23 L/min à 50 L/min) mène à des tailles de grains réduites (de 50 à 30  $\mu\text{m}$ ), mais de même morphologie. Ils ne donnent cependant aucune explication à cet effet dissocié des deux zones de refroidissement.

Eskin et al. ont également testé l'impact du débit d'eau de refroidissement sur le profil de taille de grain dans des billettes non affinées de 200 mm de diamètre coulées à 120 mm/min pour l'alliage Al-4,31%Cu-0,11%Si-0,22%Fe (Z. J. Eskin D.G. 2004). Lorsque le débit d'eau varie de 150 L/min à 250 L/min, ils ne constatent pas de variation notable de la distribution en taille des grains. L'impact du refroidissement sur le *DAS* est plus notable mais reste limité : l'augmentation du débit d'eau tend à l'affiner.

#### 2.2.3.3. Nature des éléments d'alliage

La même expérience que celle présentée dans (Z. J. Eskin D.G. 2004) a été menée en testant cette fois-ci la composition en soluté. Des billettes de 200mm de diamètre ont été coulées sans affinant pour quatre compositions en cuivre de l'alliage, allant de 1,03% à 4,49% (Suyitno 2004). Deux vitesses de coulée ont été testées, 100 mm/min et 200 mm/min, mais

les résultats sont comparables. Pour la composition 1,03%, une zone colonnaire se forme sur les parois de la billette mais dès que la composition dépasse 2%, la structure est purement équiaxe. L'enrichissement en soluté induit un affinage très important de la microstructure. Pour la vitesse de 100 mm/min, dès 2% de soluté, la taille de grains s'homogénéise dans la billette autour de 200  $\mu\text{m}$  tandis qu'elle atteint 600  $\mu\text{m}$  au centre lorsque la composition en cuivre vaut 1,03%. Les auteurs justifient ces phénomènes par l'impact de la composition en soluté sur la zone pâteuse et la transition colonnaire-équiaxe. La transition étant contrôlée par la surfusion solutale, une composition suffisamment élevée permet l'élimination de la zone colonnaire. De plus, lorsque la composition augmente, l'écart entre la température de liquidus et la température eutectique diminue, donc le marais est moins profond et le temps de solidification est plus faible ; la microstructure est alors affinée.

#### 2.2.3.4. Entrée du métal liquide

La méthode d'injection du métal liquide a un impact sur la formation des structures. Lorsque l'alliage n'est pas affiné, l'étude de Daloz et al. montre que la taille des structures est réduite lorsqu'un sac de distribution est utilisé (Daloz D. 2002). L'effet est moins clair lorsqu'1kg/tonne de Al-5Ti-1B est ajouté : la taille moyenne des grains reste inchangée lorsque le sac de distribution est utilisé mais la distribution en taille dans le lingot est alors beaucoup moins uniforme. L'orientation de l'injection du métal liquide impacte également la taille des grains (Zhang L. 2012). Un alliage 7050 affiné avec du Al-5Ti-1B est coulé en billettes de 315 mm de diamètre à une vitesse de 50 mm/min. Que l'injection du métal soit verticale ou semi-horizontale, la taille maximale de grains est trouvée à quart épaisseur, mais la taille de grain à cœur est beaucoup plus fine lorsque le métal est injecté verticalement. Dans ce cas, les auteurs ont déterminé numériquement que deux boucles de convection apparaissaient, creusant le bain liquide au centre. D'après les auteurs, les grains peuvent éventuellement être transportés par le liquide de la peau vers le centre mais ils sont bloqués à la rencontre des deux boucles de convection car ils sont trop lourds pour remonter. Il est alors logique de retrouver une taille de grain minimale dans la partie centrale de la billette. Ils n'apportent cependant aucune explication concernant la distribution dans le cas de l'injection semi-horizontale.

La température du métal liquide a également un impact sur la microstructure. L'impact de la surchauffe a été étudié sur des billettes de 200 mm de diamètre pour l'alliage Al-2,8%Cu-0,14%Fe-0,08%Si (S. V. Eskin D.G. 2005) (entre 48 °C et 107 °C) et sur des billettes de 100 mm de diamètre pour un alliage 7075 (Dong J. 2003) (entre 3°C et 85°C). Dans les deux études, les auteurs observent que la structure tout d'abord dendritique et variable en taille de structure devient plus fine, globulaire et homogène lorsque la surchauffe initiale diminue. Leurs explications diffèrent : d'après (S. V. Eskin D.G. 2005), l'augmentation de la surchauffe induirait une diminution de la vitesse de refroidissement et une désactivation des particules affinant, d'où l'augmentation de la taille des grains. Dans (Dong J. 2003), la température étant très uniforme dans le métal liquide lorsque la surchauffe est faible, la surfusion d'activation des affinant serait atteinte sur toute la largeur du produit au même moment, affinant et homogénéisant la microstructure. En allant plus loin, il existerait une température d'entrée du métal liquide caractéristique pour chaque alliage au-delà de laquelle

la microstructure serait affinée de nouveau (Eskin D.G. 2008). L'augmentation de la taille des structures dans un premier temps serait due à la dissolution des hétérogénéités. Puis de nouveaux germes seraient formés, expliquant l'affinage de la structure aux très fortes surchauffes.

### 2.2.3.5. Affinage

L'ajout d'affinants a un impact considérable sur la microstructure, puisque des particules sont ajoutées pour favoriser la germination. L'objectif est donc de rendre la structure plus fine et plus globulaire. Les résultats obtenus dans (E. D. Nadella R. 2008) montrent que l'objectif est atteint. Un alliage de type 2024 est coulé dans des billettes de 196mm de diamètre à une vitesse de 80mm/min avec affinant (Al-3Ti-1B) ou sans. La taille de grain et le *DAS* sont estimés sur quatre échantillons prélevés le long d'un rayon de la billette. On constate que la taille moyenne des grains est réduite et la distribution devient plus homogène lorsque l'affinant est ajouté. De même, la distance interdendritique secondaire augmente. Si l'effet de l'affinage sur la taille moyenne de grains reste le même pour l'alliage 7075 coulé à la même vitesse, son effet sur le *DAS* est moins évident (Eskin D.G. 2008). Le *DAS* n'est en effet pas modifié de façon uniforme sur tout le diamètre du lingot, même s'il est partout augmenté.

L'effet de l'affinage est également testé dans le cas d'une plaque de 1850x550 mm<sup>2</sup> de section dans le cadre du projet EMPACT (Joly A. 2000). L'alliage 5182 est solidifié avec ou sans affinant (1kg/t de Al-3Ti-1B). Les micrographes permettent de constater que lorsque l'alliage est affiné, la structure évolue depuis de larges grains dendritiques près de la peau vers de plus petits grains globulaires au centre. Lorsque l'alliage n'est pas affiné, les structures restent équiaxes mais la dendritisation des grains est plus visible. La taille des grains diminue avec la distance aux parois puis au centre, une structure mixte apparaît, constituée de grands grains dendritiques et de très petits grains globulaires. La taille moyenne des grains est donnée dans les deux cas Figure 1- 30 :

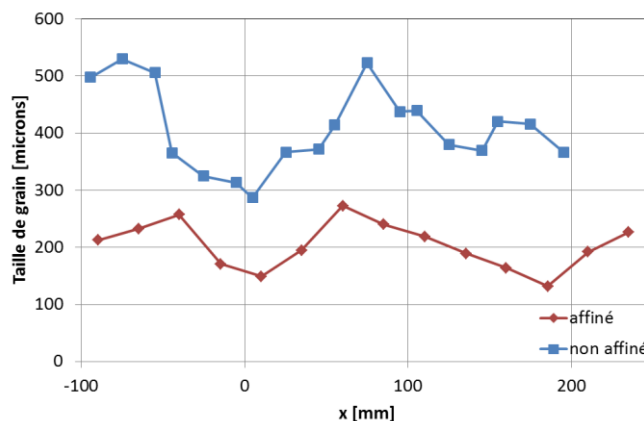


Figure 1- 30 : Profil expérimental de taille finale de grains selon l'épaisseur  $x$  à  $z=450\text{mm}$  dans le cas non affiné et le cas affiné- tiré de (Daloz D. 2002)

### 2.3. Etat de l'art de la modélisation de la solidification à l'échelle macroscopique

	<b>Beckermann 1995</b>	<b>Jalanti</b>	<b>Eskin</b>	<b>Vreeman</b>	<b>SOLID</b>
<b>modèle macroscopique</b>					
<b>retrait</b>	oui-variable	oui-constant	oui-constant	oui-constant	oui-constant
<b>convection naturelle</b>	oui. $\rho_l$ varie selon loi expérimentale $\rho_s$ constant	non. $\rho_s$ et $\rho_l$ constants	oui. $\rho_l$ suit la loi de Boussinesq $\rho_s$ constant	oui. $\rho_l$ et $\rho_s$ suivent la loi de Boussinesq	oui. $\rho_l$ suit la loi de Boussinesq $\rho_s$ constant
<b>mouvement des grains</b>	oui. Modèle de trainée jusqu'à $g_{sp}$	non	non	oui. Modèle simplifié (pas d'interaction entre les grains)	oui. Modèle de trainée jusqu'à $g_{sp}$
<b>modèle de perméabilité</b>	trainée tend vers Carman-Kozeny pour $g_s > 0,5$	modèle de Carman-Kozeny dans tout le milieu	modèle de Carman-Kozeny dans tout le milieu	modèle de Carman-Kozeny pour $g_s > g_{sp}$	modèle de Carman-Kozeny pour $g_s > g_{sp}$
<b>modèle microscopique</b>					
<b>modèle de micro-ségrégation</b>	diffusion limitée dans les deux phases	modèle des bras de levier ou de Scheil	modèle de Scheil	modèle des bras de levier	diffusion limitée dans les deux phases
<b>germination</b>	densité de germes fixée	/	/	/	classes de germes associées à une surfusion
<b>croissance</b>	diamètre fonction de $g_s$	/	/	diamètre fixé. Densité de grains varie de 0 à $10^{12} \text{ m}^{-3}$ entre $g_s=0$ et $g_s=1$	Diamètre et densité de grains variables
<b>morphologie des grains</b>	globulaire	/	/	globulaire	globulaire
<b>couplage</b>	fort	fort	faible	fort	fort

Tableau 1- 3 : Caractéristiques principales de 5 modèles micro-macro de solidification.

Différents modèles ont été développés depuis les années 80 afin de modéliser le phénomène de ségrégation au cours de la solidification en CCV. La difficulté principale de ce type de modèle est d'intégrer des phénomènes microscopiques dans un modèle macroscopique. Pour cela, différentes méthodes peuvent être employées. Nous allons donc

rapidement passer en revue les modèles macroscopiques de solidification existants pour lesquels des comparaisons expérimentales existent. Ainsi, il sera possible de mettre en relation les hypothèses du modèle aux résultats obtenus et de valider ou non ces hypothèses par comparaison aux profils expérimentaux. Les modèles présentés sont basés sur la méthode de prise de moyenne et les deux phases, liquide et solide, sont traitées séparément. Les phénomènes microscopiques sont directement pris en compte dans les équations de transport macroscopiques. Le Tableau 1- 3 résume les caractéristiques principales des modèles étudiés.

### 2.3.1. Modèle de Wang et Beckermann

La première comparaison de profils de ségrégation obtenus par l'expérience et par modélisation est proposée en 1994 par A.V. Reddy et C. Beckermann (Reddy A.V. 1994). La convection naturelle est prise en compte à travers une loi expérimentale de variation de la masse volumique du liquide et le retrait est considéré variable. Le mouvement des grains est basé sur un modèle de trainée développé par P.K. Agarwal et B.K. O'Neill (Agarwal P.K. 1988) et les grains sont bloqués à une fraction solide donnée ( $g^{bloc}=0,637$ ). A l'échelle microscopique, la diffusion limitée du soluté est prise en compte dans les deux phases et les grains sont supposés globulaires. La germination est négligée et le métal rentre avec une densité de grain fixe, choisie de façon à correspondre à la densité moyenne finale mesurée expérimentalement. Seul leur rayon croît avec la fraction solide. Les résultats expérimentaux sont extraits de l'expérience de Finn et al. (Finn T.L. 1992), réalisée avec ajout d'affinants et présentée §2.1.3.7.

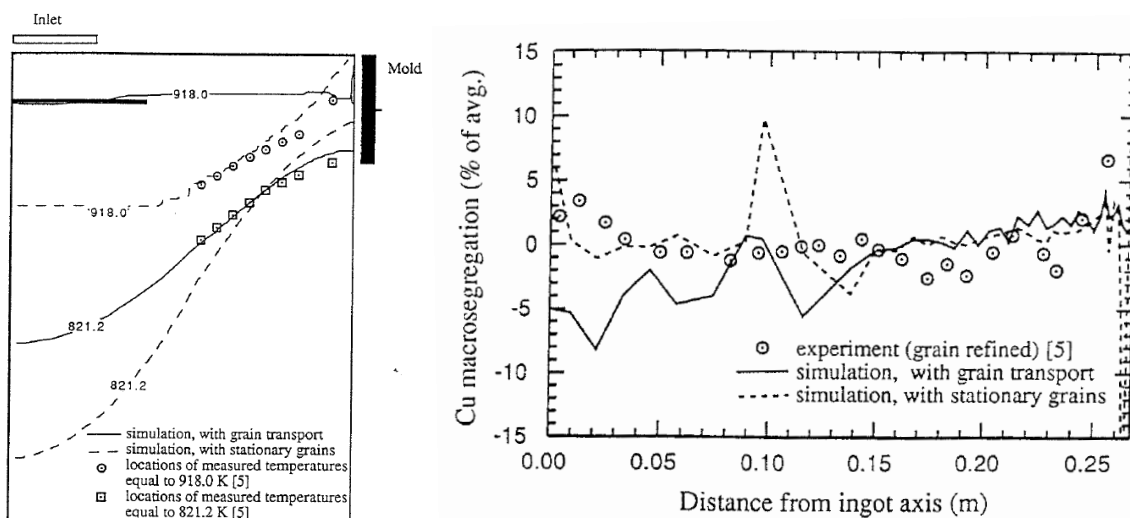


Figure 1- 31 : Billette de 533.4mm de diamètre, alliage Al-4,5%Cu - Comparaison des résultats obtenus par mesure (avec affinage) et par modélisation (sans et avec mouvement des grains) pour a- la position des isothermes liquidus et eutectique b- les profils radiaux de concentration en soluté (Reddy A.V. 1994).

La Figure 1- 31 représente la position des isothermes de liquidus et eutectique et les profils de concentration relative en soluté obtenus par l'expérience (avec affinage) et par la modélisation (avec et sans prise en compte du mouvement des grains). On constate que la prise en compte du mouvement des grains permet de mieux estimer la position de

l'eutectique, mais le constat est contraire quant à la position du liquidus. Que le mouvement des grains soit considéré ou non, le modèle ne permet pas de prédire le profil de ségrégation obtenu par l'expérience. L'effet du mouvement des grains sur la position des isothermes et sur la ségrégation à cœur est en effet surestimé.

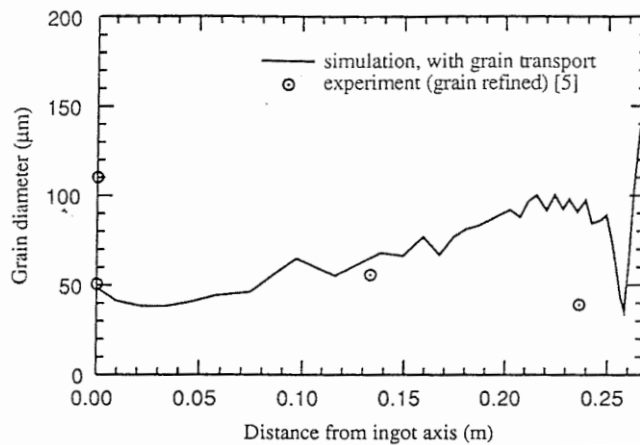


Figure 1- 32 : Billette de 533.4mm de diamètre, alliage Al-4,5%Cu - Comparaison des résultats obtenus par mesure (avec affinage) et par modélisation (avec mouvement des grains) des profils radiaux de taille de grain (Reddy A.V. 1994).

La redistribution des grains lorsque leur transport est pris en compte est donnée Figure 1- 32. Elle ne permet pas de prédire la faible taille de structure près de la paroi. La germination doit être prise en compte afin de prédire la microstructure.

### 2.3.2. Modèle de Jalanti

En 2000, T.Jalanti propose un modèle simplifié (Jalanti T. 2000): la méthode de prise de moyenne est encore utilisée mais ni le mouvement des grains ni la convection thermosolutale ne sont pris en compte. A l'échelle microscopique, la germination et la croissance des grains ne sont pas modélisées : la diffusion du soluté est basée sur les hypothèses de Scheil ou des bras de levier. Il compare les profils de ségrégation obtenus à une expérience réalisée sur une plaque de 510 mm d'épaisseur, pour un alliage Al-4wt.%Mg, coulée à 60 mm/min Figure 1- 33.

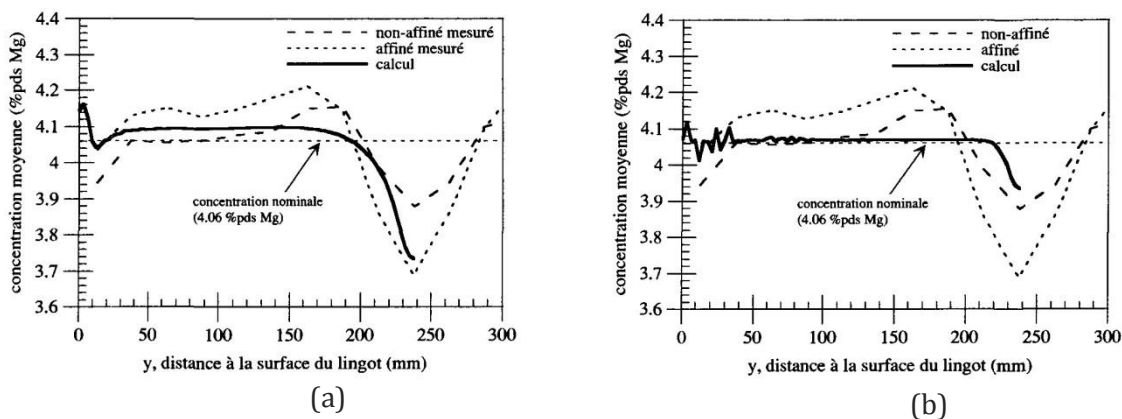


Figure 1- 33 : Plaque de 510mm d'épaisseur, alliage Al-4%Mg, Comparaison des résultats obtenus par mesure (avec et sans affinage) et par modélisation (sans mouvement des grains, sans convection

thermo-solutale) pour a- le modèle des bras de levier b- le modèle de Scheil (Jalanti T. 2000).

On constate que le profil obtenu par le modèle des bras de levier est proche du profil expérimental obtenu sans affinage tandis que le profil obtenu par le modèle de Scheil est proche du profil expérimental obtenu avec affinage. Cependant, afin d'obtenir une ségrégation centrale du même ordre de grandeur que celle obtenue par l'expérience, la perméabilité est multipliée par 10 000 par rapport à la valeur obtenue par l'expression de

Carman-Kozeny  $\left( K = K_0 \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2} = \frac{\lambda_2^2}{180} \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2} \right)$ , ce qui correspond à une distance

interdendritique secondaire de 4mm à la place des 40µm initialement considérés. Cet écart considérable montre que les hypothèses du modèle sont trop simplifiées pour modéliser correctement les ségrégations.

### 2.3.3. Modèle de Du et al.

Un modèle relativement proche du précédent est développé et comparé à l'expérience par Q. Du, D.G. Eskin L. Katgerman en 2007 (Du Q. 2007). La convection thermo-solutale est de nouveau prise en compte mais le modèle microscopique est très simplifié : le chemin de solidification est imposé par le modèle de Scheil ou des bras de levier, ce qui ne permet pas de prédire une microstructure. A l'échelle macroscopique, la méthode des moyennes volumiques est abandonnée au profit de la théorie des milieux continus pour l'établissement des équations de transport et le couplage modèle microscopique/modèle macroscopique est dans ce cas faible. Des comparaisons sont réalisées sur une billette de 200 mm de diamètre non affinée pour un alliage binaire Al-4,5%Cu (DU Q. 2006) et pour un alliage ternaire Al-3,5%Cu-1,5%Mg (Du Q. 2007).

Le modèle ne parvient à retranscrire ni la ségrégation positive entre le cœur et la peau, ni le pic négatif près de la peau. Mais surtout, comme dans le modèle précédent, la perméabilité est surestimée pour obtenir une ségrégation centrale du même ordre de grandeur que la valeur expérimentale. La distance interdendritique équivalente est de 300 µm, soit dix fois la valeur obtenue expérimentalement. Pour une valeur de la distance interdendritique secondaire trois fois plus faible ( $DAS=100 \mu m$ ), la ségrégation centrale négative est déjà doublée. Là encore, le modèle semble donc trop simplifié pour prédire les profils de ségrégation. Le modèle très simplifié de croissance ne permet pas de prédire la microstructure.

### 2.3.4. Modèle de Vreeman et al.

Le modèle développé par C.J. Vreeman, J.D. Schloz, M.J.M. Krane en 2002 reprend la méthode des prises de moyenne (Vreeman C.J. 2002). La convection naturelle, le retrait et le mouvement des grains sont pris en compte. Le modèle de trainée est simplifié en négligeant l'interaction entre les grains mais deux zones apparaissent : une zone pâteuse dans laquelle les grains sont mobiles et une zone où les grains sont supposés former un milieu poreux. A l'échelle microscopique, l'hypothèse des bras de levier est utilisée. De plus, la taille des grains est supposée constante donc la densité de grain varie avec la fraction solide.

Les profils de ségrégation sont présentés pour une billette de 450 mm de diamètre pour un alliage Al-6wt.%Cu. Le diamètre des grains est fixé à  $d=75\ \mu\text{m}$  et la fraction de blocage des grains à  $g^{\text{bloc}}=0,3$ . Le profil obtenu avec mouvement des grains est comparé à celui obtenu par l'expérience avec affinant (Al-3Ti-1B), et le profil obtenu sans mouvement des grains est comparé à celui obtenu par l'expérience sans affinant Figure 1- 34:

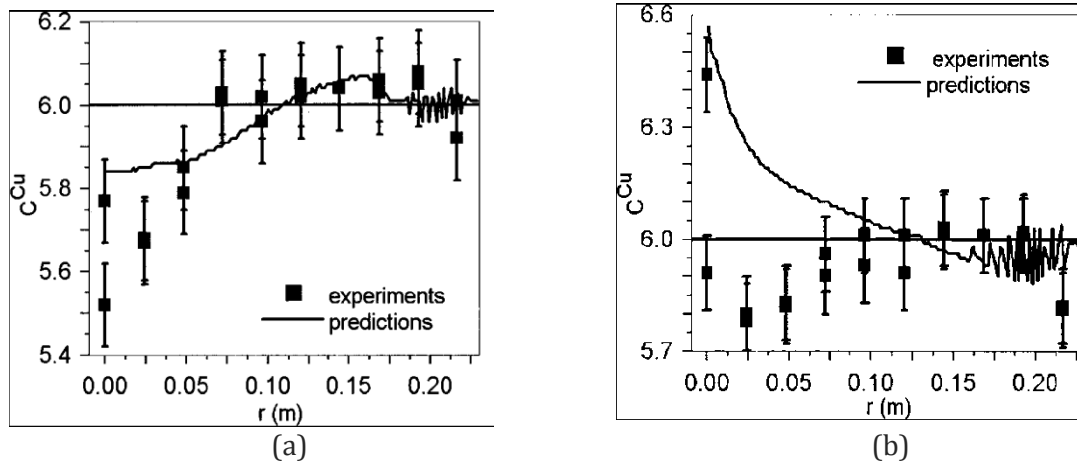


Figure 1- 34 : Billette de 450mm de diamètre, alliage Al-6%Cu, comparaison des résultats obtenus par mesure et par modélisation (a) avec affinant (calcul avec mouvement des grains) et (b) sans affinant (calcul sans mouvement des grains) (Vreeman C.J. 2002).

Dans le cas (a), les tendances globales sont retrouvées : la prise en compte du mouvement des grains permet de prédire la ségrégation négative à cœur. De plus, la ségrégation négative près de la peau et la ségrégation légèrement positive entre le cœur et la peau sont retrouvées par le modèle. La seule différence notable avec le profil expérimental est l'atténuation de la ségrégation centrale. Les auteurs en concluent que la fraction solide de blocage a été surestimée, surestimant l'effet du mouvement des grains. La morphologie des grains, qui n'est pas prise en compte dans ce modèle, semble nécessaire à une meilleure estimation des zones poreuse et pâteuse. De plus, la prise en compte correcte du mouvement des grains nécessite de connaître leur diamètre, alors qu'il est ici fixé, surestimant le mouvement des grains aux faibles fractions solides et le sous-estimant aux fortes fractions solides.

Dans le cas (b), les auteurs font l'hypothèse que sans ajout d'affinant, la germination est plus tardive donc la croissance peut être considérée comme purement colonnaire, avec une phase solide fixe. Cependant, sans prise en compte de la sédimentation des grains, la ségrégation devient positive au centre du produit jusqu'à  $r=12\text{mm}$ , alors que d'après l'expérience, elle ne devient positive que sur moins de  $r=2\text{mm}$ . Cela signifie que même sans ajout d'affinants, la germination hétérogène ne peut être négligée, donc la prise en compte du mouvement des grains est primordiale dans l'estimation des ségrégations.

### 2.3.5. Modèle SOLID

Le modèle SOLID, également basé sur la méthode de prise de moyenne, est divisé en deux sous-systèmes. Il est décrit en annexe. A l'échelle macroscopique, seuls les phénomènes de transport sont pris en compte : transfert de chaleur, de quantité de mouvement, de masse



et des solutés. Puis à l'échelle microscopique, les contributions de la nucléation et de la croissance des grains sont calculées localement, à partir de l'initialisation de la solution macroscopique du transport. A l'échelle macroscopique, cette approximation ne modifie que de façon négligeable l'erreur numérique car le volume élémentaire de calcul est très petit devant la taille du système et très grand devant la taille caractéristique des structures interfaciales. Le mouvement des grains est pris en compte au-dessous d'une fraction solide de blocage, tout comme dans le modèle de Beckermann, d'après le modèle de trainée développé par P.K. Agarwal et B.K. O'Neill (Agarwal P.K. 1988). Le retrait est ici considéré constant et la masse volumique varie selon la loi de Boussinesq. A l'échelle microscopique, la germination est modélisée d'après l'hypothèse d'une germination athermique hétérogène. La distribution en taille des germes est convertie en distribution en surfusion d'activation et est discrétisée en classes. Lorsque la surfusion d'activation d'une classe est atteinte, les germes de cette classe deviennent des grains. La croissance est modélisée en prenant en compte la diffusion limitée du soluté dans les phases liquide et solide. Une expression analytique de la distance caractéristique de diffusion dans les phases solide et liquide est imposée.

Les résultats du modèle obtenus pour une fraction de blocage  $g^{\text{bloc}}=0,35$  et une distance interdendritique secondaire  $DAS=100 \mu\text{m}$  ont été comparés aux résultats expérimentaux pour un alliage industriel multiconstitué dont les compositions nominales sont approximativement 8,5% en zinc, 2% en magnésium et 2% en cuivre. L'alliage a été modélisé par un alliage pseudo-binaire adapté. La plaque a pour épaisseur 350 mm et deux vitesses de coulée ont été étudiées : 30 et 55 mm/min. Dans les deux cas, les profils sont très proches des résultats expérimentaux : la confidentialité de ces résultats ne nous permet cependant pas de les donner ici.

## 2.4. Conclusion

Dans cette seconde partie de notre travail bibliographique, nous avons présenté les phénomènes de transport qui mènent à la formation des hétérogénéités macroscopiques. La convection naturelle, le retrait et le mouvement des grains induisent un transport relatif de la phase solide par rapport à la phase liquide et un phénomène de convection au sein même de la phase liquide, qui mènent à la formation de macroségrégations. L'hétérogénéité des tailles de structures est quant à elle due non seulement au transport des grains mais également à la compétition germination/croissance à l'échelle microscopique. Cette compétition est en effet dépendante des conditions de refroidissement, qui ne sont pas les mêmes partout dans le produit. Sans prise en compte du transport, il y a donc déjà hétérogénéités de tailles de structures à l'échelle macroscopique. Le transport des grains et des germes se rajoute à cet effet.

Après avoir présenté l'effet des paramètres de coulée sur ces deux types d'hétérogénéités, nous avons rapidement passé en revue les différents modèles macroscopiques de solidification pour lesquels une validation expérimentale a été proposée. Cette étude a permis de relier les profils prédits aux hypothèses définies dans les modèles. Malgré des hypothèses simplificatrices fortes, certains modèles permettent déjà de prédire de façon quantitative les macroségrégations. Cependant, la prédiction de la microstructure est

beaucoup plus rarement étudiée et n'a jamais permis, à notre connaissance, de reproduire fidèlement les résultats expérimentaux. La plupart des modèles présentés ici ne prennent pas en compte ou de façon très simplifiée la germination et la cinétique de croissance des grains. Ces phénomènes microscopiques étant couplés aux phénomènes macroscopiques de transport, il est pourtant primordial de les prendre en compte afin d'estimer quantitativement la taille des structures. Estimer la densité et la morphologie des grains formés nécessite de modéliser précisément la cinétique de croissance. Connaître localement la distribution en taille des particules affinantes et la densité de grains est donc primordiale pour estimer correctement la compétition entre germination et croissance. Dans cette optique, il est crucial de prendre en compte le transport des grains et des particules. Or si le mouvement des grains est pris en compte dans certains modèles de solidification, le transport des particules affinantes n'a encore jamais été considéré.

## Objectifs de la thèse

Cette étude bibliographique nous a permis de décrire les principaux phénomènes liés à la solidification d'alliages à l'échelle industrielle. A l'échelle microscopique dans un premier temps, les mécanismes de germination et de croissance des grains ont été présentés et leur couplage mis en évidence. L'étude des différents modèles microscopiques existants a permis de définir des pistes d'amélioration pour le modèle SOLID: l'amélioration de l'estimation de la distance de diffusion du soluté dans le liquide et la prise en compte d'une phase liquide intragranulaire distincte sont deux points qui seront abordés dans la suite et qui ont pour objectif d'améliorer la prédiction de la composition en soluté et la taille de structure à l'échelle microscopique.

Dans une seconde partie, nous avons présenté les phénomènes de transport à l'échelle macroscopique qui, couplés aux phénomènes microscopiques, induisent les hétérogénéités de taille de structure et de composition à l'échelle du produit. L'effet de paramètres de coulée sur ces hétérogénéités a été étudié. Enfin, nous avons présenté les principaux modèles macroscopiques de solidification existants. Ceci nous a permis de constater que si certains modèles permettent déjà d'estimer quantitativement les macroségrégations, aucun ne permet pour l'instant de prédire les hétérogénéités de tailles de structures. Pour cela, il est non seulement nécessaire de prendre en compte la cinétique de croissance et la germination des grains mais il faut également prendre en compte les phénomènes de transport à l'échelle macroscopique qui peuvent modifier localement la compétition entre germination et croissance. Si le transport des grains est déjà pris en compte, celui des germes n'a jamais été considéré. Nous étudierons donc son effet sur les prédictions du modèle.

Dans une première partie, nous allons donc proposer des modifications au modèle de croissance actuellement utilisé dans SOLID, afin d'améliorer la prédiction de la germination et de la croissance à l'échelle microscopique. Dans une deuxième partie, nous étudierons l'impact des phénomènes de transport à l'échelle macroscopique sur la formation des hétérogénéités de tailles de structures et de ségrégation en lingot. Enfin, nous étudierons de manière similaire la formation des hétérogénéités en coulée semi-continue, puis nous chercherons à appliquer notre modèle à un cas industriel.



## Chapitre II : Amélioration de la modélisation de la cinétique de croissance

Nous avons vu dans l'étude bibliographique comment la croissance est généralement traitée dans les modèles macroscopiques de solidification. Le rejet de soluté pendant la solidification, à l'origine d'un gradient de composition dans la phase liquide, est le moteur de la croissance et peut influencer indirectement la germination. Il est donc primordial d'estimer correctement son profil dans et autour d'un grain, aussi bien pour une morphologie globulaire que pour une morphologie dendritique.

Nous proposons donc dans une première partie de ce chapitre de définir une nouvelle expression analytique pour la longueur de diffusion dans le liquide, prenant en compte non seulement l'avancée de l'interface au cours de la solidification mais également la convection du liquide. L'impact de ce modèle de diffusion sur la solidification et la formation des macroségrégations est ensuite testé dans un lingot. La prise en compte de la morphologie est pour l'instant très simplifiée dans SOLID et n'impacte pas la croissance de la phase solide. Nous présentons donc dans une seconde partie un nouveau modèle de croissance prenant en compte trois phases comme développé dès 1987 par Rappaz et al. (T. P. Rappaz M. 1987). Les simplifications proposées par K.Tveito dans sa thèse permettent de garder un modèle à deux phases à l'échelle macroscopique. Le modèle étant développé en détail dans (Tveito K. 2013), nous ne reprenons ici que les étapes importantes du développement de ce modèle.

### 1. Diffusion du soluté à l'échelle microscopique : Impact sur la microstructure et sur les macroségrégations

#### 1.1. Impact des hétérogénéités microscopiques de soluté sur la formation des macroségrégations

En 1967, Flemings et al. ont proposé la première explication quantitative pour la formation des macroségrégations (Flemings 1967). En supposant la phase solide fixe, l'absence de retrait à la solidification et la diffusion parfaite dans la phase liquide, les équations de conservation de la masse et du soluté mènent à l'expression suivante pour la variation temporelle de la composition moyenne en soluté :

$$\frac{\partial C_m}{\partial t} = -g_l \vec{v}_l \cdot \nabla \langle C_l \rangle^l = -\frac{1}{m} g_l \vec{v}_l \cdot \nabla T, T = T_f + mC_l^* = T_f + m \langle C_l \rangle^l \quad (2.1)$$

Sous ces hypothèses, la direction relative de l'écoulement du liquide par rapport au gradient thermique détermine l'évolution de la macroségrégation. En effet lorsque la vitesse du liquide et le gradient thermique sont orientés dans la même direction, le liquide amené par convection vient d'une région plus froide et donc plus riche en soluté que le liquide qui quitte la zone. Ceci est vrai car la phase liquide est supposée à l'équilibre : la température et la composition moyenne de la phase sont alors directement liées. La composition du liquide dans cette zone est donc augmentée, ainsi que la composition moyenne.

Cependant, afin de prendre en compte la cinétique de croissance, nous avons vu que le liquide ne peut plus être supposé à l'équilibre ; il existe un gradient de soluté dans la phase liquide du fait de la diffusion limitée du soluté dans le métal liquide. Son effet sur la formation des macroségrégations n'a pas encore été étudié en détail. Založnik et Combeau (C. H. Založnik M. 2009) et Li et al. (Li J. 2012) ont étudié l'impact de la diffusion limitée du soluté dans le liquide sur la formation des canaux ségrégés lors de la solidification dendritique colonnaire d'un lingot, mais dans les deux cas, les conditions de la solidification amenaient à un profil de composition en soluté trop proche du modèle simplifié de Gulliver-Scheil pour voir un effet sur les macroségrégations. L'objectif est donc de mettre en évidence, pour une morphologie de grains globulaire, l'impact de la cinétique de croissance, plus particulièrement à travers la distance caractéristique de diffusion, sur la formation des macroségrégations.

En effet, lorsque la diffusion limitée du soluté est prise en compte, l'équation (2.1) n'est plus valide. L'évolution de la macroségrégation dépend non seulement de l'écoulement de la phase liquide et du gradient thermique mais également du gradient de surfusion :

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_m}{\partial t} &= -g_l \bar{v}_l \cdot \nabla \langle C_l \rangle^l = -\frac{1}{m} g_l \bar{v}_l \cdot \nabla [T - \Delta T] \\ T &= T_f + m C_l^*, \Delta T = m (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \end{aligned} \quad (2.2)$$

L'écart à l'équilibre, et donc la surfusion, dépend de la diffusion limitée du soluté dans les deux phases et du flux de soluté à l'interface solide/liquide dû à la solidification. Or nous avons vu dans le chapitre précédent qu'estimer exactement le profil de soluté dans les deux phases est trop lourd numériquement : une longueur de diffusion analytique est utilisée dans les modèles macroscopiques. Ainsi, seules la composition à l'interface et la composition moyenne locale du liquide nécessitent d'être connues :

$$J_i = -S_v \rho_i D_i \left. \frac{\partial C_i}{\partial n_i} \right|^* = S_v \rho_i D_i \frac{C_i^* - \langle C_i \rangle^i}{\delta_i}, \quad \delta_i = \frac{C_i^* - \langle C_i \rangle^i}{-\left. \frac{\partial C_i}{\partial n_i} \right|^*} \quad (2.3)$$

La longueur de diffusion a un impact direct sur l'estimation de la surfusion qui elle-même influe sur la formation des macroségrégations (équation(2.2)). Il est donc primordial de l'estimer le plus précisément possible. Nous avons vu au chapitre précédent les expressions analytiques de la longueur de diffusion dans le liquide utilisées communément dans les modèles microscopiques. Certaines expressions prennent en compte la vitesse de croissance de la phase solide, d'autres la convection du liquide, mais aucune à notre connaissance ne prend en considération ces deux phénomènes.

Nous allons proposer une nouvelle expression analytique pour la distance de diffusion dans le liquide, que nous validerons dans le cas d'un système purement diffusif. Puis nous étudierons l'effet de la diffusion limitée dans la phase liquide sur la formation des macroségrégations dans le cas de la solidification d'un lingot. Nous montrerons ainsi

l'importance de prendre en compte à la fois la vitesse de l'interface et la convection du liquide dans l'estimation de la longueur caractéristique de diffusion.

## 1.2. Nouvelle expression de la longueur de diffusion

### 1.2.1. Expression de la longueur de diffusion prenant en compte la vitesse de croissance du front

Afin d'approximer le flux de soluté à l'interface solide/liquide comme décrit à l'équation(2.3), des hypothèses simplificatrices doivent être faites sur la diffusion du soluté autour d'un grain sphérique qui croit. Wang et Beckermann ont trouvé une expression analytique de la longueur de diffusion dans le liquide en imposant arbitrairement un champ de convection dans le liquide (B. C. Wang C.Y. 1993). Cependant, cette hypothèse n'a pas été justifiée. Nous cherchons donc à établir une expression de la longueur de diffusion en repartant du bilan de soluté dans la phase liquide dans le cas d'une symétrie sphérique :

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} = \frac{D_l}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r^2 \frac{\partial C_l}{\partial r} \right] \quad (2.4)$$

Nous supposons que la diffusion est le mode de transport de soluté dominant à l'échelle microscopique, comme détaillé dans (C. H. Založnik M. 2010). On ne peut déduire directement de l'équation (2.4) une expression analytique de  $C_l$  fonction du temps et de l'espace. L'objectif est donc d'effectuer un changement de variable permettant de réduire les deux variables  $t$  et  $r$  à une seule variable dans l'équation différentielle. Plusieurs choix sont possibles, et deux ont été testés :  $f = rC_l$  et  $f = r(C_l - \langle C_l \rangle^l)$ . Seule une comparaison à un modèle exact a pu permettre de valider ou non les simplifications faites. Le changement de variable permettant l'estimation la plus précise de la surfusion dans les cas tests présentés ensuite est :

$$f = r(C_l - \langle C_l \rangle^l) \rightarrow \frac{\partial f}{\partial r} = C_l - \langle C_l \rangle^l + r \frac{\partial C_l}{\partial r} \rightarrow \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} = 2 \frac{\partial C_l}{\partial r} + r \frac{\partial^2 C_l}{\partial r^2} \quad (2.5)$$

Ainsi,

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial t} \quad \text{et} \quad \frac{D_l}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r^2 \frac{\partial C_l}{\partial r} \right] = \frac{D_l}{r} \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} \quad (2.6)$$

Donc l'équation (2.4) peut encore s'écrire :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + r \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial t} = D_l \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} \quad (2.7)$$

Du repère fixe, nous passons au repère attaché à l'interface solide/liquide :

$$\begin{cases} \xi(t) = r - R(t) \\ \frac{d\xi(t)}{dt} = -\frac{dR(t)}{dt} = -v_g(t) \end{cases} \quad (2.8)$$

Avec  $R(t)$  le rayon du grain sphérique et  $v_g(t)$  la vitesse de croissance du grain à l'instant  $t$ . Dans le nouveau repère noté  $nr$ , la dérivée temporelle est modifiée comme suit:

$$\frac{\partial f}{\partial t} = \frac{\partial f}{\partial \xi} \frac{\partial \xi}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{nr} = -v_g(t) \frac{\partial f}{\partial \xi} + \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{nr} \quad (2.9)$$

Donc l'équation (2.7) devient :

$$-v_g(t) \frac{\partial f}{\partial \xi} + \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{nr} + r \left( -v_g(t) \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial \xi} + \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial t} \Big|_{nr} \right) = D_l \frac{\partial^2 f}{\partial r^2} \quad (2.10)$$

Comme  $\frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial \xi} = 0$  et  $\frac{\partial^2 f}{\partial \xi^2} = \frac{\partial^2 f}{\partial r^2}$ , le bilan de soluté dans la phase liquide devient

finalemnt :

$$\begin{aligned} \frac{\partial f}{\partial t} \Big|_{nr} + r \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial t} \Big|_{nr} &= \frac{\partial r C_l}{\partial t} \Big|_{nr} - \frac{\partial (r \langle C_l \rangle^l)}{\partial t} \Big|_{nr} + r \frac{\partial \langle C_l \rangle^l}{\partial t} \Big|_{nr} = D_l \frac{\partial^2 f}{\partial \xi^2} + v_g(t) \frac{\partial f}{\partial \xi} \\ \Rightarrow \frac{\partial r C_l}{\partial t} \Big|_{nr} - v_g(t) \langle C_l \rangle^l &= D_l \frac{\partial^2 f}{\partial \xi^2} + v_g(t) \frac{\partial f}{\partial \xi} \end{aligned} \quad (2.11)$$

Cette équation ne permet pas encore d'exprimer analytiquement  $C_l$ . Nous faisons alors l'hypothèse que  $\frac{\partial r C_l}{\partial t} \Big|_{nr} = v_g(t) \langle C_l \rangle^l$ . Nous supposons donc que dans le nouveau repère, la variation de composition à une distance  $r$  est proportionnelle à l'écart à la composition moyenne en ce point et à la vitesse d'avancée du front de solidification, car

$$\begin{aligned} \frac{\partial r C_l}{\partial t} \Big|_{nr} = v_g(t) \langle C_l \rangle^l &\Rightarrow v_g(t) C_l + r \frac{\partial C_l}{\partial t} \Big|_{nr} = v_g(t) \langle C_l \rangle^l \\ \Rightarrow \frac{\partial C_l}{\partial t} \Big|_{nr} &= -v_g(t) \frac{C_l - \langle C_l \rangle^l}{r} \end{aligned} \quad (2.12)$$

Cette hypothèse nous permet d'obtenir une équation différentielle simplifiée pour laquelle une solution analytique existe :

$$-v_g(t) \frac{\partial f}{\partial \xi} = D_l \frac{\partial^2 f}{\partial \xi^2} \quad (2.13)$$

La solution de l'équation (2.13) est en effet de la forme  $f = r \left( C_l - \langle C_l \rangle^l \right) = A e^{-\xi/d} + B$  avec  $d = \frac{D_l}{v_g(t)}$ . Connaissant la composition à l'interface  $C_i^*$  et la composition moyenne de la phase liquide  $\langle C_l \rangle^l$ , on peut déterminer les constantes A et B :



$$\begin{cases} C_l(R) = C_l^* \\ \langle C_l \rangle^l = \frac{3}{4\pi(R_f^3 - R^3)} \int_R^{R_f} 4\pi r^2 C_l(r) dr \end{cases} \quad (2.14)$$

$$\begin{cases} f(0) = R \cdot (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) = A + B \\ \int_R^{R_f} 4\pi r^2 C_l(r) dr = \frac{4}{3} \pi (R_f^3 - R^3) \langle C_l \rangle^l \Rightarrow \\ Ad \left[ R + d - (R_f + d) e^{-\frac{R_f - R}{d}} \right] = -\frac{B}{2} (R_f^2 - R^2) = \left[ A - R (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \right] \frac{(R_f^2 - R^2)}{2} \end{cases} \quad (2.15)$$

On déduit de ce système d'équations l'expression de la constante A :

$$A = \frac{\frac{(R_f^2 - R^2)R}{2} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l)}{\frac{(R_f^2 - R^2)}{2} - d \left( R + d - (R_f + d) e^{-\frac{R_f - R}{d}} \right)} \quad (2.16)$$

Ayant déterminé l'expression des constantes A et A+B, on peut en déduire l'expression de la distance caractéristique de diffusion dans le liquide d'après l'équation (2.3) :

$$\delta_l = \frac{C_l^* - \langle C_l \rangle^l}{-\left. \frac{\partial C_l}{\partial r} \right|_*} = \frac{C_l^* - \langle C_l \rangle^l}{\frac{A+B}{R^2} + \frac{A}{Rd}} = \left[ \frac{1}{R} + \frac{\frac{(R_f^2 - R^2)}{2d}}{\frac{(R_f^2 - R^2)}{2} - d \left( R + d - (R_f + d) e^{-\frac{R_f - R}{d}} \right)} \right]^{-1} \quad (2.17)$$

### 1.2.2. Prise en compte de la convection du liquide

Afin de prendre en compte la convection dans l'estimation de la longueur de diffusion, nous utilisons le modèle du film stagnant. Développé dès 1953 par Burton et al. (Burton J.A. 1953) en coordonnées cartésiennes, il est repris par Vogel et Cantor en coordonnées sphériques quelques années plus tard (Vogel A. 1977). Le principe est simple : jusqu'à une distance  $\Delta$  de l'interface solide/liquide, on considère que la convection du liquide est négligeable et le profil de soluté ne dépend que de la diffusion autour d'un grain qui croît. Le profil de soluté est donc décrit par le bilan donné au paragraphe précédent. Puis après cette distance  $\Delta$ , la convection devient prédominante et le liquide est supposé homogène en composition, à une composition  $\bar{C}_l$ .

$$\begin{cases} C_l = \langle C_l \rangle^l + \frac{Ae^{(R-r)/d} + B}{r} \text{ entre } R \text{ et } (R + \Delta) \\ C_l = \bar{C}_l \text{ entre } (R + \Delta) \text{ et } R_f \end{cases} \quad (2.18)$$

Le profil de composition dans le liquide décrit par ce modèle est illustré Figure 2- 1:

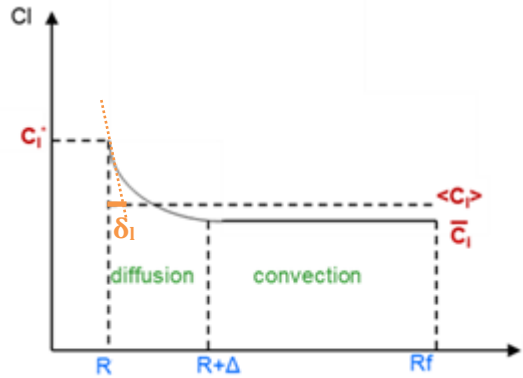


Figure 2- 1 : Représentation schématique du profil de soluté dans le liquide d'après notre modèle

Les constantes A, B et  $\bar{C}_l$  peuvent être déterminées à partir du système d'équations suivant :

$$\begin{cases} C_l(R+\Delta) = \bar{C}_l = \frac{Ae^{-\Delta/d} + B}{R+\Delta} + \langle C_l \rangle^l \\ C_l(R) = C_l^* = \frac{A+B}{R} + \langle C_l \rangle^l \\ \int_R^{R+\Delta} 4\pi r^2 \left( \langle C_l \rangle^l + \frac{Ae^{(R-r)/d} + B}{r} \right) dr + \bar{C}_l \frac{4}{3} \pi (R_f^3 - (R+\Delta)^3) = \langle C_l \rangle^l \frac{4}{3} \pi (R_f^3 - R^3) \end{cases} \quad (2.19)$$

En posant  $d = \frac{D_l}{v_g(t)}$ ,  $f(R, \Delta) = \frac{(R+\Delta)^2 - R^2}{2}$  et  $g(R_f, R, \Delta) = \frac{R_f^3 - (R+\Delta)^3}{3(R+\Delta)}$ , on

obtient l'expression de la longueur de diffusion prenant en compte à la fois la vitesse de croissance du grain et la convection de la phase liquide :

$$\delta_l = d \left\{ \frac{d}{R} - \frac{f(R, \Delta) + g(R_f, R, \Delta)}{d[R+d - (R+\Delta+d)e^{-\Delta/d}] - f(R, \Delta) + (e^{-\Delta/d} - 1) \cdot g(R_f, R, \Delta)} \right\}^{-1} \quad (2.20)$$

On peut constater que dans le cas où  $\Delta = R_f - R$ , l'expression (2.20) se réduit à l'expression (2.17) pour le cas purement diffusif.

La dernière inconnue à déterminer est alors  $\Delta$ , la longueur caractéristique séparant la zone dominée par la diffusion de la zone dominée par la convection, appelée l'épaisseur du film stagnant. Pour ce faire, nous utilisons l'expression du nombre de Sherwood (correspondant au rapport du flux de soluté total sur le flux de soluté par diffusion) donnée par Rowe et Claxton pour un écoulement autour de sphères de même taille organisées selon un arrangement rhomboédrique ou cubique, ou empilées aléatoirement (Rowe P.N. 1965):

$$Sh = \frac{2}{1 - g_s^{1/3}} + \frac{2}{3(1 - g_s)} Sc^{1/3} Re^{n(Re)} = Sh_{diff} + Sh_{conv} \quad (2.21)$$

Avec  $Sc = \frac{\mu_l}{\rho_0 D_l}$  le nombre de Schmidt,  $Re = \frac{\rho_l g_l \cdot 2R}{\mu_l} \left| \vec{v}_l - \vec{v}_s \right|$  le nombre de Reynolds

de l'écoulement autour des sphères solides et la fonction  $n(Re) = \frac{2Re^{0,28} + 4,65}{3(Re^{0,28} + 4,65)}$ . La

longueur de diffusion autour d'une sphère est reliée au nombre de Sherwood par définition comme  $\delta_l = 2R / Sh$ . Ne connaissant pas la relation entre  $\delta_l$  et  $\Delta$ , on la définit ici en posant  $\Delta = 2R / Sh_{conv}$  où  $Sh_{conv}$  est la contribution de la convection au flux de soluté. Plus précisément,  $\Delta = \min \left[ (R_f - R), 2R / Sh_{conv} \right]$  car l'épaisseur du film stagnant ne peut dépasser l'épaisseur de la zone liquide.

Lorsque  $R_f$  et  $R$  tendent vers l'infini, on retrouve bien l'expression de la longueur de diffusion dans le cas d'un front plan avançant à la vitesse  $V(t)$ . En effet, dans le cas d'une interface plane, le profil de soluté est de la forme :

$$\begin{cases} C_l = A e^{-v_g(t)x/D_l} + B \\ C_l(0) = C_l^* \\ C_l(\Delta) = \langle C_l \rangle' \end{cases} \quad (2.22)$$

Avec A et B deux constantes fonctions des conditions aux limites imposées. La longueur de diffusion s'exprime alors ainsi :

$$\delta_l = \frac{D_l}{v_g(t)} \left( 1 - e^{-v_g(t)\Delta/D_l} \right) \quad (2.23)$$

Or on retrouve exactement la même expression si on fait tendre  $R_f$  puis  $R$  vers l'infini dans l'expression de  $\delta_l$  donnée équation (2.20). En effet, lorsque le rayon final tend vers l'infini, on obtient l'expression suivante pour la longueur de diffusion :

$$\delta_l \xrightarrow{R_f \rightarrow \infty} d \left\{ \frac{d}{R} - \frac{1}{(e^{-\Delta/d} - 1)} \right\}^{-1} \quad (2.24)$$

Puis lorsque  $R$  tend également vers l'infini:

$$d \left\{ \frac{d}{R} - \frac{1}{(e^{-\Delta/d} - 1)} \right\}^{-1} \xrightarrow{R \rightarrow \infty} -d (e^{-\Delta/d} - 1) \quad (2.25)$$

Avec  $d = \frac{D_l}{v_g(t)}$ . Notre modèle est donc cohérent avec le modèle existant de diffusion

devant un front plan lorsque les dimensions du système tendent vers l'infini. Afin de le valider dans le cas général, nous allons maintenant définir des cas tests.

### 1.3. Adimensionnalisation du système régissant le problème et choix des cas tests

Afin de mettre en évidence les paramètres dont dépend la répartition du soluté à l'échelle microscopique, les équations régissant la conservation du soluté sont adimensionnalisées. Ainsi, nous pourrions définir des cas tests de façon à prendre en compte les conditions extrêmes de solidification. Nous considérons un système binaire qui solidifie sous l'effet d'une extraction de chaleur fixée.

#### 1.3.1. Adimensionnalisation du système

Nous supposons la température homogène à l'échelle microscopique, ce qui se justifie par des nombres de Lewis (comparant la diffusivité solutale à la diffusivité thermique) élevés dans les métaux. Le système définissant la conservation du soluté à l'échelle microscopique est composé des bilans de soluté dans les phases liquide et solide, du bilan de soluté à l'interface et de l'équation de la chaleur :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C_l}{\partial t} = \frac{D_l}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_l}{\partial r} \right) \\ \frac{\partial C_s}{\partial t} = \frac{D_s}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_s}{\partial r} \right) \\ (C_l^* - C_s^*) \frac{dR^*}{dt} = -D_l \left. \frac{\partial C_l}{\partial r} \right|^* + D_s \left. \frac{\partial C_s}{\partial r} \right|^* \\ \frac{dh}{dt} = C_p \frac{dT}{dt} - L_f \frac{3}{R_f^3} R^2 \frac{dR}{dt} \end{array} \right. \quad (2.26)$$

En faisant l'hypothèse que l'interface est à l'équilibre thermodynamique, on a également  $T = T_f + mC_l^*$  et  $C_s^* = kC_l^*$ . En combinant les deux dernières égalités de l'équation (2.26), on obtient le système complet sous cette forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial C_l}{\partial t} = \frac{D_l}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_l}{\partial r} \right) \\ \frac{\partial C_s}{\partial t} = \frac{D_s}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial C_s}{\partial r} \right) \\ \frac{dh}{dt} = C_p m \frac{dC_l^*}{dt} + \frac{3L_f f_s^{2/3}}{R_f} \frac{1}{C_l^* (k-1)} \left( -D_l \left. \frac{\partial C_l}{\partial r} \right|^* + D_s \left. \frac{\partial C_s}{\partial r} \right|^* \right) \\ T = T_f + mC_l^* \end{array} \right. \quad (2.27)$$

Afin d'adimensionnaliser le système, on définit les grandeurs caractéristiques en température et en composition comme illustré Figure 2- 2.

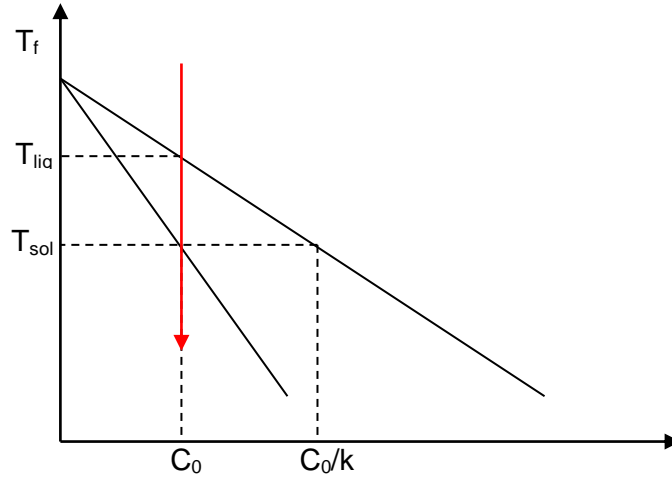


Figure 2- 2 : Diagramme de phase schématisé et grandeurs caractéristiques utilisées pour l'adimensionnalisation.

On adimensionnalise alors de la façon suivante :

$$\tilde{C} = \frac{C - C_0}{C_0(1/k - 1)}, \tilde{T} = \frac{T - T_{sol}}{T_{liq} - T_{sol}}, \tilde{t} = \frac{t}{t_{sol}}, \tilde{r} = \frac{r}{R_f}, \tilde{v} = \frac{v}{R_f / t_{sol}}, \tilde{h} = \frac{h}{C_p(T_{liq} - T_{sol}) + L_f} \quad (2.28)$$

Le système défini équation (2.27) devient:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{t}} = \frac{D_l t_{sol}}{R_f^2} \frac{\partial}{\partial \tilde{r}} \left[ \tilde{r}^2 \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{r}} \right] \\ \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{t}} = \frac{D_s t_{sol}}{R_f^2} \frac{\partial}{\partial \tilde{r}} \left[ \tilde{r}^2 \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{r}} \right] \\ \frac{C_p(T_l - T_s) + L_f}{t_{sol}} \frac{d\tilde{h}}{d\tilde{t}} = C_p \frac{T_{liq} - T_{sol}}{t_{sol}} \frac{d\tilde{T}}{d\tilde{t}} + \frac{3L_f f_s^{2/3}}{R_f^2 (k-1)} \frac{C_0(1/k-1)}{\tilde{C}_l C_0(1/k-1) + C_0} \left( -D_l \left. \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{r}} \right|_* + D_s \left. \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{r}} \right|_* \right) \\ \tilde{T} = \tilde{T}_f - \tilde{C} \end{array} \right. \quad (2.29)$$

Le nombre de Fourier dans le liquide étant défini comme  $FO_l = \frac{D_l t_{sol}}{R_f^2}$ , celui dans le solide comme  $FO_s = \frac{D_s t_{sol}}{R_f^2}$  et le nombre de Stefan comme  $Ste = \frac{C_p(T_l - T_s)}{L_f}$ , le système adimensionné devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{t}} = Fo_l \frac{\partial}{\partial \tilde{r}} \left[ \tilde{r}^2 \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{r}} \right] \\ \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{t}} = Fo_s \frac{\partial}{\partial \tilde{r}} \left[ \tilde{r}^2 \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{r}} \right] \\ (Ste + 1) \frac{d\tilde{h}}{d\tilde{t}} = Ste \frac{d\tilde{T}}{d\tilde{t}} + \frac{3f_s^{2/3}}{(k-1)\tilde{C}_l^* - k} \left( -Fo_l \left. \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial \tilde{r}} \right|_* + Fo_s \left. \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial \tilde{r}} \right|_* \right) \\ \tilde{T} = \tilde{T}_f - \tilde{C} \end{array} \right. \quad (2.30)$$

### 1.3.2. Définition des cas tests

L'adimensionnalisation du système nous a permis de mettre en évidence les paramètres critiques influençant la répartition du soluté : le coefficient de partage et le nombre de Stefan, caractéristiques de l'alliage considéré et les nombres de Fourier des deux phases, liés aux conditions de solidification. Nous pouvons alors regarder l'ordre de grandeur de  $Ste$  et de  $k$  pour les principaux alliages binaires d'aluminium existants, dans les gammes de composition utilisées dans l'industrie (Tableau 2- 1). Pour cela, nous utilisons l'approximation des bras de levier pour estimer la température de fin de solidification.

Tableau 2- 1 : Gamme de composition des alliages et valeur du nombre de Stefan correspondante

Alliage	Gamme de composition [wt.%]		Nombre de Stefan [-]		Coefficient de répartition [-]
	min	max	min	max	
Al-Cu (2xxx)	0,7	6,8	$2,88 \cdot 10^{-2}$	$2,80 \cdot 10^{-1}$	0,173
Al-Mn (3xxx)	0,3	1,2	$7,70 \cdot 10^{-5}$	$3,08 \cdot 10^{-4}$	0,94
Al-Si (4xxx)	0,6	6,0	$6,58 \cdot 10^{-2}$	$6,58 \cdot 10^{-1}$	0,14
Al-Mg (5xxx)	0,5	5,6	$7,48 \cdot 10^{-3}$	$8,38 \cdot 10^{-2}$	0,51
Al-Zn (7xxx)	0,8	8,4	$4,40 \cdot 10^{-3}$	$4,62 \cdot 10^{-2}$	0,43

12 alliages sont ainsi définis. Afin d'étudier l'effet des paramètres de solidification, et donc de faire varier les nombres de Fourier, nous fixons la taille finale de grain et nous considérons cinq vitesses de refroidissement, comprises dans la gamme des valeurs rencontrées dans le cas de la coulée continue décrite dans (K. A. Založnik M. 2011). Le rayon final de grain est fixé à 50  $\mu\text{m}$ , valeur caractéristique dans le cas du procédé de coulée semi-continue avec affinant. Les cinq cas donnés Tableau 2- 2 permettent d'étudier les conditions extrêmes de solidification, de la plus rapide à la surface du produit (cas1) à la plus lente au centre (cas5) en passant par des cas intermédiaires.

Tableau 2- 2 : Définition des cas étudiés pour la validation de la distance de diffusion

	$\dot{q}$ [W/kg]	$t_{sol}$ [s]	$Fo_l$ [-]
Cas 1	50000	9	8
Cas 2	10000	44	41
Cas 3	4300	102	95
Cas 4	2100	209	195
Cas 5	1000	439	408

## 1.4. Validation de la nouvelle expression de la distance caractéristique de diffusion dans un cas purement diffusif

### 1.4.1. Description des modèles étudiés

Afin de valider la nouvelle expression de la longueur de diffusion, nous étudions un cas purement diffusif. Cela nous permet de comparer les résultats obtenus par notre modèle (noté *modèle du film stagnant* dans la suite) à ceux obtenus par un modèle référant, nommé *ici modèle exact*. Développé par Thuinet et Combeau (Thuinet L. 2009), ce *modèle exact* permet de résoudre numériquement le système complet d'équations régissant la croissance d'un grain sphérique contrôlée par les gradients solutaux. Notre modèle est également comparé à deux autres modèles de la littérature.

Le premier modèle, nommé *modèle de front fixe*, utilise l'expression de la longueur de diffusion donnée dans (Ni J. 1993). La vitesse de l'interface solide/liquide est alors négligée. Le régime est supposé stationnaire et les compositions dans le liquide sont imposées à l'interface et en  $R_f$ :

$$0 = \frac{D_l}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r^2 \frac{\partial C_l}{\partial r} \right] \text{ avec } \begin{cases} C_l(R) = C_l^* \\ C_l(R_f) = \langle C_l \rangle^l \end{cases} \quad (2.31)$$

On obtient sous ces hypothèses l'expression de la longueur de diffusion suivante :

$$\delta_l = R \left( 1 - \frac{R}{R_f} \right) \quad (2.32)$$

Le deuxième modèle, nommé *modèle d'interface mobile*, a été développé par Wang et Beckermann (B. C. Wang C.Y. 1993). Il prend en compte la vitesse du front de solidification mais néglige la convection. Le modèle est dérivé d'une façon similaire à la nôtre, mais en faisant d'autres hypothèses simplificatrices dans le bilan de soluté. Le régime est supposé permanent dans le référentiel lié à l'interface, et le liquide se déplace dans ce référentiel mobile à la vitesse  $v(r)$ . D'après les auteurs, l'équation de diffusion devient alors :

$$v(r) \frac{dC_l}{dr} = \frac{D_l}{r^2} \frac{d}{dr} \left[ r^2 \frac{dC_l}{dr} \right], \quad v(r) = -v_g(t) \frac{R^2}{r^2} \quad (2.33)$$

L'équation est résolue avec les mêmes conditions aux limites que celles que nous utilisons dans notre modèle, données équation (2.14). Ils obtiennent ainsi :

$$\delta_l = \frac{R_f}{Pe} \left\{ 1 - \frac{3}{1-g_s} \exp(-Pe \cdot g_s^{1/3}) \int_{g_s^{1/3}}^1 x^2 \exp\left(\frac{Pe \cdot g_s^{2/3}}{x}\right) dx \right\} \quad (2.34)$$

$$Pe = \frac{v_g(t)R_f}{D_l}, \quad g_s = \left(\frac{R}{R_f}\right)^3$$

Les résultats obtenus par ces 3 modèles présentés, *modèle exact*, *modèle de front fixe* et *modèle d'interface mobile*, sont comparés à ceux obtenus avec notre nouveau modèle *du film stagnant*. Nous étudions la solidification des 12 alliages définis au paragraphe précédent pour les cinq vitesses de refroidissement données Tableau 2- 2.

#### 1.4.2. Comparaison des modèles

Les résultats et conclusions restant les mêmes pour les 12 alliages, nous présentons ici les résultats détaillés d'un seul alliage : Al-6wt.%Si, qui correspond au plus grand nombre de Stefan. La surfusion étant alors maximale, on peut supposer que les erreurs les plus grandes d'estimation de cette grandeur sont observées dans ce cas. Un résumé des résultats obtenus pour les différents alliages est donné à la fin de l'étude de validation.

L'évolution de la distance de diffusion et de la surfusion en fonction de la fraction solide est donnée pour le cas Al-6wt.%Si pour les vitesses de refroidissement extrêmes correspondant aux nombres de Fourier liquide  $FO_l=8$  et  $FO_l=408$  Figure 2- 3.



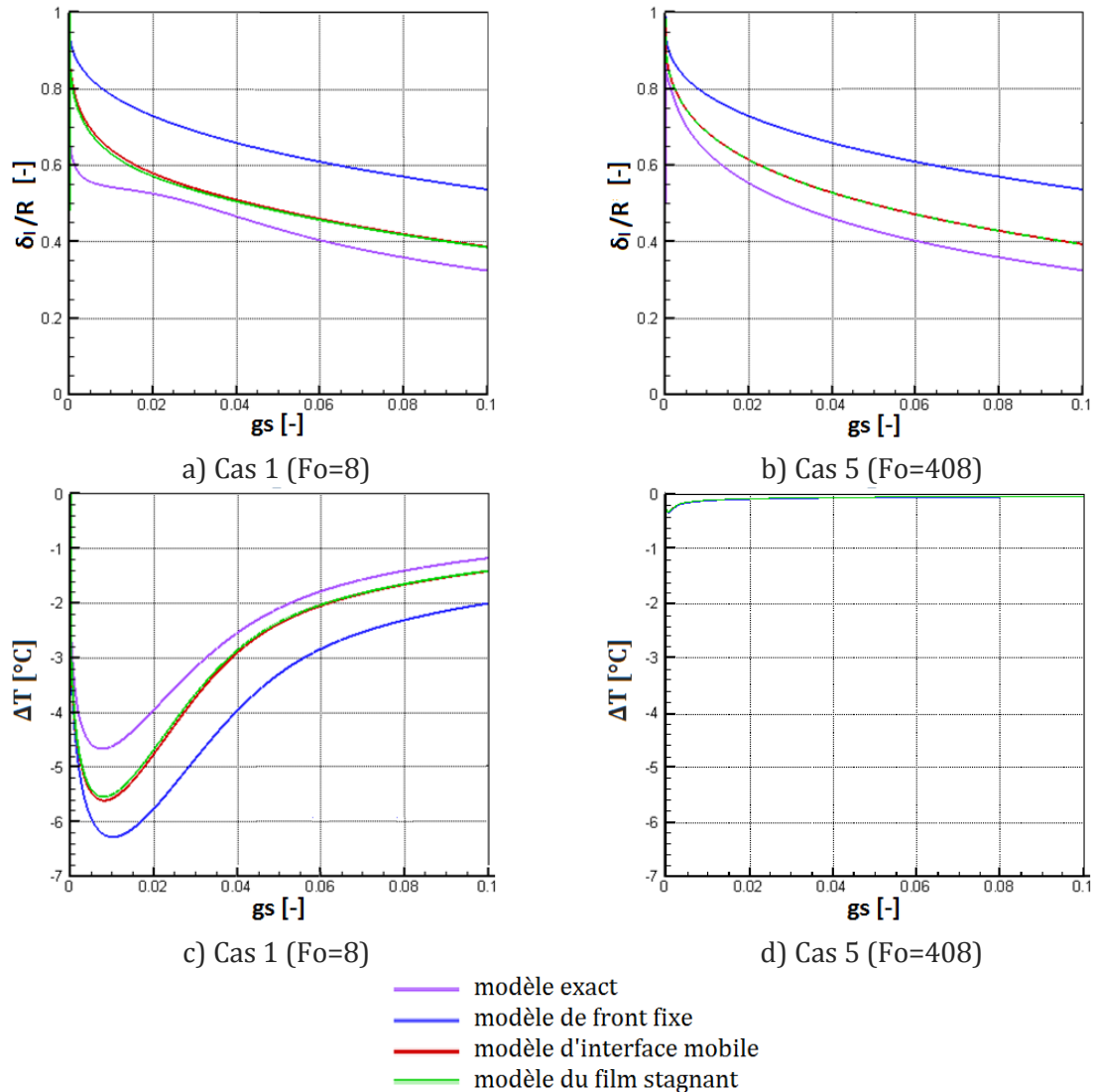


Figure 2- 3 : Evolution de a), b)  $\delta_l/R$  et c), d) surfusion fonction de la fraction solide pour les cas 1 et 5, pour les 4 modèles. Les résultats sont donnés pour l'alliage Al-6wt.%Si.

On constate que la longueur de diffusion est surestimée par tous les modèles approchés, induisant une plus grande surfusion que celle estimée par le *modèle exact*. L'erreur est plus grande pour le *modèle de front fixe*, qui ne prend pas en compte la vitesse d'interface. Le *modèle d'interface mobile* et le *modèle du film stagnant*, qui prennent tous les deux en compte la vitesse d'interface, fournissent des résultats similaires. Malgré les différences dans le développement et la simplification de l'équation de diffusion, l'estimation de la longueur de diffusion est presque identique. Ainsi, la prise en compte du mouvement de l'interface permet de mieux estimer  $\delta_l$  et  $\Delta T$ , mais les résultats restent éloignés de ceux obtenus avec le *modèle exact*. Comme attendu, lorsque le nombre de Fourier dans le liquide augmente, l'écart à l'équilibre diminue. Mais l'erreur relative dans l'estimation de  $\delta_l$  est-elle également réduite ? La Figure 2- 4 représente l'évolution avec le nombre de Fourier liquide de la surfusion maximale et de l'erreur relative pour les quatre modèles. La surfusion maximale correspond à la surfusion au moment de la recalescence, et l'erreur relative

correspond à l'écart de cette surfusion maximale à la surfusion maximale obtenue avec le modèle exact, définie comme  $\frac{\Delta T - \Delta T_{exact}}{\Delta T_{exact}}$ .

On constate que l'erreur relative diminue avec l'augmentation du nombre de Fourier, mais les tendances restent les mêmes : tous les modèles surestiment la surfusion maximale et le *modèle de front fixe*, qui ne prend pas en compte la vitesse d'interface, est le plus éloigné de la solution donnée par le *modèle exact*. Cependant, même si l'erreur relative diminue avec le nombre de Fourier, elle reste non négligeable (environ 5% pour  $Fo_l=408$ ). En effet, la surfusion maximale est atteinte au début de la croissance. Il existe alors des effets transitoires, qui ne sont pas pris en compte dans les modèles approchés.

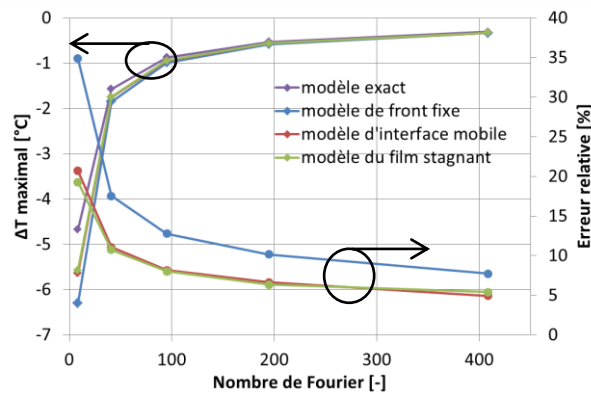


Figure 2- 4 : Evolution de la surfusion maximale atteinte (carrés) et de l'erreur relative par rapport au modèle exact (cercles) avec le nombre de Fourier de la phase liquide pour l'alliage Al-6wt.%Si (l'erreur relative est définie comme  $\frac{\Delta T - \Delta T_{exact}}{\Delta T_{exact}}$  ).

Voyons plus en détail l'impact du modèle de diffusion sur le profil de soluté dans le liquide. La Figure 2- 5-a), c) et e) montre le profil de soluté à trois fractions solides pour le Cas 1 ( $Fo_l=8$ ) et la Figure 2- 5-b), d) et f) montre le profil de soluté à trois fractions solides pour le Cas 5 ( $Fo_l=408$ ). La Figure 2- 5-a) et b) représente les profils de soluté à la fraction solide  $g_s=5.10^{-4}$ , correspondant à la fraction solide au moment de la recalescence pour le Cas 5. La Figure 2- 5-c) et d) représente les profils de soluté à la fraction solide  $g_s=10^{-2}$ , correspondant à la fraction solide au moment de la recalescence pour le Cas 1. Enfin, la Figure 2- 5-e) et f) représente les profils de soluté à la fraction solide  $g_s=5.10^{-2}$ , lorsque la recalescence a déjà eu lieu dans les deux cas.

Dans le Cas 1, les différences entre le *modèle exact* et les modèles approchés apparaissent dès le début de la solidification et s'amplifient jusqu'au moment de la recalescence (Figure 2- 5-c)). Le *modèle d'interface mobile* et le *modèle du film stagnant* convergent et s'éloignent du *modèle de front fixe*, qui se révèle être le modèle le moins précis. Puis lorsque la fraction solide continue à augmenter, la surfusion diminue et l'écart entre le *modèle exact* et les *modèles d'interface mobile* et *du film stagnant* diminue également, même si un écart persiste. Comme attendu, lorsque le nombre de Fourier augmente, les différences

entre les modèles s'estompent. Même à  $g_s=10^{-2}$ , lorsque la surfusion est maximale pour le Cas 5, la différence entre les modèles est très faible.

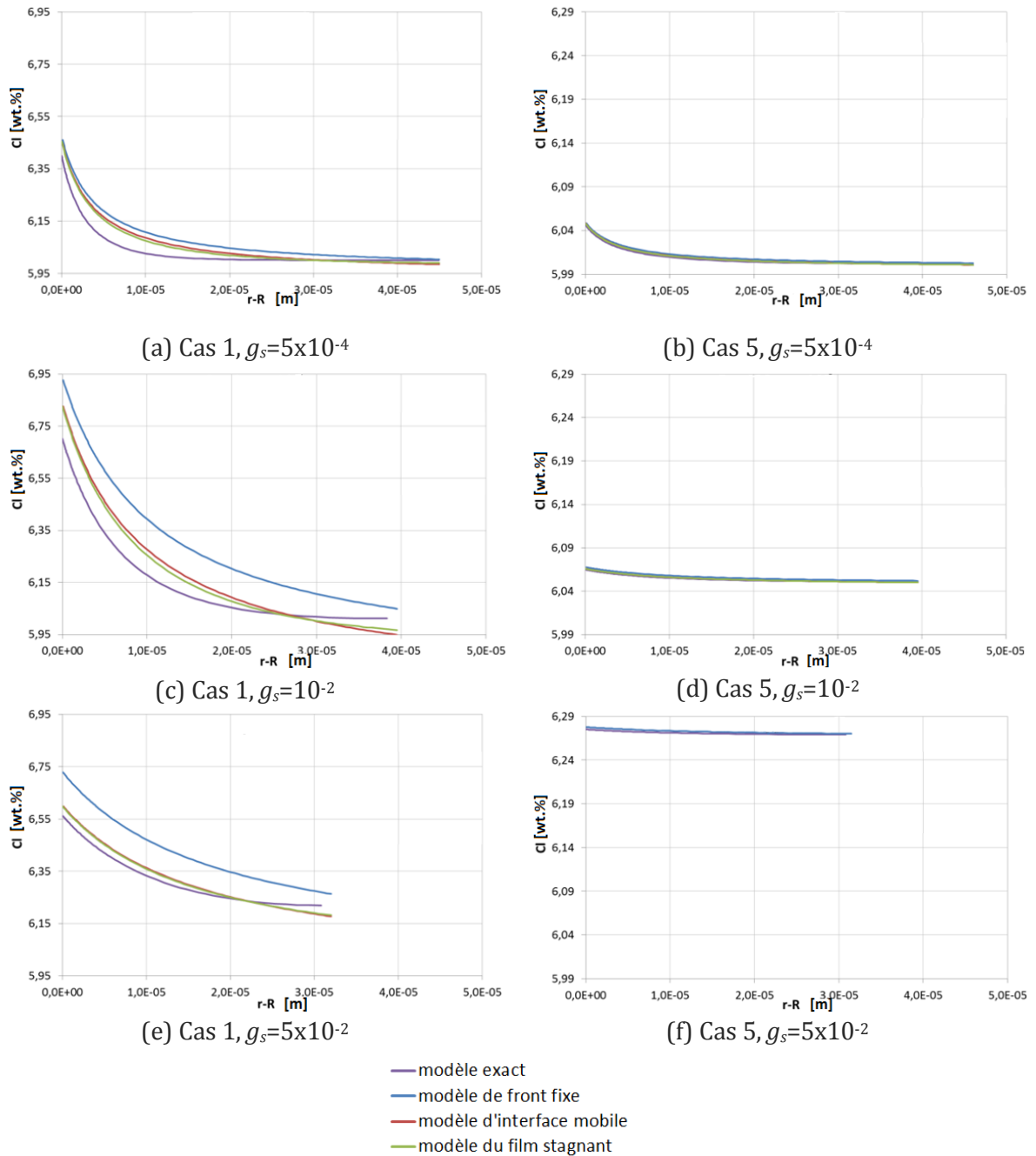


Figure 2- 5 : Profil de soluté estimé par les quatre modèles à trois fractions solides pour deux valeurs du nombre de Fourier liquide, pour l'alliage Al-6wt.%Si.

Cette étude a donc permis de montrer que le modèle proposé est le plus adapté pour prédire l'évolution de la surfusion et du profil de soluté dans le cas d'un alliage Al-6wt.%Si, dans toute la gamme du nombre de Fourier étudiée.

Afin d'élargir cette conclusion aux différents alliages binaires cités précédemment, la même étude a été réalisée et les résultats de cette étude sont donnés Figure 2- 6:

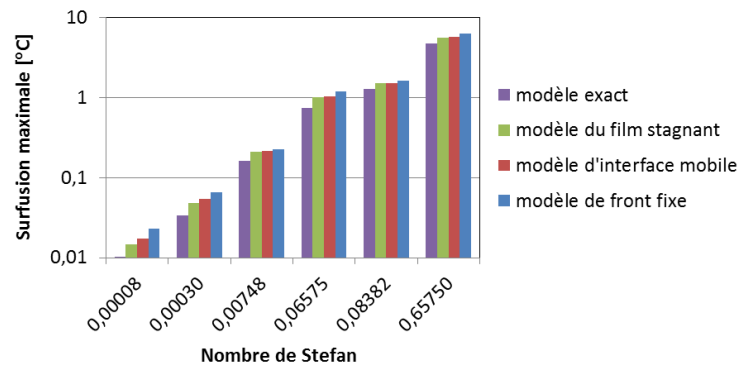


Figure 2- 6 : Surfusion maximale pour 6 alliages binaires différents correspondant à 6 valeurs du nombre de Stefan, obtenue par les 4 modèles, pour le cas 1.

La surfusion maximale est donnée pour les quatre modèles pour le plus faible nombre de Fourier (Cas 1), pour 6 valeurs du nombre de Stefan, c'est-à-dire pour 6 alliages. On peut ainsi constater que les conclusions restent identiques pour toute la gamme de nombre de Stefan. On remarque également que l'erreur relative augmente lorsque le nombre de Stefan diminue.

Notre modèle est donc validé dans un cas purement diffusif. Voyons maintenant l'effet de ce nouveau modèle sur les ségrégations dans un cas macroscopique où la convection ne peut plus être négligée.

## 1.5. Application à la solidification d'un lingot

### 1.5.1. Définition du cas test

Nous considérons la solidification d'un lingot de Al-6wt.%Si refroidi par les côtés et isolé thermiquement en haut et en bas. Ce cas est supposé bidimensionnel et la symétrie du problème permet de ne modéliser que la moitié du domaine, comme illustré Figure 2- 7. Le lingot est initialement rempli de métal liquide à température et composition uniforme. Les propriétés thermo-physiques de l'alliage utilisées dans cette étude sont données dans l'annexe. Le maillage est constitué de 3200 mailles carrées de taille identique et le pas de temps de calcul est  $5.10^{-4}$ s.

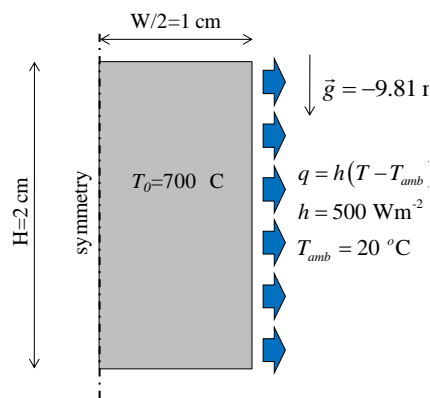


Figure 2- 7 : Définition du cas étudié

L'impact de la cinétique de croissance est étudié à partir des 8 cas définis dans le Tableau 2- 3. On fait varier les nombres de Fourier en augmentant la taille finale des grains (ou plus exactement en faisant varier la densité de grains). On étudie également les cas limites, basés sur les modèles de Scheil et des bras de levier.

Dans un premier temps, seule la diffusion de chaleur est prise en compte afin d'étudier l'impact de la cinétique de croissance sur la dynamique de solidification. Puis la convection thermo-solutale est considérée, ce qui nous permet d'analyser l'effet de la cinétique de croissance sur la formation des macroségrégations.

Tableau 2- 3 : Définition des cas étudiés

	Rayon final des grains $R_f$ [m]	Nombre de Fourier, liquide* $Fo_l$ [-]	Nombre de Fourier, solide* $Fo_s$ [-]
Cas 1a	$9,10 \cdot 10^{-5}$	10,7	0,008
Cas 1b	(identique à Cas 1a, mais l'effet de la convection sur $\delta_l$ est négligé, i.e. on impose $\Delta = R_f - R^*$ )		
Cas 2	$4,08 \cdot 10^{-5}$	53,4	0,04
Cas 3	$2,67 \cdot 10^{-5}$	124,2	0,09
Cas 4	$1,87 \cdot 10^{-5}$	254,4	0,19
Cas 5	$1,29 \cdot 10^{-5}$	534,3	0,40
Bras de Levier	-	$\infty$	$\infty$
Scheil	-	$\infty$	0

\*  $Fo$  calculé à partir d'un temps de solidification de 38,1s

### 1.5.2. Impact de la cinétique de croissance sur la solidification dans un cas purement diffusif

En négligeant tous les phénomènes de convection, on se rapporte à un cas unidimensionnel. On peut alors étudier l'impact de la cinétique de croissance sur la solidification en étudiant l'évolution des profils horizontaux de fraction solide et de température avec le temps, pour le cas bras de levier, où la cinétique de croissance n'est pas prise en compte, et le Cas 1, où notre expression analytique de  $\delta_l$  est utilisée. Ces profils sont donnés Figure 2- 8 à  $t=8s$ .

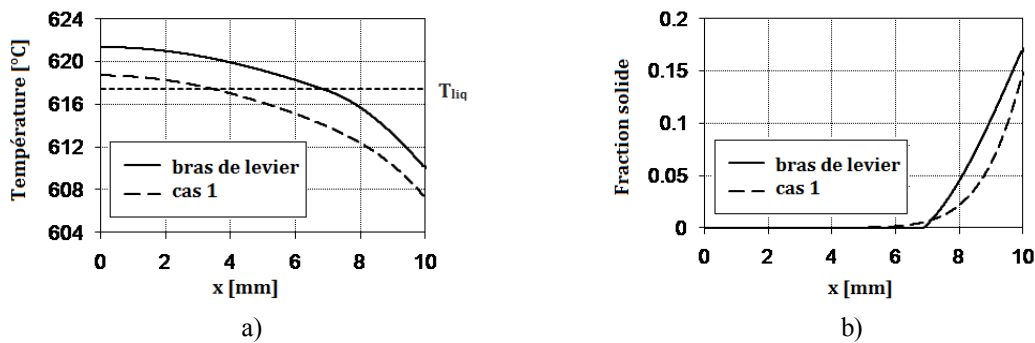


Figure 2- 8 : Profil horizontal de a) température and b) fraction solide après 8s pour le cas purement diffusif.

La diffusion solutale étant limitée dans le liquide dans le Cas 1, la croissance est limitée. Pour une extraction de chaleur fixée, l'extraction de chaleur latente est alors réduite au profit de l'extraction de chaleur sensible. C'est pourquoi la température est plus faible dans le Cas 1, comme on peut le voir Figure 2- 8-a. De plus, le liquidus a avancé plus rapidement : après 8s, il n'est plus qu'à 4mm du centre dans le Cas 1 tandis qu'il est encore à 7mm du centre dans le cas bras de levier (Figure 2- 8-b).

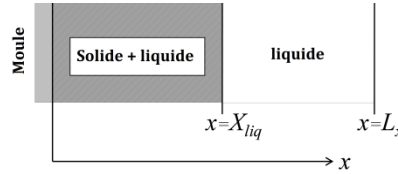


Figure 2- 9 : Système de coordonnées utilisé dans l'équation (2.36), où  $X_{liq}$  indique la position du liquidus.

Les différences dans la position du liquidus peuvent être expliquées en faisant un bilan de chaleur sur un volume de contrôle compris dans la zone pâteuse, comme on peut le voir Figure 2- 9. Ce bilan, pour un système unidimensionnel, devient :

$$\frac{\partial \rho h_m}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (2.35)$$

En intégrant ce bilan sur toute la zone pâteuse, c'est-à-dire entre  $x=0$  et  $x=X_{liq}$ , on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[ \int_0^{X_{liq}} \rho h_m dx \right] - \rho h_{liq} \frac{\partial X_{liq}}{\partial t} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=X_{liq}} - \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (2.36)$$

En introduisant les quantités moyennées dans la zone pâteuse sous la forme  $\langle \psi \rangle^p = \frac{1}{X_{liq}} \int_0^{X_{liq}} \psi dx$  avec l'indice  $p$  désignant la zone pâteuse, l'équation (2.36) devient :

$$\frac{\partial \rho X_{liq} \langle h_m \rangle^p}{\partial t} - \rho h_{liq} \frac{\partial X_{liq}}{\partial t} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=X} - \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (2.37)$$

En supposant la masse volumique constante et en développant le premier terme de l'équation (2.37), celle-ci peut s'écrire :

$$\rho X_{liq} \frac{\partial \langle h_m \rangle^p}{\partial t} + \rho \langle h_m \rangle^p \frac{\partial X_{liq}}{\partial t} - \rho h_{liq} \frac{\partial X_{liq}}{\partial t} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=X} - \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=0} \quad (2.38)$$

Soit :

$$\rho \left[ c_p (T_{liq} - \langle T \rangle^p) + L_f (1 - \langle g_l \rangle^p) \right] \frac{\partial X_{liq}}{\partial t} = \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=0} - \lambda \frac{\partial T}{\partial x} \Big|_{x=X} + \rho X_{liq} \left[ c_p \frac{\partial \langle T \rangle^p}{\partial t} + L_f \frac{\partial \langle g_l \rangle^p}{\partial t} \right] \quad (2.39)$$

Enfin, en adimensionnalisant cette équation à partir des variables :

$$\xi = \frac{x}{L_x} \quad \tau = \frac{t}{t_{sol}} \quad \theta = \frac{T - T_{sol}}{\Delta T} \quad \Delta T = T_{liq} - T_{sol} \quad Ste = \frac{c_p \Delta T}{L_f} \quad Fo = \frac{\lambda}{\rho c_p} \frac{t_{sol}}{L^2} \quad (2.40)$$

Le bilan de chaleur devient finalement :

$$\left[ 1 - \langle \theta \rangle^p + \frac{1}{Ste} (1 - \langle g_l \rangle^p) \right] \frac{\partial \xi_{liq}}{\partial \tau} = Fo \left( \left. \frac{\partial \theta}{\partial \xi} \right|_{\xi=0} - \left. \frac{\partial \theta}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_{liq}} \right) + \xi_{liq} \left[ \frac{\partial \langle \theta \rangle^p}{\partial \tau} + \frac{1}{Ste} \frac{\partial \langle g_l \rangle^p}{\partial \tau} \right] \quad (2.41)$$

Cette équation permet de décrire l'avancée du liquidus  $\frac{\partial \xi_{liq}}{\partial \tau}$ . L'évolution des différents termes de cette équation avec le temps est donnée Figure 2- 10 :

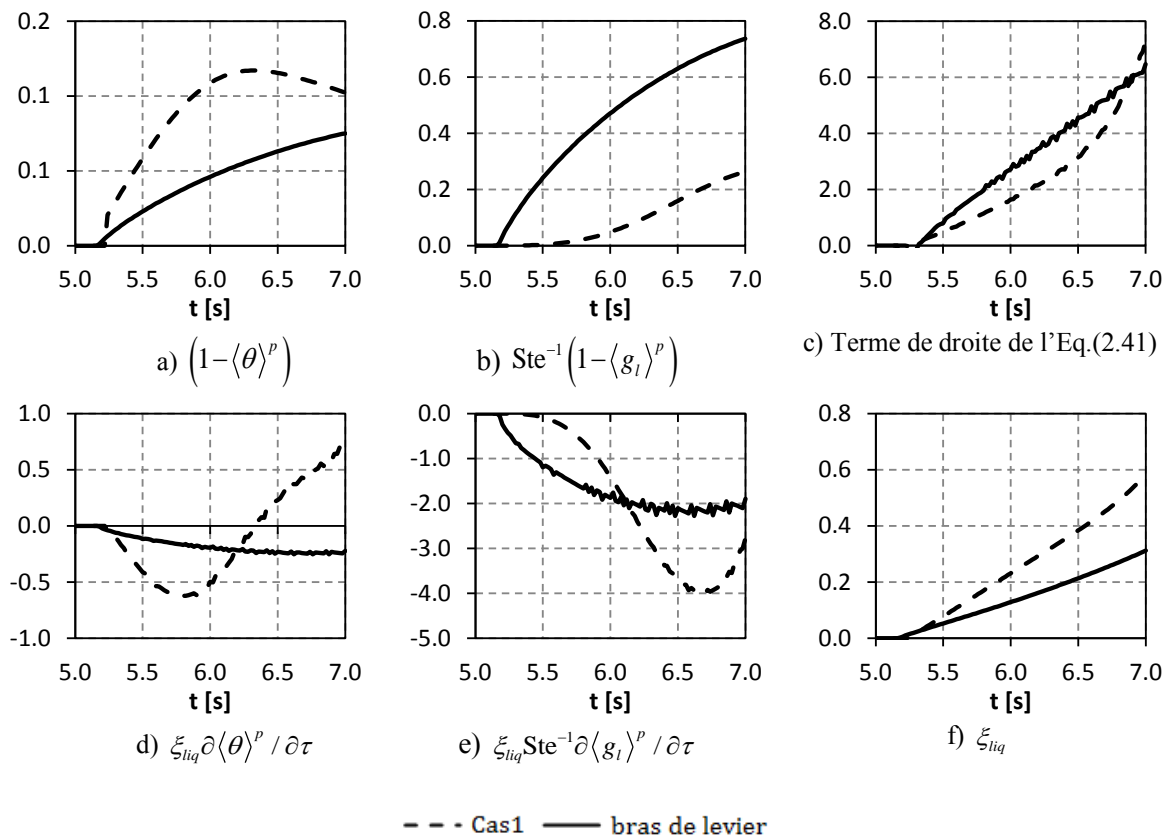


Figure 2- 10 : Evolution dans le temps des différents termes de l'équation (2.41). Tous les termes sont adimensionnels.

Pour le modèle des bras de levier, la température et la fraction liquide moyennes de la zone pâteuse diminuent de façon monotone (Figure 2- 10-a et Figure 2- 10-b). De plus, le nombre de Stefan étant de l'ordre de 0,1, les termes liés au dégagement de chaleur latente sont prédominants. Pour le Cas 1, la cinétique de croissance limite la solidification, et la température et la fraction solide subissent une recaescence, comme on peut le voir Figure 2- 10-d et Figure 2- 10-e. Ainsi, la diminution de la chaleur sensible est l'effet prédominant jusqu'à environ 5,8s puis le rapport s'inverse : la croissance s'accélère et la surfusion diminue. Le flux de chaleur à la paroi est donné par le nombre de Fourier et reste très

similaire dans les deux cas, et le gradient de température au niveau du liquidus est plus grand dans le Cas 1 jusqu'à 6,5s. Le terme de droite de l'équation est plus faible pour le Cas 1 (Figure 2- 10-c), mais l'avancée plus rapide du liquidus tient principalement à la fraction solide moyenne de la zone pâteuse beaucoup plus faible (Figure 2- 10-b) et à la faible valeur du nombre de Stefan. Le liquidus avance même presque deux fois plus vite dans le Cas 1 (Figure 2- 10-f).

Déjà sans convection, l'impact de la cinétique de croissance sur la dynamique de la zone pâteuse est important. Voyons maintenant son impact sur la formation des macroségrégations lorsque les mouvements de convection sont pris en compte.

### 1.5.3. Impact de la cinétique de croissance sur la macroségrégation

La prise en compte de la convection thermo-solutale induit un mouvement dans le sens horaire. En effet, dans le demi-système considéré, le lingot est refroidi par la droite. Le liquide plus froid dans cette zone descend du fait de sa masse volumique plus élevée. Ce phénomène est encore amplifié par l'enrichissement en soluté du liquide dans cette zone dû à la formation du premier solide. La Figure 2- 11 illustre l'évolution de la composition moyenne en soluté dans le lingot entre 6s et 10s obtenue par le modèle des bras de levier et dans le Cas 1a. Le champ de vitesse du liquide et les isolignes de fraction solide sont également donnés. D'une façon générale, l'avancée et la croissance de la zone pâteuse sont principalement contrôlées par la thermique, tandis que de faibles oscillations des isolignes mettent en évidence l'effet solutal. La solidification est retardée en bas du lingot du fait de l'enrichissement en soluté et est accélérée en haut pour les raisons inverses.

La formation des macroségrégations peut être expliquée dans le cas des bras de levier à partir de l'équation (2.1) : la vitesse d'évolution des ségrégations ne dépend que de la valeur et de l'orientation relative du gradient thermique et du champ de vitesse du liquide. Du fait de la boucle de convection dans le sens horaire et du gradient thermique horizontal dirigé vers la gauche, une ségrégation positive apparaît en bas du lingot et une négative en haut. Puis la perméabilité de la zone pâteuse diminue avec la fraction liquide, réduisant la vitesse de convection du liquide. C'est pourquoi les macroségrégations n'évoluent plus pour des fractions solides supérieures à 0,2.



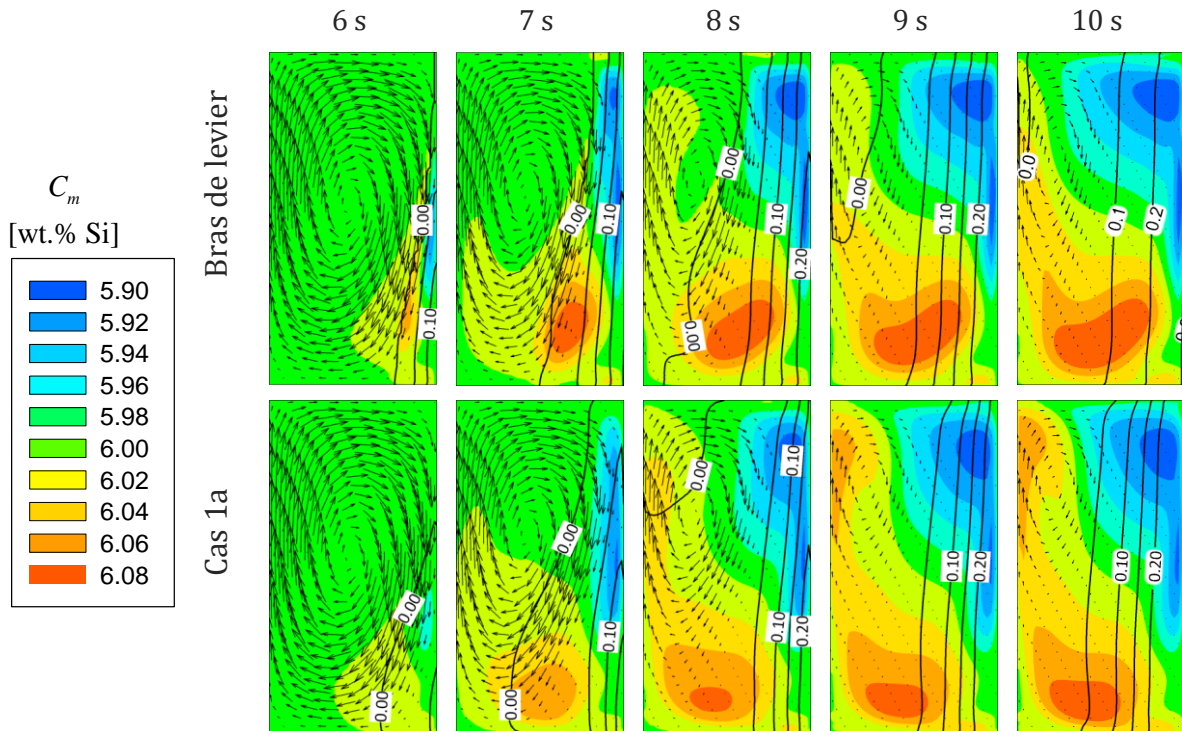


Figure 2- 11 : Carte de composition moyenne en Si, isolignes de fraction solide et vecteurs de la vitesse liquide après 6, 7, 8, 9 et 10s pour le modèle de bras de levier et pour le Cas 1a. Les isolignes sont données à partir de 0,001 avec un intervalle de 0,05, et l'échelle pour les vecteurs est toujours la même (vitesse maximale : 0,0177m/s)

La carte finale de composition en Si est donnée pour les Cas 1, Cas 2, Scheil et bras de levier Figure 2- 12. Tout d'abord, la différence entre Scheil et bras de levier met en évidence l'effet de la diffusion dans la phase solide. La macroségrégation est légèrement plus prononcée pour Scheil car la microségrégation est plus importante. Les différences restent cependant minimes, tout comme les différences avec les Cas 3, Cas 4 et Cas 5. C'est pourquoi les cartes ne sont pas reproduites ici. L'effet de la cinétique de croissance devient plus clair pour le Cas 1, où la macroségrégation est réduite comme l'effet de la surfusion n'est plus négligeable. En effet, l'équation permettant de décrire la formation des macroségrégations n'est plus l'équation (2.1) mais l'équation (2.2) et la surfusion est un paramètre déterminant pour la formation des ségrégations. La carte finale de ségrégation est également donnée pour le Cas 1b, où l'effet de la convection sur la longueur de diffusion est négligé. En négligeant ce phénomène, le transfert de soluté de l'interface vers le liquide est moins efficace et la surfusion augmente. La formation des ségrégations est alors atténuée.

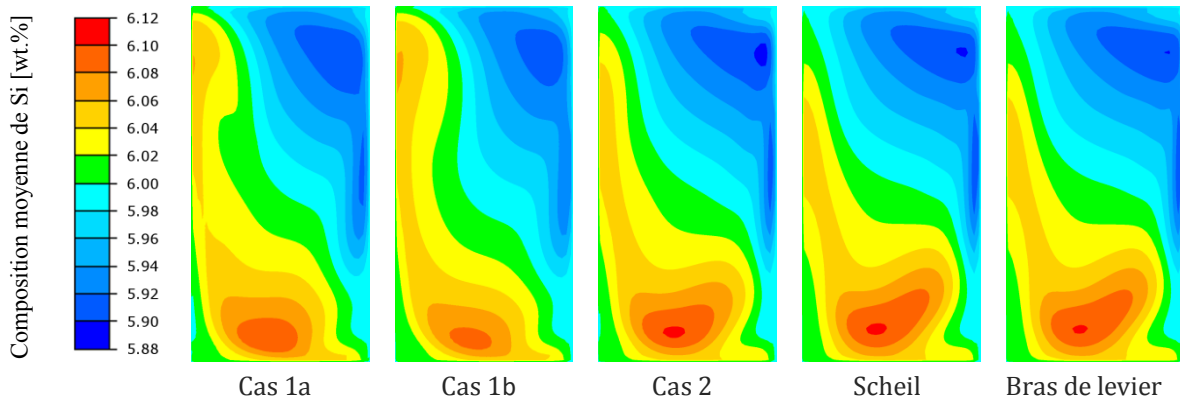


Figure 2- 12 : Cartes finales de macroségrégation pour les différents cas.

Plus précisément, voyons la vitesse de formation des ségrégations à un instant donné pour le Cas 1a et les bras de levier. La Figure 2- 13 donne cette vitesse de formation dans le lingot à  $t=8s$  pour les deux modèles. De plus, les contributions du gradient thermique et du gradient de surfusion à cette vitesse de formation sont illustrées Figure 2- 13-c et Figure 2- 13-d dans le Cas 1a. Pour les deux modèles, une ségrégation négative est formée en haut du lingot dans la zone où le gradient thermique et le champ de vitesse sont orientés dans la direction opposée, et une ségrégation positive est formée dans le bas du lingot. On remarque que, comme dans le cas purement diffusif traité au paragraphe précédent, le liquidus avance plus vite dans le Cas 1a que dans le cas bras de levier. Dans le Cas 1a, la zone pâteuse est donc plus large en bas du lingot et la perméabilité diminue. La vitesse du liquide est alors plus faible et la formation des macroségrégations est réduite.

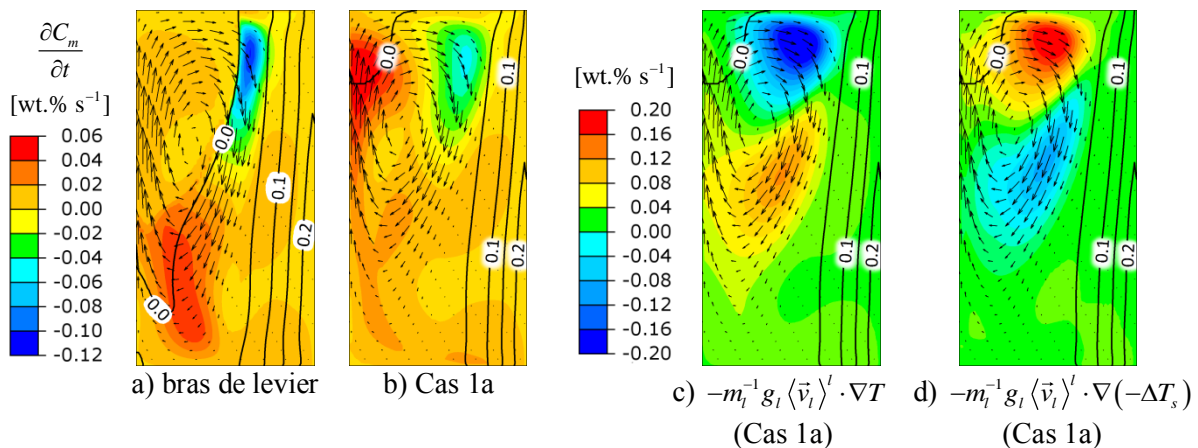


Figure 2- 13 : Vitesse d'évolution de la composition moyenne après 8s pour a) bras de levier et b) Cas 1a, et c) et d) contribution des différents termes de l'équation (2.2) pour le Cas 1a. (Les isolignes de fraction solide sont données à partir de 0,001 avec un intervalle de 0,05, et l'échelle pour les vecteurs est toujours la même (vitesse maximale : 0,01m/s))

En comparant les Figure 2- 13-a et Figure 2- 13-c, on constate que l'ordre de grandeur du taux de formation des macroségrégations induites par le gradient de température est très différent pour les Cas 1a et bras de levier. Le champ de vitesse n'étant pas très différent pour les deux modèles, cela signifie que le gradient de température est plus élevé dans le Cas 1a. Cependant, l'effet de la cinétique de croissance, à travers la surfusion, fait plus que compenser

cette différence de gradient thermique, et la formation des macroségrégations est plus faible dans le cas 1a.

Regardons maintenant plus en détail l'effet de la convection sur  $\delta_i$  à travers la formation des macroségrégations. Pour cela, la carte de vitesse instantanée de formation des ségrégations est donnée pour le Cas 1a et le Cas 1b à  $t=8s$ . L'effet de la convection sur  $\delta_i$  étant négligé dans le Cas 1b, le transport de soluté de l'interface vers la phase liquide à l'échelle microscopique est ralenti et la surfusion est plus élevée que dans le Cas 1a, comme on peut le voir Figure 2- 14-b. Le gradient de surfusion est donc plus élevé et d'après l'équation (2.2), la formation de macroségrégations est moins importante. On peut le voir Figure 2- 14-a avec la vitesse instantanée de formation des ségrégations.

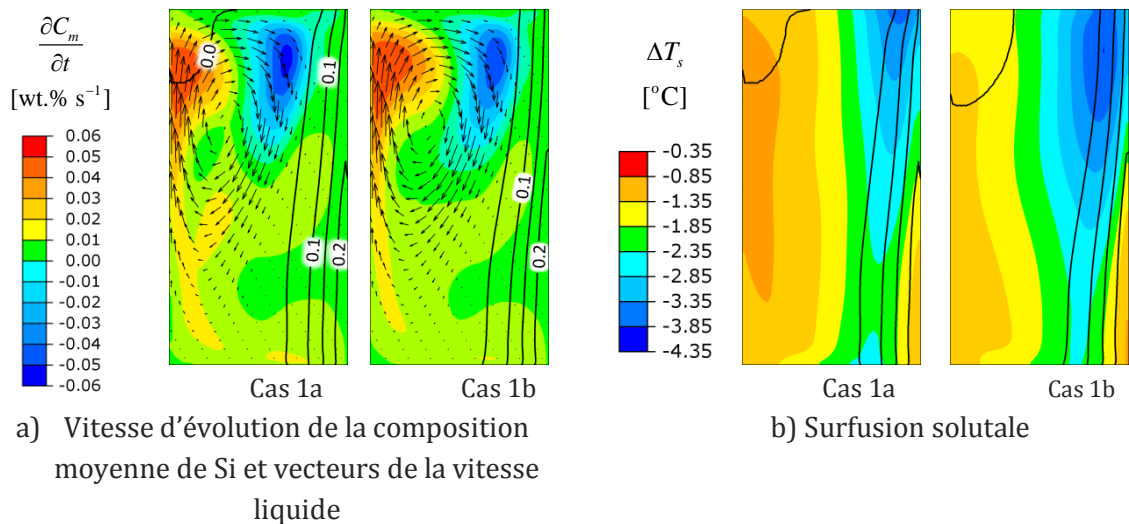


Figure 2- 14 : a) vitesse d'évolution de la composition moyenne et b) surfusion solutale, après 8s. (Les isolignes sont données à partir de 0,001 avec un intervalle de 0,05, et l'échelle pour les vecteurs est toujours la même (vitesse maximale : 0,01m/s))

La différence dans la formation des macroségrégations entre le cas 1a et le cas 1b est due à l'estimation de la longueur de diffusion dans le liquide. La Figure 2- 15 permet donc de visualiser l'effet de la convection sur  $\delta_i$ . Plus précisément, la carte de  $\delta_i/R$  est donnée à  $t=8s$  pour les deux cas. On voit clairement que la longueur de diffusion est significativement réduite dans les zones de forte fraction liquide dans le Cas 1a. L'épaisseur relative du film stagnant est donnée dans le Cas 1a Figure 2- 15-b. Lorsque la fraction solide dépasse 0,05, l'effet de la convection est négligeable puisque le film stagnant occupe toute la zone liquide. Mais lorsque la fraction solide est plus faible, l'épaisseur du film stagnant diminue jusqu'à occuper moins de 20% du liquide.

On voit donc comment la convection, en modifiant la longueur de diffusion du liquide dans les zones de faible fraction solide, impacte la formation des macroségrégations.

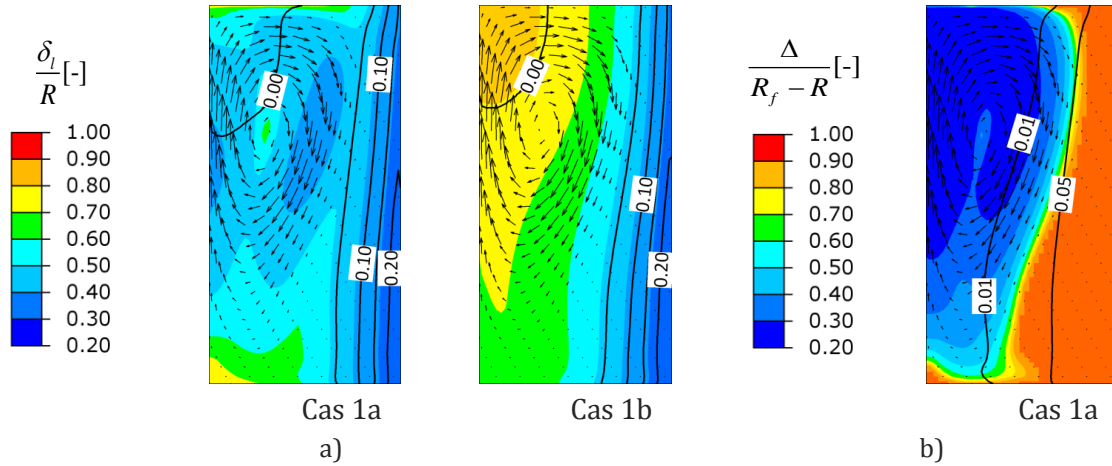


Figure 2- 15 : a) rapport de la longueur de diffusion sur le rayon de grain pour le Cas 1a et 1b, et b) épaisseur relative du film stagnant après 8s.

L'effet de la cinétique de croissance sur la formation des macroségrégations est quantifié à travers l'utilisation de l'index suivant et donnée Figure 2- 16 :

$$SI = \left[ \frac{1}{V} \int \left( \frac{\bar{C} - C_0}{C_0} \right)^2 dV \right]^{1/2} \times 100\% \quad (2.42)$$

En comparant la valeur de cet index pour le modèle de Scheil et le modèle des bras de levier, on constate que la formation des macroségrégations augmente seulement légèrement lorsque le nombre de Fourier de la phase solide passe de l'infini à zéro. Puis lorsque le nombre de Fourier de la phase liquide diminue d'environ 500 à environ 50 entre le Cas 5 et le Cas 2, la ségrégation moyenne diminue légèrement comme la surfusion augmente. Lorsque le nombre de Fourier liquide continue à diminuer, l'effet sur la diminution de la ségrégation devient plus important. Nous avons comparé l'effet du nombre de Fourier liquide sur l'index de ségrégation pour le modèle de  $\delta_l$  sans effet de la convection et avec. On peut ainsi remarquer que la convection a un effet sur la cinétique de croissance, qui elle-même impacte la formation des macroségrégations. Cet effet est d'autant plus important que le nombre de Fourier liquide est faible.

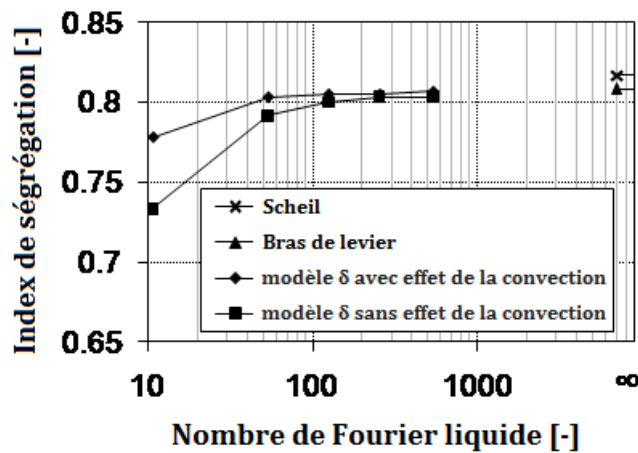


Figure 2- 16 : Index de ségrégation fonction du nombre de Fourier liquide.

## 1.6. Conclusion

Nous avons développé une nouvelle expression analytique pour la longueur de diffusion dans le liquide entourant un grain sphérique, prenant en compte à la fois l'avancée de l'interface et la convection du liquide. Le modèle a été validé par comparaison à une solution exacte dans un cas purement diffusif. Nous avons ensuite pu, à travers l'estimation de la longueur de diffusion dans le liquide, étudier l'effet de la cinétique de croissance sur la macroségrégation dans un lingot.

L'étude montre que la cinétique de croissance a un impact important sur la formation des macroségrégations, directement à travers le changement du profil de soluté à l'échelle microscopique et indirectement à travers la modification de l'écoulement. La cinétique de croissance a donc un effet sur la solidification : la croissance contrôlée par la diffusion limitée mène à l'extraction de moins de chaleur latente et de plus de chaleur sensible. Le liquidus avance donc plus vite mais la solidification est ralentie. Enfin, cette étude permet de mettre en évidence l'importance de la convection de la phase liquide à l'échelle microscopique dans la cinétique de croissance et donc dans la formation des macroségrégations. Lorsque le nombre de Fourier diminue, la prise en compte de la convection dans l'estimation de la longueur de diffusion a un impact grandissant sur l'intensité des macroségrégations. On constate d'ailleurs que dès des valeurs inférieures à 50 pour le nombre de Fourier liquide, l'impact de la convection sur la cinétique de croissance et donc sur les macroségrégations n'est plus négligeable. Celles-ci sont en effet amplifiées lorsque la convection est prise en compte. Nous utiliserons donc cette expression de la longueur de diffusion dans toutes les études présentées ensuite.

## 2. Prise en compte de la morphologie des grains

L'étude précédente a été menée en supposant les grains sphériques, mais en réalité, la morphologie des grains est plus complexe. Les grains équiaxes, initialement globulaires, sont souvent le siège d'une déstabilisation et des directions privilégiées de croissance apparaissent. Les grains sont alors caractérisés par leurs bras primaires, correspondant à ces directions privilégiées de croissance, et par les bras secondaires se formant perpendiculairement à ces premiers. Il devient alors difficile d'estimer le rejet du soluté à l'interface solide/liquide car plusieurs échelles de diffusion coexistent. La croissance des pointes des bras primaires dépend du rayon de celles-ci. La diffusion dans le liquide entourant la structure dendritique dépend de la distance entre bras secondaires, puis en dehors de la structure dendritique, elle dépend de la distance entre grains. Le modèle de croissance sphérique à deux phases (solide et liquide) utilisé jusqu'à présent ne permet pas de prendre en compte cette géométrie complexe, qui conduit à de fortes hétérogénéités en soluté dans la phase liquide. Or si la surfusion dans le liquide n'est pas correctement estimée, non seulement le couplage germination/croissance et donc la microstructure finale en est impactée, mais nous avons vu au paragraphe précédent que la macroségrégation l'est également. Nous allons donc présenter le modèle de croissance dendritique utilisé jusqu'à présent dans SOLID puis nous donnerons les caractéristiques principales du modèle à 3 phases développé par K.Tveito (Tveito K. 2013) et repris dans notre modèle macroscopique.

## 2.1. Modèle actuel de croissance dendritique

Le modèle SOLID basé sur la méthode de prise de moyenne et séparant les échelles macroscopique et microscopique est détaillé dans (C. H. Založnik M. 2010) sous l'hypothèse d'une morphologie globulaire. Seules les hypothèses principales du modèle sont donc rappelées ici. La méthode de prise de moyenne permet d'exprimer les équations moyennées de conservation de la masse et du soluté pour chacune des deux phases considérées : le liquide et le solide. Ces équations sont ensuite découplées de façon à traiter séparément les phénomènes macroscopiques et microscopiques selon la méthode « operator splitting ». A l'échelle macroscopique, la variation temporelle de la masse et du soluté moyennés n'est due qu'à la convection (la diffusion est négligée). Les bilans de masse et de soluté dans les deux phases s'écrivent donc à l'étape de transport:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(\rho_s g_s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_s g_s \langle \bar{v}_s \rangle^s) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_l g_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{v}_l \rangle^l) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s \langle \bar{v}_s \rangle^s) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l \langle \bar{v}_l \rangle^l) = 0 \end{array} \right. \quad (2.43)$$

Les phénomènes de diffusion et de croissance sont traités dans une seconde étape à l'échelle microscopique (pas de transport par convection). Les bilans de masse et de soluté à l'échelle microscopique sont alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial(\rho_s g_s)}{\partial t} = \Gamma_s \\ \frac{\partial(\rho_l g_l)}{\partial t} = -\Gamma_s \\ \frac{\partial(\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s)}{\partial t} = \Gamma_s C_s^* + \frac{\rho_s S_v D_s}{\delta_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \\ \frac{\partial(\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l)}{\partial t} = -\Gamma_s C_l^* + \frac{\rho_l S_v D_l}{\delta_l} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \end{array} \right. \quad (2.44)$$

Avec  $\Gamma_i$  le taux de production de la phase  $i$ . La conservation du soluté à l'échelle microscopique induit de plus :

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l)}{\partial t} &= 0 \\ \rightarrow \Gamma_s (C_l^* - C_s^*) &= \frac{\rho_s S_v D_s}{\delta_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \frac{\rho_l S_v D_l}{\delta_l} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \end{aligned} \quad (2.45)$$

On a ainsi le bilan de soluté à l'interface solide/liquide.

Lorsque les grains ne sont plus supposés globulaires mais dendritiques, des changements apparaissent. On différencie la fraction solide de la fraction d'enveloppe. La morphologie est alors estimée à partir de la fraction interne correspondant au rapport de la fraction solide sur la fraction d'enveloppe. Une fraction interne proche de 1 correspond donc à une morphologie globulaire et plus la fraction interne diminue, plus la morphologie devient dendritique. La morphologie finale est estimée au moment de la coalescence des grains (c'est-à-dire à la fraction d'enveloppe de blocage des grains), comme proposé par B.Appolaire dans sa thèse (Appolaire B. 1999).

A l'échelle microscopique, le calcul de vitesse de pointe  $V_{\text{pointe}}(t)$  basé sur une géométrie parabolique permet d'estimer une fraction d'enveloppe de forme octaédrique. Mais cette fraction d'enveloppe n'intervient nullement dans le bilan de soluté à l'interface. La surface spécifique de l'interface reste celle de l'interface solide/liquide de forme sphérique. Une cinquième équation est simplement ajoutée au système donné équation (2.44), permettant d'estimer la fraction d'enveloppe  $g_{\text{env}}$  supposée de forme octaédrique en fonction de la longueur des bras primaires à l'instant  $t$   $R_{\text{bras}}(t)$  :

$$g_{\text{env}} = \frac{4}{3} N R_{\text{bras}}^3 \quad \text{avec} \quad R_{\text{bras}}(t) = R_{\text{bras}}^0 + \int_{t_0}^t V_{\text{pointe}}(t) dt \quad (2.46)$$

A l'échelle macroscopique, la morphologie des grains impacte le mouvement des grains. La force de trainée induite par leur déplacement dans le liquide n'est plus liée à la fraction et au rayon de la phase solide mais à la fraction d'enveloppe et au rayon de sphère équivalente de l'enveloppe :

$$\overline{M} = \frac{3g_s C_D \text{Re} \mu_l}{4(2R_s)^2 g_l} \left( \langle \overline{v}_l \rangle^l - \langle \overline{v}_s \rangle^s \right) \rightarrow \overline{M} = \frac{3g_{\text{env}} C_D \text{Re} \mu_l}{4(2R_{\text{env}})^2 (1 - g_{\text{env}})} \left( \langle \overline{v}_l \rangle^l - \langle \overline{v}_s \rangle^s \right) \quad (2.47)$$

Avec  $R_{\text{env}} = \left( \frac{3g_{\text{env}}}{4\pi N} \right)^{1/3}$  le rayon de l'enveloppe sphérique équivalente à l'enveloppe

octaédrique en termes de fraction d'enveloppe et  $C_D$  une fonction de  $\text{Re}$  et  $g_l$ . De plus, la fraction d'enveloppe est utilisée pour le critère de blocage des grains : on bloque les grains au-dessus d'une fraction d'enveloppe fixée et non plus au-dessus d'une fraction solide fixée. Ainsi, la morphologie des grains n'est pas prise en compte dans le modèle microscopique de croissance mais modifie le transport et le blocage des grains à l'échelle macroscopique.

## 2.2. Modèle de croissance à trois phases

On a vu dans l'étude bibliographique que dès 1987, des modèles ont été développés afin de séparer le liquide dans le voisinage immédiat du grain du liquide plus éloigné du grain (T. P. Rappaz M. 1987). Le modèle présenté ici permet cette séparation des échelles tout en conservant un modèle macroscopique à deux phases. Pour cela, la masse volumique et la vitesse intrinsèque des phases liquide extragranulaire et intragranulaire sont supposées identiques :  $\rho_e = \rho_d = \rho_l$  et  $\langle \vec{v}_l \rangle^e = \langle \vec{v}_l \rangle^d = \langle \vec{v}_l \rangle^l$ . En effet, les bilans de masse et de soluté dans les phases liquide extragranulaire et intragranulaire s'écrivent dans l'étape de transport:

$$\begin{cases} \frac{\partial(\rho_l g_e)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_e \langle \vec{v}_l \rangle^l) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_l g_d)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_d \langle \vec{v}_l \rangle^l) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_l g_e \langle C_l \rangle^e)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_e \langle C_l \rangle^e \langle \vec{v}_l \rangle^l) = 0 \\ \frac{\partial(\rho_l g_d \langle C_l \rangle^d)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_d \langle C_l \rangle^d \langle \vec{v}_l \rangle^l) = 0 \end{cases} \quad (2.48)$$

En combinant les bilans des deux phases liquides, on retrouve le bilan pour la phase liquide totale donné équation (2.43). L'étape de transport n'est donc pas modifiée par la prise en compte d'une troisième phase à l'échelle microscopique.

Le profil de soluté dans ces trois phases au cours de la solidification est donné Figure 2-17 :

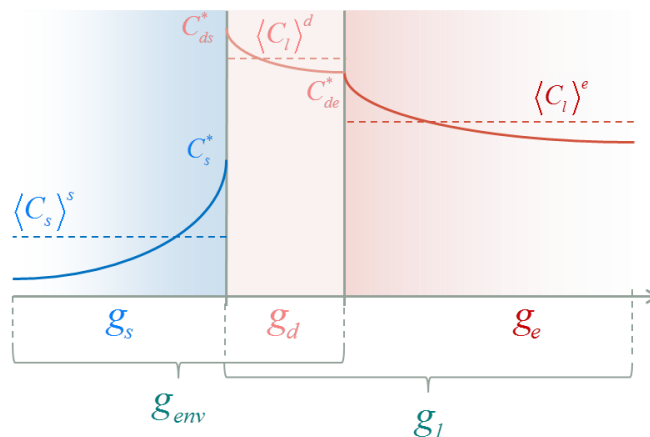


Figure 2- 17 : Schéma illustratif pour le modèle de croissance à trois phases.

La croissance n'est plus liée à l'avancée d'une mais de deux interfaces : les équations microscopiques de croissance sont donc modifiées. La conservation de la masse des trois phases s (solide), d (liquide intragranulaire) et e (liquide extragranulaire) s'écrit :



$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_s g_s) = \Gamma_s \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_d) = \Gamma_{env} - \Gamma_s \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_e) = -\Gamma_{env} \end{cases} \quad (2.49)$$

La croissance de la phase intragranulaire dépend donc à la fois de la croissance du solide et de l'enveloppe. La conservation du soluté dans chacune des phases donne :

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s) = \Gamma_s C_s^* + \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_d \langle C_l \rangle^d) = \Gamma_{env} C_{de}^* - \Gamma_s C_{ds}^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{de}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^d) + \frac{\rho_l S_v^s D_l}{\delta_{ds}} (C_{ds}^* - \langle C_l \rangle^d) \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_e \langle C_l \rangle^e) = -\Gamma_{env} C_{de}^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^e) \end{cases} \quad (2.50)$$

Le bilan de soluté aux interfaces s/d et d/e s'écrit :

$$\begin{cases} \Gamma_s (C_{ds}^* - C_s^*) = \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \frac{\rho_l S_v^s D_l}{\delta_{ds}} (C_{ds}^* - \langle C_l \rangle^d) \\ 0 = \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{de}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^d) + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^e) \end{cases} \quad (2.51)$$

On peut réécrire le bilan de soluté dans la phase liquide intragranulaire d en utilisant les bilans aux interfaces s/d et d/e :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_d \langle C_l \rangle^d) = \\ \Gamma_{env} C_{de}^* - \Gamma_s C_{ds}^* - \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^e) + \Gamma_s (C_{ds}^* - C_s^*) - \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \end{aligned} \quad (2.52)$$

Soit :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_d \langle C_l \rangle^d) = \Gamma_{env} C_{de}^* - \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_{de}^* - \langle C_l \rangle^e) - \Gamma_s C_s^* - \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \quad (2.53)$$

En supposant le liquide intragranulaire homogène en composition, le profil de composition est modifié comme illustré Figure 2- 18:

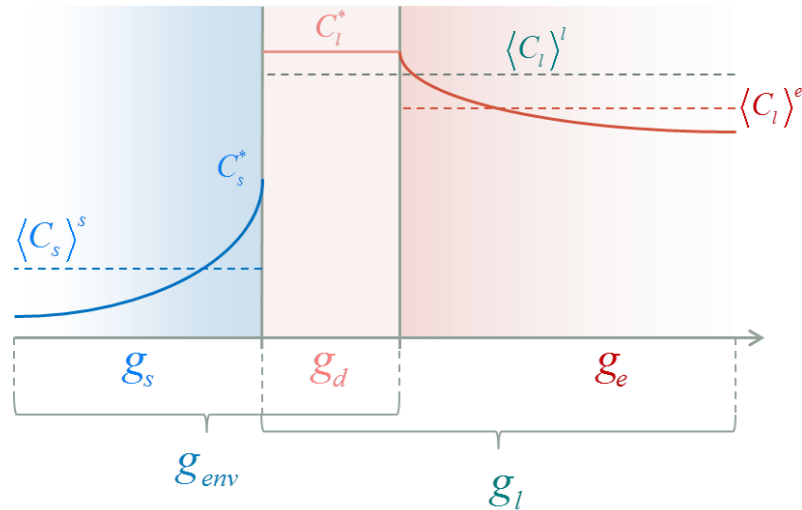


Figure 2- 18 : Schéma illustratif pour le modèle de croissance à trois phases simplifié dans le cas d'un liquide intragranulaire homogène en composition.

On peut alors simplifier ce bilan de soluté dans la phase intragranulaire comme :

$$\begin{aligned} & C_l^* \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_d) + \rho_l g_d \frac{\partial}{\partial t} (C_l^*) \\ &= \left( \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_d) + \Gamma_s \right) C_l^* - \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_l^* - \langle C_l \rangle^e) - \Gamma_s C_s^* - \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \end{aligned} \quad (2.54)$$

Or on peut relier la composition moyenne dans le liquide extragranulaire à la composition à l'interface et la composition moyenne de toute la phase liquide :

$$\langle C_l \rangle^e = \frac{g_l \langle C_l \rangle^l - g_d C_l^*}{g_e} \quad (2.55)$$

En remplaçant la composition moyenne dans le liquide extragranulaire par cette expression, le bilan devient très proche du bilan à l'interface solide/liquide dans le modèle à deux phases donné équation (2.45):

$$\frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \frac{g_l}{g_e} + \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) = \Gamma_s (C_l^* - C_s^*) - \rho_l g_d \frac{\partial}{\partial t} (C_l^*) \quad (2.56)$$

Les valeurs utilisées en entrée de l'étape de croissance pour les compositions sont celles obtenues après l'étape de transport : on ne connaît donc pas à cette étape du calcul la variation temporelle de  $C_l^*$ . K.Tveito a montré dans (Tveito K. 2013) que ce terme peut être négligé sans introduire d'erreur importante sur l'estimation de la surfusion maximale. Le couplage germination/croissance n'est donc pas affecté par cette simplification, seule la dendritisation est légèrement surestimée.

Ainsi, seuls la surface spécifique de l'enveloppe et le rapport de la fraction liquide sur la fraction de liquide extragranulaire interviennent pour caractériser la morphologie des grains, et le bilan d'interface est ramené à un système à deux phases :

$$\frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \frac{g_l}{g_e} + \frac{\rho_s S_v^s D_s}{\delta_{sd}} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) = \Gamma_s (C_l^* - C_s^*) \quad (2.57)$$

De même, le bilan de soluté dans les phases intragranulaire et extragranulaire donné (2.50) permet d'exprimer le bilan de soluté dans toute la phase liquide :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l) \\ &= -\Gamma_{env} C_{ed}^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_{ed}^* - \langle C_l \rangle^e) + \rho_l g_d \frac{\partial}{\partial t} (\langle C_l \rangle^d) + \langle C_l \rangle^d (\Gamma_{env} - \Gamma_s) \end{aligned} \quad (2.58)$$

Ce bilan peut être réécrit dans le cas d'un profil de soluté comme illustré Figure 2- 18:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l) = -\Gamma_s C_l^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} (C_l^* - \langle C_l \rangle^e) + \rho_l g_d \frac{\partial}{\partial t} (C_l^*) \quad (2.59)$$

En négligeant la variation temporelle de la composition à l'équilibre et en utilisant l'équation (2.55), le bilan de soluté dans le liquide devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l) = -\Gamma_s C_l^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_{ed}} \frac{g_l}{g_e} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \quad (2.60)$$

Il est donc possible de prendre en compte facilement une troisième phase dans le modèle à deux phases actuel. L'étape de transport n'est pas modifiée et l'étape de croissance, combinant le bilan dans les deux phases (solde et liquide) et le bilan à l'interface solide/liquide, est très légèrement modifiée :

$$\left\{ \begin{aligned} & \frac{\partial (\rho_s g_s \langle C_s \rangle^s)}{\partial t} = \Gamma_s C_s^* + \frac{\rho_s S_v D_s}{\delta_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \\ & \frac{\partial (\rho_l g_l \langle C_l \rangle^l)}{\partial t} = -\Gamma_s C_l^* + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_l^{env}} \frac{g_l}{g_e} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \\ & \Gamma_s (C_l^* - C_s^*) = \frac{\rho_s S_v D_s}{\delta_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \frac{\rho_l S_v^{env} D_l}{\delta_l^{env}} \frac{g_l}{g_e} (C_l^* - \langle C_l \rangle^l) \end{aligned} \right. \quad (2.61)$$

### 2.3. Relations complémentaires

La forme de pointe était supposée jusqu'à présent paraboloidale. Or, Nielsen et al. ont montré que la forme de pointe hémisphérique permettait d'estimer de façon plus précise la fraction interne et donc la morphologie dans le cas d'alliages Al-Cu à différentes compositions affinés par différents taux de Al-5Ti-1B (Nielsen O. 2001). Sous cette hypothèse et pour un alliage binaire, la vitesse de pointe prend la forme (Kurz W. 1986):

$$V_{pointe} = \frac{D_l}{\pi^2 \Gamma m (k-1) C_l^*} \Delta T^2 \quad (2.62)$$

Avec  $\Gamma$  le coefficient de Gibbs-Thomson et  $\Delta T$  la surfusion dans la phase extragranulaire  $\Delta T = m(C_l^* - \langle C_l \rangle^e)$ . Nous testerons donc les deux modèles de pointe dans les études présentées dans les chapitres suivants lorsque la morphologie sera supposée dendritique.

On suppose la forme d'enveloppe octaédrique, comme dans le modèle à 2 phases préexistant. Le rayon de bras primaire déduit à chaque instant de la vitesse de pointe par la relation :

$$\frac{dR_{bras}}{dt} = V_{pointe} \quad (2.63)$$

permet de déterminer la fraction d'enveloppe  $g_{env}$ . La surface spécifique d'enveloppe est alors simplement :

$$g_{env} = \frac{4}{3} NR_{bras}^3 ; S_v^{env} = 4\sqrt{3}R_{bras}^2 N \quad (2.64)$$

On obtient le rayon moyen de la phase solide (supposée sphérique) noté  $R_s$  de la même manière, mais lorsque les grains ne sont plus globulaires, la surface spécifique de la phase solide ne peut plus être rapportée à des sphères : la surface d'échange augmente. C'est pourquoi B.Appolaire a proposé dans sa thèse une relation liant la surface spécifique du solide  $S_s$  à la surface spécifique de l'enveloppe et à la morphologie des grains (Appolaire B. 1999):

$$R_s = \left( \frac{3g_s}{4\pi N} \right)^{1/3} ; S_v^s = \frac{4}{\lambda_2} g_i^{1/2} g_{env} (1 - g_i^m) + g_i^m S_v^{env} \quad (2.65)$$

L'exposant  $m$  est fixé à 6 dans (Nielsen O. 2001), et  $\lambda_2$  est la distance interdendritique secondaire, distance caractéristique des structures dendritiques. Ne connaissant pas sa valeur, on suppose qu'il est un sous-multiple du rayon d'enveloppe :

$$\lambda_2 = \frac{R_{env}}{n} \quad (2.66)$$

Et l'on fixe arbitrairement  $n=5$  pour le moment. L'expression de la longueur de diffusion reste la même mais elle n'est plus estimée à l'interface solide/liquide mais à l'interface grain/liquide extragranulaire. Le modèle de diffusion ayant été développé en supposant le grain sphérique, on cherche à exprimer un rayon moyen de l'enveloppe ainsi qu'une vitesse moyenne de croissance de l'enveloppe. Le rayon de l'enveloppe sphérique équivalente est alors simplement :

$$R_{env} = \left( \frac{3g_{env}}{4\pi N} \right)^{1/3} \quad (2.67)$$

Et la vitesse moyenne de croissance de cette enveloppe sphérique équivalente est :

$$V_{env} = \frac{1}{4\pi R_{env}^2 N} \frac{dg_{env}}{dt} = \frac{1}{4\pi R_{env}^2 N} \frac{d}{dt} \left( \frac{4}{3} R_{bras}^3 N \right) \quad (2.68)$$

$$\Rightarrow V_{env} = \frac{1}{\pi} \left( \frac{R_{bras}}{R_{env}} \right)^2 V_{pointe}$$

L'interface grain/liquide extragranulaire située à  $R_{env}$  se déplace alors à la vitesse  $V_{env}$  (correspondant à la vitesse de croissance de l'enveloppe sphérique équivalente).

#### 2.4. Impact du modèle de diffusion solutale sur la croissance

Les modèles de croissance dendritique à deux et trois phases ayant été présentés, voyons leur impact sur l'estimation de la solidification d'un système purement diffusif. Les phénomènes macroscopiques de transport peuvent ainsi être négligés. Le système étudié a été défini par Rappaz et Thevoz dans (T. P. Rappaz M. 1987) : un alliage Al-5wt.%Si dont les propriétés sont données en annexe est refroidi à 45K/s.

Trois tailles finales de grains sont étudiées ; A : 0,1mm, B : 1mm et C : 10mm. La densité de germes, adaptée à la taille finale de grain souhaitée d'après l'expression  $N_{nuc} = \frac{3}{4\pi R_f^3}$ , est activée au liquidus. La compétition germination/croissance n'est donc pas étudiée ici, et seul l'impact du modèle de croissance est illustré.

La Figure 2- 19 représente l'évolution temporelle de la température obtenue par 5 modèles de croissance:

- Modèle de croissance globulaire (en vert).
- Modèle de croissance dendritique à deux phases actuellement utilisé dans SOLID: modèle de pointe parabolique, surface d'enveloppe octaédrique (en bleu).
- Modèle de croissance dendritique à trois phases : modèle de pointe parabolique, surface d'enveloppe octaédrique (en violet).
- Modèle de croissance dendritique à trois phases : modèle de pointe sphérique, surface d'enveloppe sphérique (en rouge).
- Modèle de croissance dendritique à trois phases : modèle de pointe sphérique, surface d'enveloppe octaédrique (en orange).

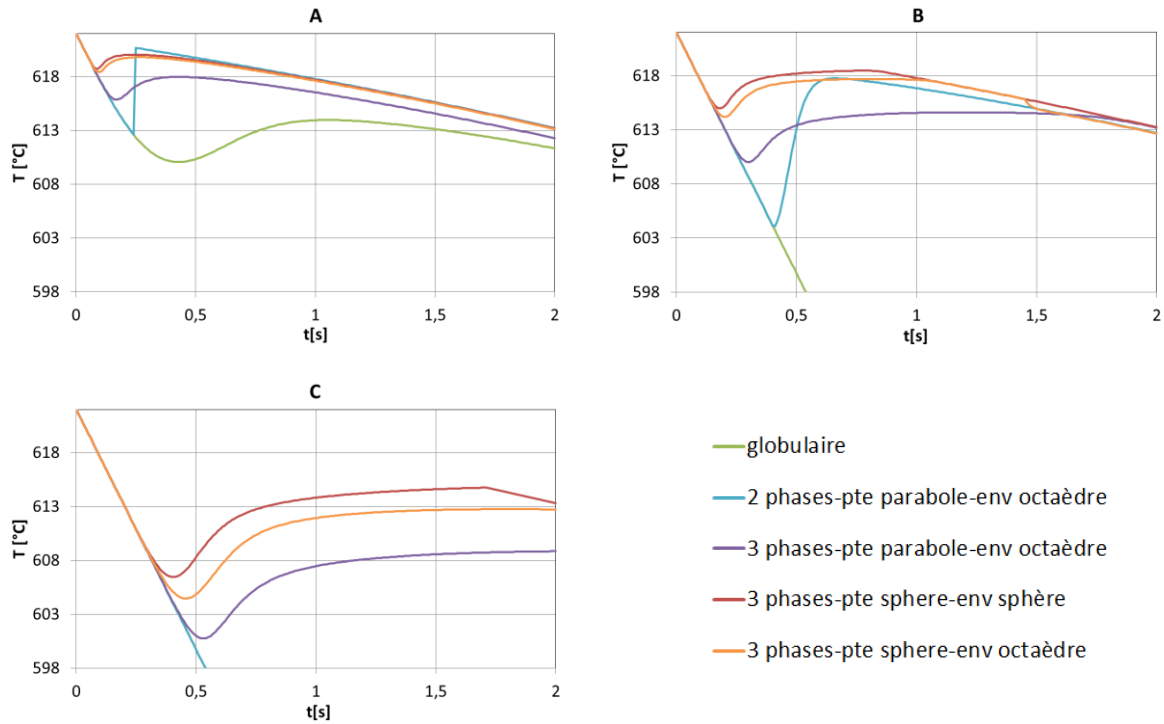


Figure 2- 19 : Evolution de la température obtenue par 5 modèles de croissance pour un cas 0D, pour l'alliage Al-5wt.%Si, refroidi à  $dT/dt=45\text{K/s}$ , pour trois tailles finales de grain : A-0,1mm, B-1mm et C-10mm (tous les germes sont activés au liquidus).

On constate que la prise en compte de la morphologie est indispensable pour estimer correctement la croissance des grains. En effet, lorsque la taille finale de grains est supérieure à 1mm (Cas B et C), le modèle globulaire prédit une solidification purement eutectique. Il en est de même pour le modèle dendritique à deux phases dans le Cas C.

On sait que diminuer la densité de germes favorise la dendritisation. Il est donc cohérent que le modèle globulaire ne permette pas de prédire correctement la croissance des grains lorsque les conditions de solidification tendent à rendre la structure dendritique.

Le modèle dendritique à deux phases prédit strictement la même évolution du système que le modèle globulaire tant que la fraction d'enveloppe n'atteint pas une fraction limite  $g^{\text{bloc}}$  correspondant à la coalescence des enveloppes, imposée dans le modèle. Une fois cette limite dépassée, l'équilibre est forcé à travers l'augmentation du coefficient de diffusion dans le liquide par un facteur 1000. En effet, lorsque la fraction d'enveloppe devient suffisamment grande, les interactions entre les grains ne sont plus négligeables. Le profil de soluté dans le liquide est alors supposé uniforme et l'équilibre est artificiellement imposé. On peut le constater dans le Cas A, à travers l'évolution de la température (Figure 2- 19) et de la fraction solide (Figure 2- 20). La Figure 2- 20 donne l'évolution de la fraction solide, de la fraction d'enveloppe et de la fraction interne qui en découle, dans le Cas A et pour les cinq modèles de croissance.

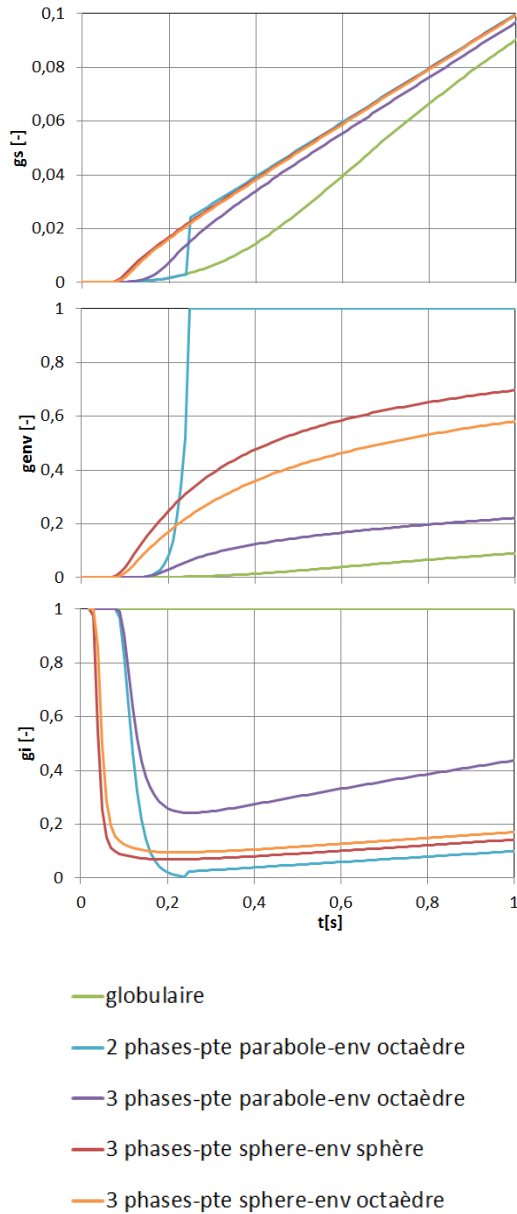


Figure 2- 20 : (a) Evolution de la fraction solide, de la fraction d’enveloppe et de la fraction interne, obtenues par 5 modèles de croissance pour un cas 0D, pour l’alliage Al-5wt.%Si, refroidi à  $dT/dt=45K/s$ , pour une taille finale de grain de 0.1mm (Cas A) (tous les germes sont activés au liquidus).

La solution obtenue par le modèle dendritique à 2 phases ne diffère du modèle globulaire qu’en termes de fraction d’enveloppe. Celle-ci est désormais supérieure à la fraction solide. Puis dès que les grains se touchent (ce que l’on suppose vrai lorsque la fraction d’enveloppe atteint 0,6), le système est mis à l’équilibre, ce qui se traduit par un saut de température et de fraction solide. Cette fraction limite d’enveloppe est fixée à 0,6, mais on constate que modifier sa valeur change très peu l’évolution de la température : la fraction d’enveloppe croît très rapidement (en moins de 0,1s) donc retarder la mise à l’équilibre (en augmentant la fraction d’enveloppe limite) retarde très peu le moment de la recalescence.

Le modèle à trois phases ayant les mêmes caractéristiques que le modèle à deux phases (pointe parabolique, enveloppe octaédrique) fournit des résultats très différents. La recalescence est plus rapide et la morphologie reste tout le temps moins dendritique (Figure 2- 19-b). La croissance de la phase solide est en effet plus rapide aux premiers instants de la solidification et celle de l'enveloppe beaucoup plus lente. La croissance de la phase solide étant liée au gradient solutal dans le liquide extragranulaire et à sa surface spécifique d'échange avec le liquide, elle est plus rapide avec le modèle à trois phases. La surfusion diminue donc plus rapidement et l'enveloppe croît moins vite. Tout ceci concorde pour mener à une morphologie plus globulaire.

L'effet du modèle de pointe et de la forme de l'enveloppe a également été testé avec le modèle à trois phases. Pour un modèle de vitesse de pointe donné, la forme de l'enveloppe (sphérique ou octaédrique) a une moindre influence sur les résultats. On peut le constater Figure 2- 20 pour un modèle de pointe hémisphérique. L'évolution de la fraction solide et de la fraction d'enveloppe sont très similaires pour une enveloppe sphérique (en rouge) et une enveloppe octaédrique (en orange).

Le choix du modèle de pointe est par contre critique, aussi bien pour l'estimation de la recalescence que pour la morphologie. Un modèle de pointe hémisphérique (en orange) mène à une surfusion plus faible et une morphologie plus dendritique que le modèle de pointe parabolicoïdale (en violet). En effet, à une surfusion donnée, la vitesse de pointe obtenue par le modèle hémisphérique est plus élevée que celle obtenue par le modèle parabolique. La fraction d'enveloppe augmente donc plus rapidement et la morphologie tend à être plus dendritique. De plus, la croissance de l'enveloppe et de la phase solide étant liées dans le modèle 3 phases, la vitesse de pointe impacte également l'évolution de la fraction solide. La fraction solide augmentant plus rapidement dans le cas du modèle de pointe hémisphérique, la recalescence est plus rapide (Figure 2- 19).

## 2.5. Choix du modèle de croissance

Après avoir comparé les différents modèles de croissance dendritique, l'objectif est de choisir le modèle permettant l'estimation la plus précise des résultats expérimentaux. Pour cela, nous comparons la courbe de refroidissement obtenue par l'expérience (T. P. Rappaz M. 1987) et par notre modèle dans le cas d'un échantillon de l'alliage Al-7wt.%Si refroidi à 0,3K/s avec ou sans affinant. On peut voir le type de structures obtenues avec et sans affinant Figure 2- 21. Des mesures post mortem ont permis aux auteurs de déterminer une taille finale de grains, qui est utilisée dans le modèle (à travers une densité de germes activée au liquidus).



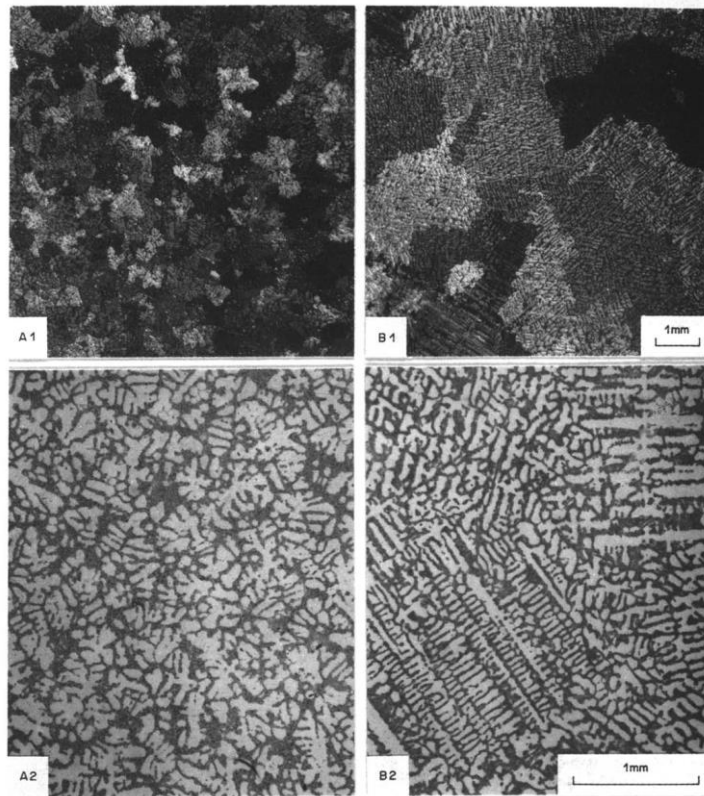


Figure 2- 21 : Micrographes de Al-7wt.%Si (A1 et A2) avec 25 ppm de Ti et (B1 et B2) sans affinant à deux échelles différentes. Tiré de (T. P. Rappaz M. 1987).

Les données thermodynamiques utilisées dans le modèle sont issues de (Gandin Ch.A. 2010). La Figure 2- 22 montre la comparaison des courbes de refroidissement mesurées (en noir) et estimées numériquement (en couleur) pour les deux échantillons, pour différents modèles de croissance. Comme on l'attendait, le modèle à 2 phases (Figure 2- 22-a) ne permet de prédire ni la courbe de refroidissement pour l'alliage affiné (en bleu), ni celle pour l'alliage non affiné (en rouge). La fraction limite d'enveloppe est fixée à 0,6 mais comme dans le cas précédent, la valeur choisie modifie peu l'estimation de la morphologie finale. En effet, lorsque la fraction d'enveloppe augmente de  $g_{env}=0,1$  et  $g_{env}=0,99$ , la fraction interne ne varie que de  $g_i=0,02$  à  $g_i=0,005$ . Elle reste donc dans tous les cas extrêmement dendritique. Le modèle à trois phases utilisant le modèle de pointe hémisphérique fournit les mêmes résultats pour les deux formes d'enveloppes utilisées (Figure 2- 22-c et Figure 2- 22-d): il permet d'estimer précisément la recalescence dans le Cas A (avec affinant) mais sous-estime la recalescence dans le Cas B. A l'inverse, le modèle à trois phases utilisant le modèle de pointe paraboloidale permet d'estimer la recalescence dans le Cas B non affiné mais pas dans le Cas A affiné.

Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par Nielsen et al. dans (Nielsen O. 2001) dans le cas d'un alliage affiné. On peut donc supposer que dans le cas de structures peu fortement dendritiques, comme elles tendent à l'être lorsque l'alliage est affiné, le modèle de pointe hémisphérique est adapté. Au contraire, lorsque les structures sont plus dendritiques, le modèle de pointe paraboloidale permet une meilleure estimation de la recalescence.

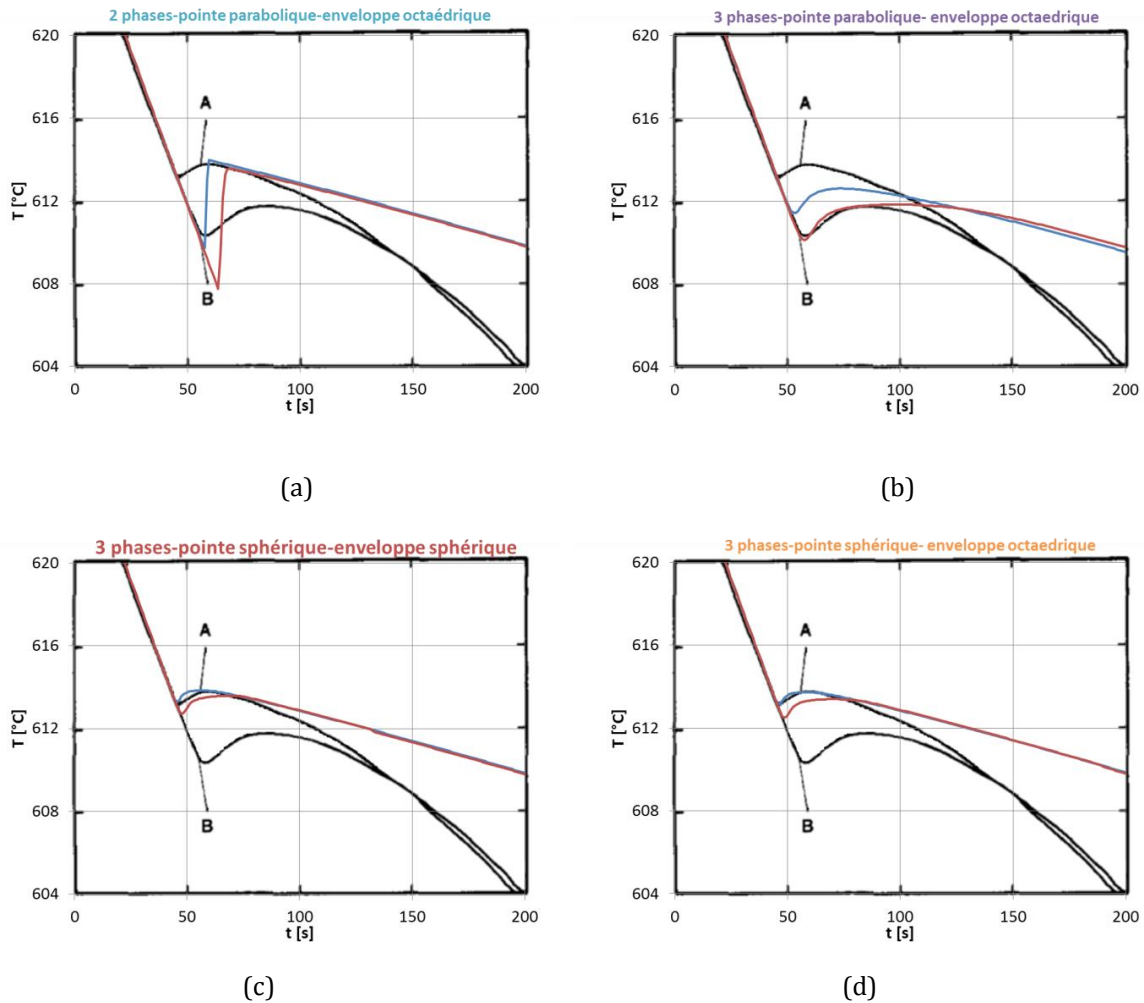


Figure 2- 22 : Comparaison de l'évolution de la température obtenue par l'expérience (T. P. Rappaz M. 1987) et par le modèle pour l'alliage Al-7wt.%Si, refroidi à  $dT/dt=0,3K/s$ , pour deux tailles finales de grain : A-1mm (en bleu) et B-3mm (en rouge) (tous les germes sont activés au liquidus). (a) modèle initial à deux phases, et modèle à trois phases avec (b) pointe paraboloidale et enveloppe octaédrique, (c) pointe hémisphérique et enveloppe sphérique et (d) pointe hémisphérique et enveloppe octaédrique.

Cependant, la structure des grains évolue au cours de la solidification et n'est pas nécessairement homogène dans un système macroscopique. Il est donc difficile de justifier l'utilisation de l'un ou l'autre de ces modèles de pointe. Dans les chapitres suivants, nous étudierons donc la formation des macroségrégations et des microstructures pour ces deux modèles de pointe.

### 3. Conclusion

L'étude bibliographique a permis de mettre en évidence des pistes d'améliorations du modèle de croissance. Nous avons alors choisi de travailler sur l'estimation de la longueur de diffusion dans la phase liquide et sur la prise en compte de la morphologie des grains à travers une troisième phase à l'échelle microscopique. Tout ceci a pour objectif d'améliorer l'estimation des profils en soluté à l'échelle du grain. Or nous avons vu que les gradients solutaux ont non seulement un impact sur la germination et la croissance à l'échelle

microscopique mais ils impactent également la formation des macroségrégations. Dès que le nombre de Fourier devient inférieur à 50, la macroségrégation est en effet impactée par la cinétique de croissance. L'amélioration du modèle microscopique doit donc permettre de mieux estimer les hétérogénéités de composition et de taille de structure à l'échelle du produit.

Pour l'instant, la croissance a été étudiée seule mais nous avons vu que c'est le couplage germination/croissance qui détermine la microstructure finale. L'objectif est donc désormais d'utiliser ce modèle de croissance combiné à une loi de germination afin d'étudier le phénomène de couplage. De plus, à l'échelle macroscopique, les phénomènes de transport par convection et par diffusion impactent également cet équilibre. Nous chercherons donc à étudier l'effet de ces phénomènes de transport, et plus particulièrement du transport des grains et des germes, sur la formation des hétérogénéités de composition et de tailles de structures. Enfin, nous chercherons à voir dans quelle mesure la prise en compte de la morphologie des grains modifie l'estimation de ces hétérogénéités.



# Chapitre III : Compétition germination/croissance en présence de transport : impact sur la formation des hétérogénéités à l'échelle macroscopique

## 1. Introduction

La prédiction de la formation des microstructures lors de la solidification est particulièrement importante dans l'industrie. Des modèles multi-échelles de solidification sont développés depuis des décennies afin de relier les conditions macroscopiques de solidification aux microstructures formées. L'étude bibliographique a permis de mettre en évidence les mécanismes microscopiques de la formation des structures ainsi que leur couplage avec les phénomènes macroscopiques de transport. Ainsi, le couplage entre germination et croissance est primordial dans la prédiction des structures de solidification. Le modèle de croissance ayant été amélioré, nous pouvons désormais l'utiliser de façon à étudier le couplage germination/croissance et l'impact des phénomènes de transport sur celui-ci.

A l'échelle microscopique, ce couplage dépend déjà des propriétés de l'alliage, du refroidissement et de la loi de germination. Nous allons donc étudier l'impact de la loi de distribution en taille des germes sur la densité finale de grains. Nous verrons ainsi si notre modèle microscopique permet de reproduire les tailles de grains mesurées expérimentalement.

Puis dans une seconde partie, nous étudierons l'impact des phénomènes de transport sur ce couplage, afin d'analyser la formation des hétérogénéités de composition et de taille de structures à l'échelle macroscopique. En effet, à l'échelle du produit, non seulement les conditions de refroidissement ne sont pas uniformes mais le mouvement du liquide, des grains et des germes modifie localement le couplage, induisant des hétérogénéités de taille de structures et de composition. Si la convection du liquide, et dans une moindre mesure le mouvement des grains, ont déjà été pris en compte et analysés, aussi bien en lingot qu'en coulée semi-continue (cf chapitre I), le mouvement des germes n'a jusqu'à présent jamais été considéré. Or les germes peuvent être entraînés par le liquide ou sédimer mais rien ne peut justifier qu'ils restent fixes. La distribution en taille des germes peut localement être modifiée par ce phénomène de transport, et impacter le couplage germination-croissance. Enfin, la morphologie des grains a un impact direct sur leur cinétique de croissance ainsi que sur leur empilement à l'échelle macroscopique. Nous étudierons donc l'effet du mouvement des grains ET des germes ainsi que l'effet de la morphologie des grains sur la formation des structures et des macroségrégations en lingot.

## 2. Couplage germination/croissance

Avant d'étudier la solidification d'un système de taille industrielle, nous commençons par étudier un système de taille suffisamment faible pour pouvoir négliger les phénomènes de transport convectif. Le couplage germination/croissance peut ainsi être étudié seul. Pour ce faire, nous allons considérer la solidification de l'alliage Al-6wt.%Cu dont les propriétés thermodynamiques sont données en annexe. Les masses volumiques des phases solide et liquide sont supposées constantes et égales de sorte que tout mouvement de convection est négligé. Les autres données thermodynamiques sont tirées de (Kumar A. 2008).

Nous étudions un système correspondant au volume élémentaire représentatif (VER) dans l'approche de la prise de moyenne. Le système est fermé et refroidi par une extraction de chaleur constante fixée à  $q=4.10^6\text{W/m}^3$ . La vitesse de refroidissement est donc égale à  $\frac{dT}{dt} = \frac{q}{\rho C_p} = 1,48^\circ\text{C/s}$  avant le début de la solidification, ce qui correspond à une vitesse de refroidissement standard en coulée semi-continue d'aluminium, comme nous le verrons au chapitre suivant.

### 2.1. Germination instantanée

Dans un premier temps, regardons l'impact des caractéristiques de la loi de germination sur la recalescence et la solidification dans le cas d'une loi très simplifiée : la germination est supposée instantanée et représentée par une fonction de Dirac. Tous les germes sont donc supposés avoir la même taille et sont activés à une valeur unique de surfusion. Ce type de loi est souvent utilisé dans les modèles macroscopiques de solidification, comme on a pu le voir dans le premier chapitre.

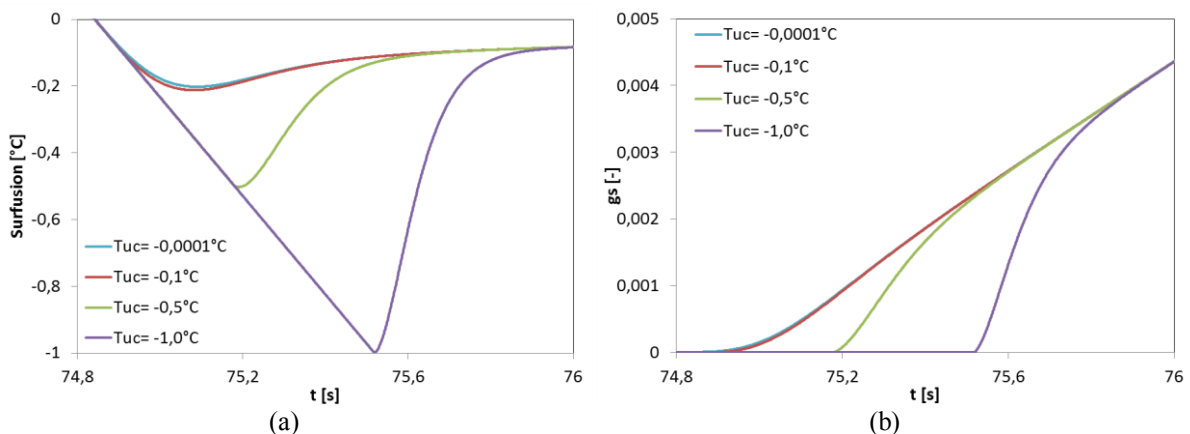


Figure 3- 1 : Evolution (a) de la surfusion et (b) de la fraction solide avec le temps pour une densité de germes  $N_{nuc}=10^{12}\text{m}^{-3}$  activée à quatre valeurs différentes de la surfusion (modèle de croissance globulaire).

On fixe tout d'abord la densité de germes à  $10^{12}\text{m}^{-3}$  et on fait varier la surfusion d'activation. La Figure 3- 1 donne l'évolution dans le temps de la surfusion et de la fraction solide pour quatre valeurs de la surfusion d'activation des germes. On utilise dans un premier temps le modèle de croissance globulaire. On constate que, comme attendu, la recalescence

début plus tôt lorsque la surfusion d'activation diminue en valeur absolue. Les grains étant formés plus tôt, la chaleur dégagée par la croissance compense la chaleur extraite du système plus rapidement. Lorsque la surfusion d'activation est élevée ( $-0,5^{\circ}\text{C}$ ), la recalescence est même quasiment instantanée. Au contraire, lorsque la surfusion d'activation est réduite, la surfusion atteinte au moment de la recalescence (en valeur absolue) tend vers un minimum qui n'est pas zéro. En effet, même si les grains sont activés à une très faible surfusion ( $-10^{-4}\text{C}$ ), l'écart à l'équilibre doit encore augmenter pour permettre la croissance des grains et la recalescence intervient plus tard (surfusion maximale égale à  $-0,20^{\circ}\text{C}$ ).

Ce minimum dépend cependant du modèle de croissance adopté. Celui-ci modifie légèrement les résultats, comme on peut le voir Figure 3- 2. L'évolution de la surfusion et de la fraction solide  $y$  est représentée pour les deux surfusions d'activation extrêmes ( $T_{uc}=-0,0001^{\circ}\text{C}$  et  $T_{uc}=-1^{\circ}\text{C}$ ) pour trois modèles de croissance :

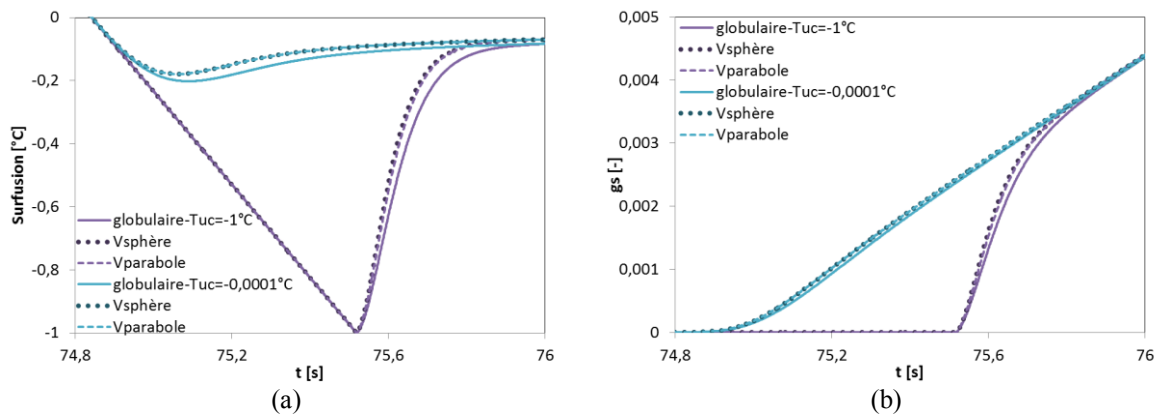


Figure 3- 2 : Evolution (a) de la surfusion et (b) de la fraction solide avec le temps pour une densité de germes  $N_{nuc}=10^{12}/\text{m}^3$  activée à  $T_{uc}=-0,0001^{\circ}\text{C}$  (en bleu) et  $T_{uc}=-1^{\circ}\text{C}$  (en violet), pour trois modèles de croissance : modèle globulaire (traits pleins), modèle 3 phases avec  $V_{pointe}$  sphérique (points) et modèle 3 phases avec  $V_{pointe}$  parabolique (pointillés).

L'évolution obtenue par le modèle de croissance globulaire est comparée à celle obtenue par le modèle 3 phases pour les deux modèles de croissance de pointe (hémisphérique et parabolique). On constate que le modèle de croissance de pointe ne modifie que très peu les résultats. La croissance est légèrement accélérée lorsque la dendritisation est prise en compte, donc la remontée en surfusion (et donc en température) est plus rapide lorsque les germes sont activés à  $-1^{\circ}\text{C}$ . Lorsqu'ils sont activés à  $-0,0001^{\circ}\text{C}$ , la recalescence intervient légèrement plus rapidement :  $-0,18^{\circ}\text{C}$  contre  $-0,2^{\circ}\text{C}$  en globulaire. Le modèle de croissance ne modifie donc pas les conclusions : réduire la surfusion d'activation (en valeur absolue) accélère la recalescence et la croissance.

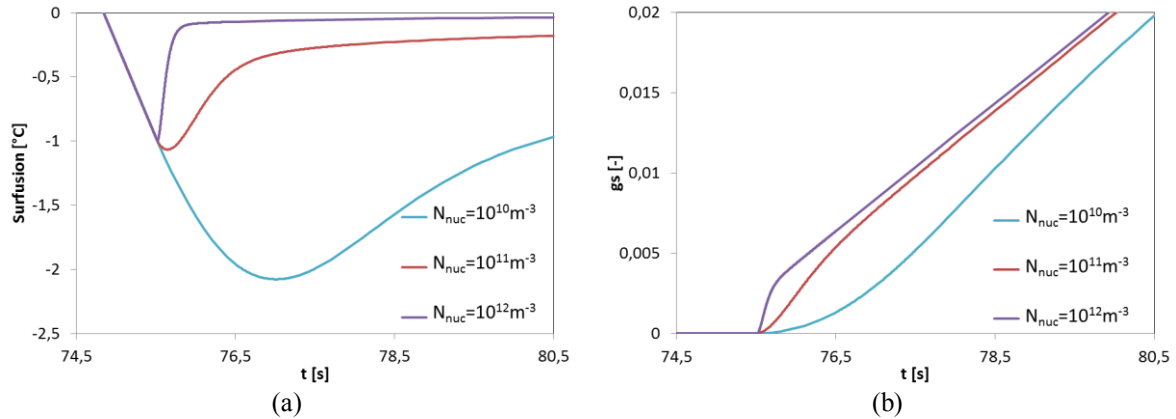


Figure 3- 3 : Evolution (a) de la surfusion et (b) de la fraction solide avec le temps pour trois densités de germes  $N_{nuc}$ , activées  $-1^{\circ}C$  de surfusion (modèle de croissance globulaire).

On fixe ensuite la surfusion d'activation à  $-1^{\circ}C$  tout en faisant varier la densité de germes de  $10^{10}$  à  $10^{12}/m^3$ . Augmenter la densité de germes (et donc diminuer le rayon final de grain  $R_f$ ) revient à augmenter la valeur du nombre de Fourier, tout comme le ferait une diminution de la vitesse de refroidissement (en augmentant le temps de solidification  $t_{sol}$ ). On ne teste donc ici que l'effet de la densité de germes. La Figure 3- 3 donne l'évolution dans le temps de la surfusion et de la fraction solide pour trois densités initiales de germes, obtenue avec le modèle de croissance globulaire. Là encore, le résultat est prévisible : lorsque la densité de germes diminue, la croissance et donc la recalescence sont retardées.

La morphologie dendritique des grains est également prise en compte par le modèle à 3 phases pour deux modèles de pointe : hémisphérique et paraboloidale (Figure 3- 4). On constate que l'effet du modèle de croissance est visible pour les faibles densités de germes. Dans ce cas, la microstructure a en effet tendance à être plus dendritique donc la prise en compte de la morphologie dendritique des grains change les résultats. On peut voir Figure 3- 4-c que si les grains restent totalement globulaires pour la densité de germes élevée ( $g_i=1$  lorsque  $N_{nuc}=10^{12}m^{-3}$ ), ils sont clairement dendritiques lorsque la densité de germes diminue ( $N_{nuc}=10^{10}m^{-3}$ ). La croissance et donc la recalescence sont alors plus rapides (Figure 3- 4-a et Figure 3- 4-b). Comme on l'a vu au chapitre précédent, le modèle de pointe hémisphérique accélère la croissance comparativement au modèle de pointe paraboloidale donc la différence au modèle globulaire est encore plus importante : les grains sont plus dendritiques et la recalescence est plus rapide. La surfusion maximale est même réduite de moitié par rapport à celle obtenue avec le modèle globulaire (pour  $N_{nuc}=10^{10}m^{-3}$ ).



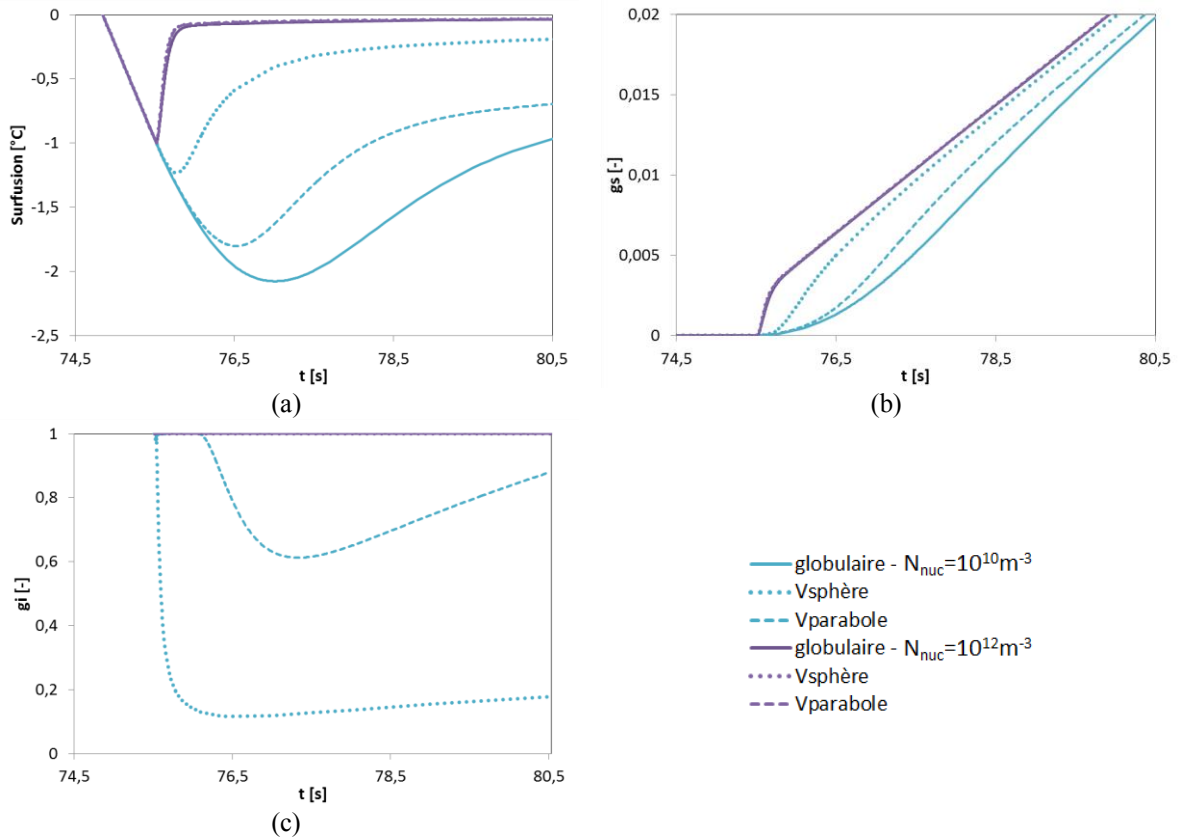


Figure 3- 4 : Evolution (a) de la surfusion, (b) de la fraction solide et (c) de la fraction interne avec le temps pour  $N_{nuc}=10^{10}/m^3$  (en bleu) et  $N_{nuc}=10^{12}/m^3$  (en violet), activés à  $-1^\circ C$  de surfusion, pour trois modèles de croissance : modèle globulaire (traits pleins), modèle 3 phases avec  $V_{pointe}$  sphérique (points) et modèle 3 phases avec  $V_{pointe}$  parabolique (pointillés).

L'impact de la densité de germes sur la croissance et la recalescence est le même pour les trois modèles de croissance : lorsque la densité de germes diminue, la croissance et la recalescence sont retardées. Cet effet est cependant atténué lorsque la morphologie des grains est prise en compte par la dendritisation des grains.

Cette étude montre l'effet de la loi de germination sur la solidification. Elle ne permet cependant pas d'étudier le couplage entre germination et croissance puisque la densité de grains est fixée et n'est donc pas impactée par le couplage entre germination et croissance. L'objectif est désormais de mettre en évidence l'impact des caractéristiques de la loi de germination sur la solidification. Pour cela, nous allons considérer une loi de germination de type gaussienne, souvent utilisée pour décrire la distribution en taille d'affinants industriels de type  $TiB_2$  ou  $TiC$ . L'impact des paramètres de la distribution de germes sur la taille finale de grain a déjà été testé pour une loi de type log-normale par Quested et Greer dans (G. A. Quested T.E. 2004). En suivant une démarche similaire, nous allons étudier l'effet de l'écart type et de la moyenne de la distribution en taille des germes sur le couplage germination/croissance dans le cas d'une loi normale.

## 2.2. Effet de l'écart type de la distribution de germes

Considérons désormais une densité totale de germes toujours égale à  $10^{12}/\text{m}^3$ , mais non homogène en taille. La distribution en surfusion (en valeur absolue) de type gaussienne est toujours centrée en  $1^\circ\text{C}$ , mais l'écart type  $\sigma$  est variable :

$$n(|\Delta T|) = \frac{10^{12}}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{|\Delta T|-1}{\sigma}\right)^2\right] \quad (3.1)$$

La densité de germes activée à une surfusion  $|\Delta T|$  correspond à l'ensemble des germes activés entre  $0^\circ\text{C}$  et  $|\Delta T|$ , et s'exprime alors comme :

$$N(|\Delta T|) = \int_{-\infty}^{|\Delta T|} n(t) dt = \frac{10^{12}}{2} \left[ 1 + \operatorname{erf}\left(\frac{|\Delta T|-1}{\sigma\sqrt{2}}\right) \right] \quad (3.2)$$

avec erf la fonction d'erreur. A chaque pas de temps de calcul, la surfusion est calculée après l'étape de transport. La densité de grains est imposée égale au maximum de la densité de grains au pas de temps précédent et de la densité au nouveau pas de temps. Ainsi, la densité de grains augmente jusqu'au moment de la recalescence. Considérons 5 distributions, d'écart type variant de  $10^{-4}$  à  $0,2^\circ\text{C}$  ; illustrées Figure 3- 5-a. Nous n'étudions pas de distribution plus étalée car une densité cumulée non nulle lorsque la surfusion vaut zéro poserait un problème physique. En effet, considérer une densité de germes activée à  $0^\circ\text{C}$  non nulle équivaldrait à considérer une densité non nulle de germes de taille infinie ! La sixième distribution considérée est d'écart type nul (correspondant à une loi de germination instantanée). Le pas de temps de calcul est réduit lorsque la distribution se resserre de façon à décrire la loi de densité cumulée par plus de 500 points. Au-dessus de cette valeur, on considère que l'erreur relative dans l'estimation de la taille finale de grains, induite par le pas de temps de calcul, devient négligeable (moins de 0,05%).

On considère dans un premier temps la croissance comme étant globulaire. La Figure 3- 5-a représente la densité cumulée de germes pour les 6 lois de germination considérées. La Figure 3- 5-b donne l'évolution dans le temps de la surfusion pour ces 6 lois de germination. La Figure 3- 5-c donne l'évolution de la fraction solide et la Figure 3- 5-d celle de la densité de grains pour ces 6 lois de germination jusqu'au moment de la recalescence. On constate que lorsque la distribution se resserre, la recalescence est retardée (Figure 3- 5-b). Cependant, l'écart à l'équilibre étant plus important au moment de la germination, la croissance est plus rapide (Figure 3- 5-c) et la remontée en température également. La densité finale de grains est donc dans ce cas très sensible à la distribution de germes (Figure 3- 5-d). En effet, un très faible retard de la recalescence induit une très forte augmentation de la densité de grains. On remarque de plus que la densité de grains tend bien vers  $10^{12}/\text{m}^3$  lorsque la distribution tend vers le Dirac. A l'inverse, lorsque la distribution est étalée, la recalescence intervient lorsque la fraction solide est déjà importante et la densité de grains décroît très lentement avec la réduction de  $\sigma$ , comme on peut le voir Figure 3- 6. L'impact de l'écart type de la distribution est alors plus faible.

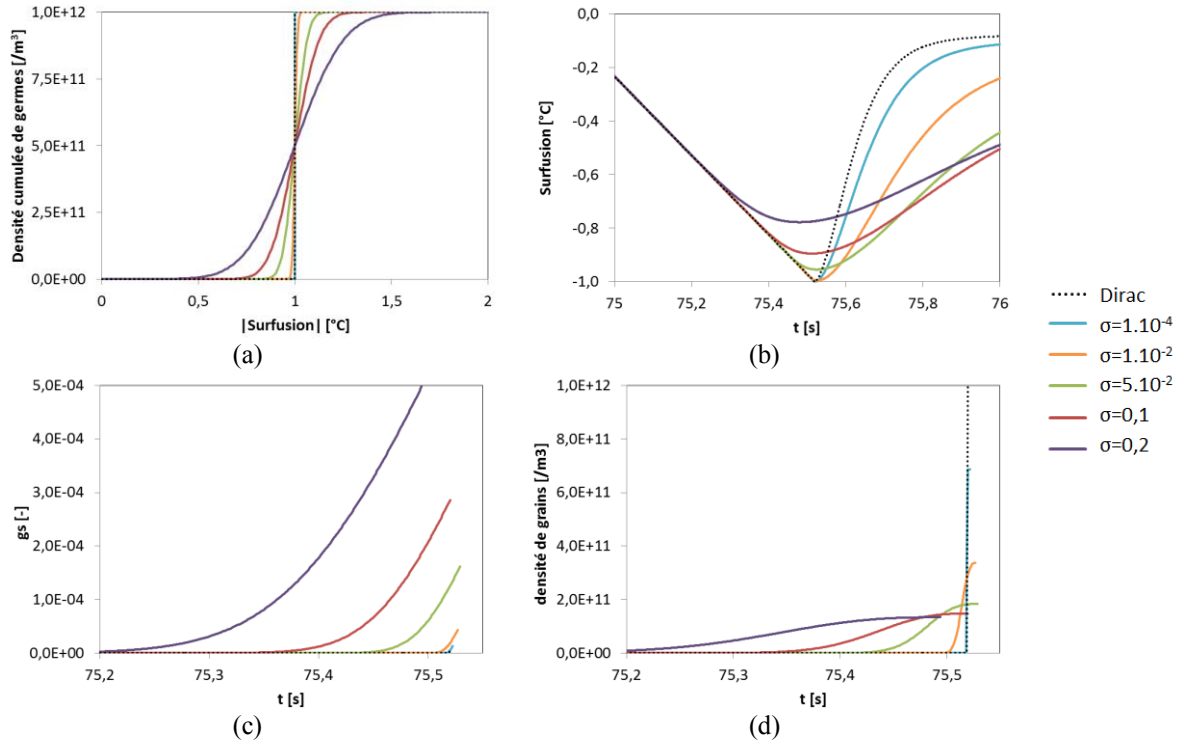


Figure 3- 5 : (a) Densité cumulée de germes en fonction de la surfusion pour 7 valeurs de  $\sigma$ , (b) évolution de la surfusion (c) évolution de la fraction solide jusqu'à la recalescence et (d) évolution de la densité de grains jusqu'à la recalescence, pour ces 7 distributions (modèle de croissance globulaire).

On constate donc que l'écart type de la distribution de germes a un impact important lorsque celle-ci est très resserrée, et que lorsque la distribution s'étale, la densité finale de grains varie relativement peu. Lorsque l'on double le flux d'extraction de chaleur, et donc la vitesse de refroidissement, on retrouve le résultat attendu (Figure 3- 6). L'écart à l'équilibre au moment de la germination est plus grand donc la recalescence est retardée et on active plus de germes : la densité finale de grains est alors plus élevée.

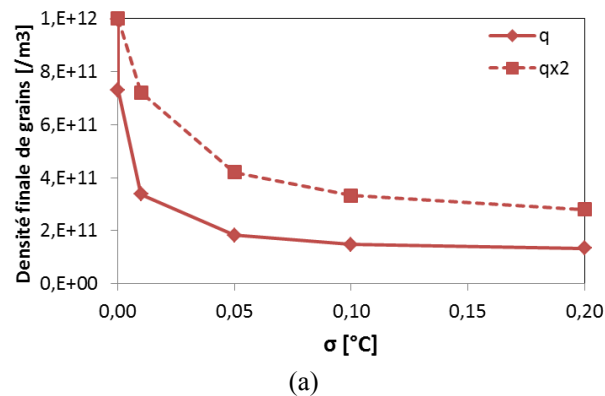


Figure 3- 6 : Impact de l'écart type de la distribution de germes sur la densité finale de grains pour le modèle de croissance globulaire pour le refroidissement initial ( $q=4.10^6W/m^3$ ) et pour un refroidissement deux fois plus important.

On constate également Figure 3- 7-a (tracée en échelle logarithmique) que la prise en compte de la morphologie des grains modifie peu les résultats. La croissance étant favorisée

par le modèle dendritique, la recalescence intervient plus tôt, donc la densité finale de grains est légèrement plus faible. Le modèle de pointe hémisphérique favorise plus la croissance que le modèle parabolique donc l'estimation de la densité finale de grains est légèrement inférieure. La fraction interne au moment de la recalescence est donnée pour les deux modèles dendritiques Figure 3- 7-b. D'après le modèle de pointe paraboloidale, les grains restent totalement globulaires pour toute la gamme d'écart type testée. Au contraire, d'après le modèle de pointe hémisphérique, ils deviennent dendritiques au moment de la recalescence lorsque  $\sigma$  augmente. L'effet de la dendritisation des grains sur la densité finale de grains reste cependant faible et quel que soit le modèle de croissance choisi, l'effet de l'écart type de la loi de germination sur la taille finale des structures reste le même.

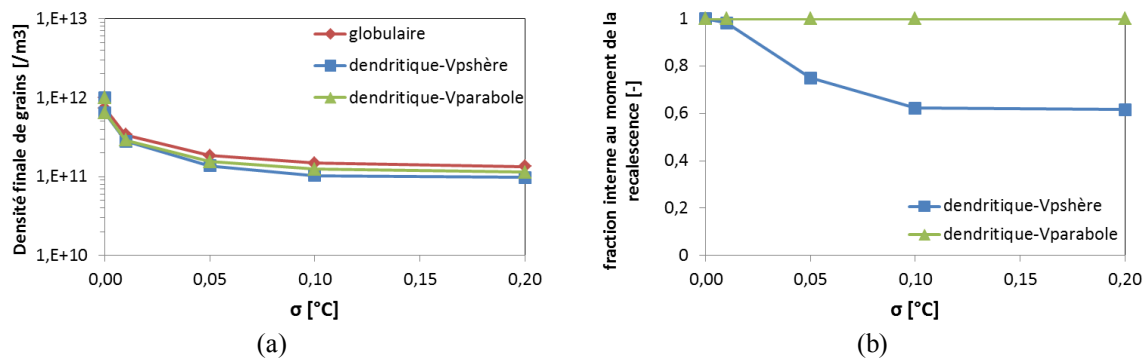


Figure 3- 7 : Impact de l'écart type de la distribution de germes sur (a) la densité finale de grains pour les trois modèles de croissance et (b) la fraction interne au moment de la recalescence pour les deux modèles dendritiques.

Expérimentalement, il est très difficile de sélectionner des particules affinantes d'une seule et même taille, et les distributions des affinants industriels de type  $\text{TiB}_2$  ou  $\text{TiC}$  sont plus étalées. On peut voir Figure 3- 8 la distribution en surfusion de ces deux affinants obtenue expérimentalement dans (Greer A.L. 2000). Une faible erreur dans l'estimation de l'écart type de la distribution aura donc un faible impact sur l'estimation du couplage germination/croissance à l'échelle microscopique.

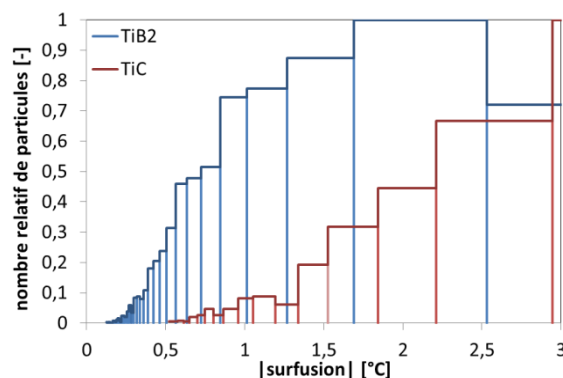


Figure 3- 8 : Répartition en surfusion d'activation des particules affinantes pour les affinants Al-5Ti-1B et Al-3Ti-0,15C (obtenue expérimentalement) – tiré de (Greer A.L. 2000).

### 2.3. Effet de la moyenne de la distribution de germes

Afin de tester l'impact de la valeur moyenne de la distribution sur le couplage germination/croissance, considérons toujours une densité totale de germes de  $10^{12}/\text{m}^3$ . L'écart type  $\sigma$  est maintenant fixé à  $0,1^\circ\text{C}$  et l'on décale la distribution en faisant varier la moyenne  $\mu$  de la surfusion d'activation des germes :

$$n(|\Delta T|) = \frac{10^{12}}{0,1\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{|\Delta T| - \mu}{0,1}\right)^2\right] \quad (3.3)$$

Soit en densité cumulée :

$$N(|\Delta T|) = \int_{-\infty}^{|\Delta T|} n(t) dt = \frac{10^{12}}{2} \left[ 1 + \operatorname{erf}\left(\frac{|\Delta T| - \mu}{0,1\sqrt{2}}\right) \right] \quad (3.4)$$

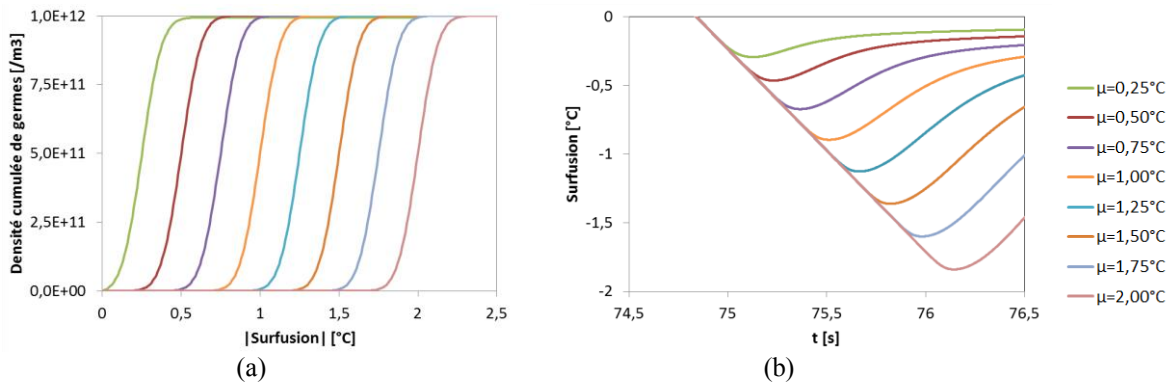


Figure 3- 9 : (a) Densité cumulée de germes en fonction de la surfusion pour 8 valeurs de  $\mu$  et (b) évolution de la surfusion avec le temps pour ces 8 distributions.

La Figure 3- 9-a représente la densité cumulée de germes activée en fonction de la surfusion pour les 8 valeurs de  $\mu$  étudiées. On constate que lorsque la distribution est décalée vers les fortes surfusions, la recalescence est retardée et la surfusion maximale (atteinte au moment de la recalescence) augmente (Figure 3- 9-b). Cependant, l'écart à l'équilibre étant plus grand au moment de la germination, la croissance est plus rapide et la recalescence intervient plus rapidement après le début de la germination. Moins de germes sont donc activés, comme on peut le voir Figure 3- 10. Lorsque la distribution est décalée vers les fortes surfusions, c'est-à-dire lorsque les germes sont supposés plus petits, la densité finale de grains diminue donc la taille finale des grains augmente.

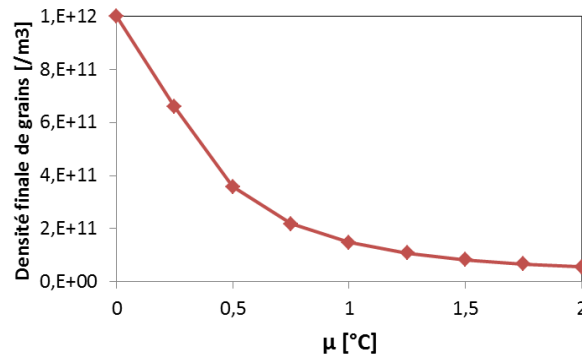


Figure 3- 10 : Impact de la moyenne de la distribution de germes sur la densité finale de grains pour le modèle de croissance globulaire.

Là encore, la prise en compte de la morphologie dendritique des grains amène à une diminution de la densité finale de grains, comme on peut le voir Figure 3- 11-a. L'écart entre l'estimation obtenue par le modèle globulaire et le modèle dendritique avec pointe hémisphérique s'amplifie lorsque  $\mu$  augmente. En effet, lorsque  $\mu$  passe de 0,25°C à 2°C, le retard à la germination est augmenté de 1,75°C. Lors du test sur l'écart type de la loi de germination, faire varier  $\sigma$  de 0,2°C à 10<sup>-4</sup>°C n'augmentait le retard à la germination que de 0,5°C environ. Or plus l'écart à l'équilibre au moment de la germination est important, plus la croissance est rapide et donc sensible au modèle de croissance choisi. On peut en effet voir Figure 3- 11-b que la morphologie devient de plus en plus dendritique lorsque  $\mu$  augmente. L'effet de la taille des germes (traduit par la valeur de la moyenne de la distribution  $\mu$ ) est donc amplifié lorsque la morphologie dendritique des grains est prise en compte par le modèle de pointe hémisphérique.

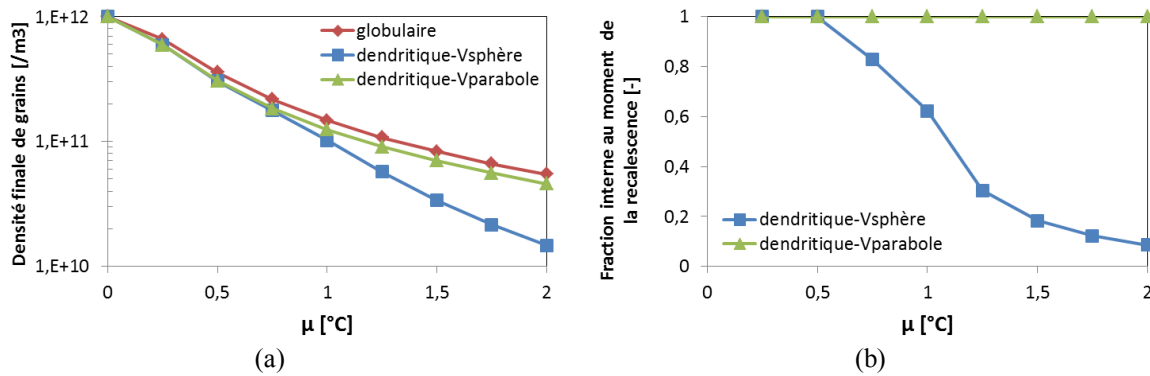


Figure 3- 11 : Impact de la moyenne de la distribution de germes sur (a) la densité finale de grains pour les trois modèles de croissance et (b) la fraction interne au moment de la recalescence pour les deux modèles à trois phases.

Dans tous les cas, diminuer la taille des particules affinantes (en augmentant  $\mu$ ) n'a pas pour effet de diminuer la taille moyenne finale de grains comme on aurait pu intuitivement le supposer.

## 2.4. Loi correspondant à des affinants de type $TiB_2$

On a vu que pour une densité totale de germes fixée, la distribution en taille de cette population est critique pour la compétition entre germination et croissance et donc pour la densité finale de grains. Si l'étude a montré que l'écart type de la distribution impacte peu la densité finale de grains (dès lors qu'il est suffisamment élevé), la moyenne de la distribution a un effet beaucoup plus important.

Avant d'aller plus en avant dans l'étude de ce couplage à l'échelle industrielle, il est donc important de vérifier que la modélisation des affinants industriels permet de prédire la compétition germination/croissance à l'échelle microscopique. Nous avons vu au premier chapitre l'impact du coefficient de restriction de croissance sur ce couplage à travers la densité finale de grains. En effet, lorsque  $Q = mC_0(k-1)$  augmente, la taille finale de grains diminue et tend vers un minimum. Voyons donc si notre modèle de croissance couplé à la loi de germination des affinants  $TiB_2$  donnée par A.Tronche dans sa thèse (Tronche A. 2000) permet de restituer ces tendances.

L'effet du coefficient de restriction de croissance a été testé en 1995 par Spittle et Sadli dans (Spittle J.A. 1995). Pour cela, ils étudient la solidification de différents alliages binaires (Cr, Cu, Fe, Mg, Mn, Si, Zn et Zr) à différentes compositions, affinés avec 2kg/t de Al-5Ti-1B. Les tests, de type TP-1 (The Aluminium Association 1987), permettent de contrôler le refroidissement et de négliger les phénomènes macroscopiques de transport. La vitesse de refroidissement est ainsi estimée à 3,5K/s. Ils obtiennent alors une taille finale de grain fonction du coefficient de restriction de croissance (ce coefficient tient également compte de la restriction de croissance supplémentaire induite par le titane apporté par l'affinant). A.Tronche propose dans sa thèse (Tronche A. 2000) de modéliser l'affinant  $TiB_2$  par une loi exponentielle et compare les résultats de son modèle à ces résultats expérimentaux. Il rapporte pour cela la composition de l'alliage à la composition en titane équivalente, et il utilise les données de l'alliage Al-Ti données dans l'annexe 1.

La loi de densité cumulée de germes pour 2kg/t de Al-5Ti-1B est définie dans (B. A. Greer A.L. 2000) comme :

$$N(|\Delta T|) = 2.10^{18} d_0 \exp\left[\frac{-4\Gamma}{d_0 |\Delta T|}\right] \text{ avec } d_0 = 7,2.10^{-7} \text{ m} \quad (3.5)$$

Les grains sont supposés globulaires et leur diamètre final est déduit de la densité de grain selon la relation :

$$d = \left(\frac{6}{\pi N}\right)^{1/3} \quad (3.6)$$

On compare les prédictions de notre modèle (en utilisant le modèle de croissance globulaire) aux prédictions du modèle de Tronche et aux résultats expérimentaux obtenus par Spittle et Sadli (Spittle J.A. 1995). L'effet du coefficient de restriction de croissance sur la taille finale de grain est illustré Figure 3- 12. Afin de différencier notre modèle de celui de

Tronche, on le note *Solid*. On constate que si les tendances restent les mêmes pour les deux modèles, l'écart d'estimation de taille de grain augmente lorsque Q diminue ( $Q < 4$ ) et la taille de grain augmente plus fortement d'après le modèle SOLID.

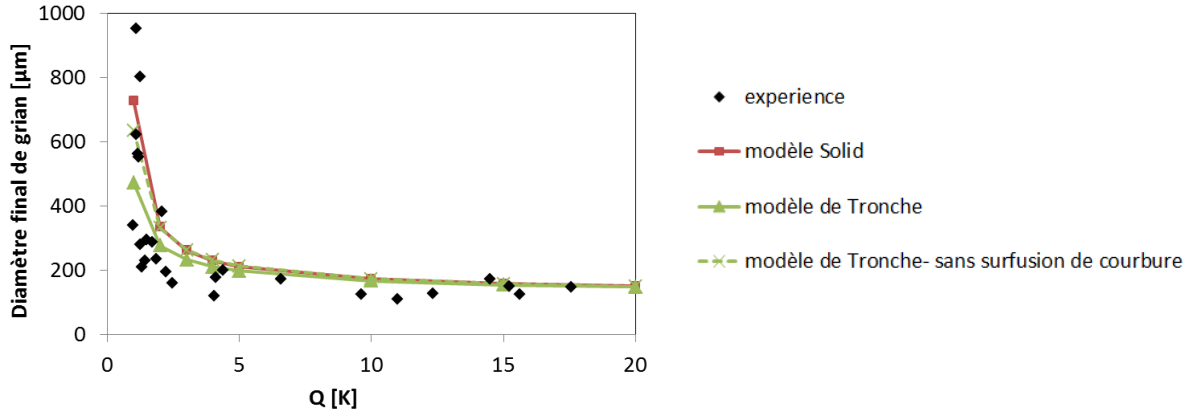


Figure 3- 12 : Diamètre final de grain fonction de Q obtenu par mesure expérimentale et par modélisation par le modèle de Tronche et par notre modèle, SOLID (modèle de croissance globulaire).

Si les deux modèles utilisent la même loi de germination, la croissance est traitée différemment. Tout d'abord, le moteur de la croissance, supposé correspondre dans SOLID à la surfusion totale  $\Delta T = \Delta T_R + \Delta T_C$ , est la surfusion solutale  $\Delta T_C = m(C_l^* - \bar{C}_l)$  uniquement dans le modèle de Tronche. En effet, une fois la surfusion de courbure  $\Delta T_R = -\frac{2\Gamma}{R}$  atteinte, le germe de rayon R est stable dans le liquide mais seule une surfusion strictement supérieure à  $\Delta T_R$  permet au grain de croître. De plus, la loi de cinétique de croissance utilisée dans le modèle de Tronche, reliant analytiquement la vitesse de croissance d'un grain sphérique au rayon de celui-ci ainsi qu'à la surfusion, est remplacée dans SOLID par un bilan de soluté à l'interface solide/liquide. La longueur de diffusion dans les deux phases est donnée analytiquement. Enfin, la dernière différence notable entre les deux modèles concerne la prise en compte de classes de grains. Dans SOLID, seuls un diamètre et une densité moyenne de grains sont déterminés à chaque pas de temps. La densité moyenne est actualisée selon qu'il y a eu germination pendant le pas de temps ou non, puis la taille moyenne de grain est recalculée en fonction de la croissance du grain moyen et de la nouvelle densité moyenne de grains. Dans le modèle de Tronche, les germes activés à un pas de temps donné forment une nouvelle classe de grains, qui croît indépendamment des autres classes. La densité de grains reste actualisée à chaque pas de temps selon que de nouveaux germes ont été activés ou non puis un rayon moyen est déduit de cette densité moyenne. Ainsi, seule la croissance est modifiée car chaque classe de grains croît selon son rayon propre.

Les résultats obtenus par le modèle de Tronche, mais sans prise en compte de la surfusion de courbure, permettent de constater que la prise en compte de la surfusion de courbure est la différence principale entre les deux modèles (Figure 3- 12). Des tests menés avec SOLID en utilisant la loi de croissance du modèle de Tronche ont permis de plus de



constater que la différence restante est due à cette loi de croissance. La prise en compte de classes de grains ne modifie pas les résultats.

La Figure 3- 12 permet de voir que la tendance observée expérimentalement est retrouvée par les deux modèles. Il est même difficile de déterminer quel modèle se rapproche le plus des résultats expérimentaux. Ce test permet donc de valider les modèles de germination et de croissance globulaire utilisés dans SOLID : le couplage entre ces deux phénomènes, traduit par la taille finale de grains, est bien reproduit par le modèle.

On constate de plus Figure 3- 13 que le choix du modèle de croissance modifie très peu les résultats. La prise en compte de la dendritisation des grains (par deux modèles de pointe différents) induit une estimation de la densité finale de grains inférieure à celle obtenue par le modèle globulaire (Figure 3- 13-a). Cette différence augmente avec  $Q$ , mais n'est pas visible en terme de taille finale de grains, comme on peut le voir Figure 3- 13-b. Les grains restent même totalement globulaires avec le modèle de pointe paraboloidale pour toute la gamme de  $Q$  testée. La différence en termes de densité finale de grains avec le modèle globulaire est due à l'estimation de la surface spécifique du grain, sphérique dans le modèle globulaire et octaédrique dans le modèle dendritique (voir chapitre II). Avec le modèle de pointe hémisphérique, la dendritisation apparaît pour  $Q \geq 10$  : la fraction interne atteint 0,7 au moment de la recalescence lorsque  $Q=20$ . L'impact de la dendritisation sur la taille finale de grains aux fortes valeurs de  $Q$  reste néanmoins négligeable.

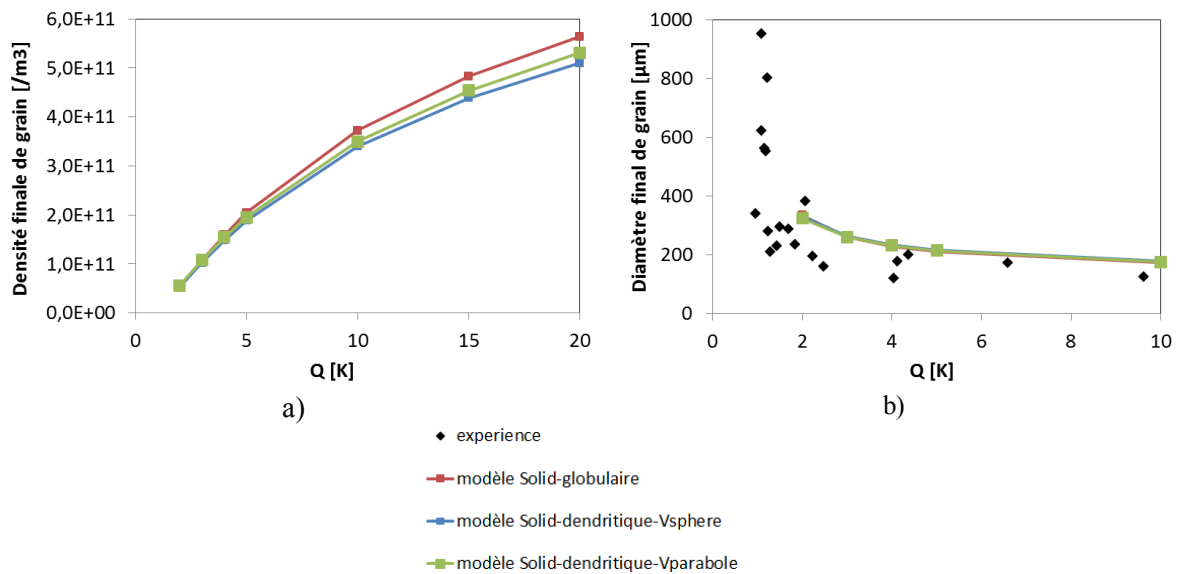


Figure 3- 13 : a) Densité finale de grain fonction de  $Q$  obtenue par le modèle SOLID pour les trois modèles de croissance et b) diamètre final de grain équivalent et données expérimentales.

Dans le cas où les phénomènes de transport à l'échelle macroscopique ne sont plus négligeables, nous supposons que les germes se déplacent avec le liquide. La distribution de germes n'est pas simplement translatée car elle peut être partiellement activée. C'est pourquoi elle est discrétisée en classes. Si la surfusion d'activation d'une classe est atteinte, toute la classe est instantanément activée. L'effet de cette discrétisation a donc également été

testé. Trois discrétisations ont été étudiées, de 5, 10 et 20 classes, données Figure 3- 14-a. Les résultats sont illustrés Figure 3- 14-b :

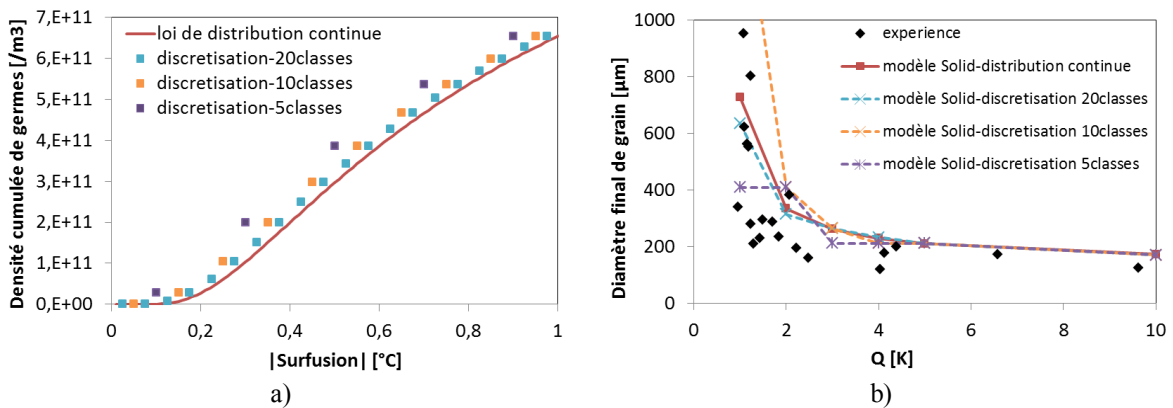


Figure 3- 14 : (a) Densité cumulée de germes en fonction de la surfusion pour 2kg/t de Al-5Ti-B et trois discrétisations de cette loi et (b) diamètre final de grain fonction de  $Q$  obtenu par mesure expérimentale et par modélisation par notre modèle, SOLID (modèle de croissance globulaire).

L'utilisation de la loi de distribution continue et de la loi discrétisée donnent des résultats très similaires en termes de taille finale de grain dès lors que la discrétisation est suffisamment fine. En effet, discrétiser la loi de germination en  $n$  classes revient à imposer  $n$  valeurs possibles pour la taille finale de grains. Le choix de la discrétisation est donc très important. Nous choisissons ici de discrétiser la loi par intervalles de surfusion constants. Cette méthode induit un raffinement de la discrétisation aux faibles diamètres (comme on peut le voir Figure 3- 15) mais permet d'activer les grains régulièrement au cours du refroidissement. Quelle que soit la méthode de discrétisation choisie, plus la discrétisation est fine, plus l'estimation peut être précise. Si la discrétisation par intervalle de surfusion constant permet d'estimer très précisément la taille finale de grain lorsque celle-ci est faible (aux fortes valeurs de  $Q$ ), elle est beaucoup moins précise lorsque la taille finale de grains dépasse  $200\mu m$  ( $Q < 5$ ).

Nous avons étudié plus précisément le cas  $Q=2K$ . L'estimation du diamètre final de grain est comparée pour cinq discrétisations de la loi de germination Figure 3- 15. Les diamètres possibles pour chaque discrétisation sont également tracés. On voit ainsi que même lorsque la loi de germination est discrétisée en 25 classes, seules deux classes sont activées. Augmenter le nombre de classes permet d'améliorer seulement légèrement l'estimation de la taille finale de grain dans ce cas. Lorsque la taille finale de grain est inférieure à  $200\mu m$  (pour des valeurs de  $Q$  plus grandes), l'estimation peut être précise dès la discrétisation en 10 classes. Ce test confirme ainsi la pertinence de la discrétisation lorsque les intervalles sont suffisamment faibles par rapport à l'intervalle de surfusion rencontré.

Le modèle de croissance couplé au modèle de germination permet donc d'estimer correctement la compétition entre ces deux phénomènes, dans le cas de systèmes suffisamment petits pour que le transport des grains et des germes ne rentre pas en jeu.

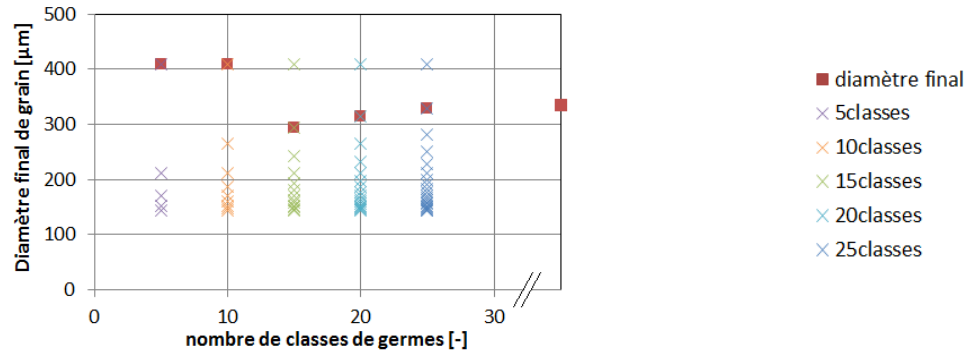


Figure 3- 15 : Diamètre final de grains obtenu par SOLID pour  $Q=2$  fonction du nombre de classes de germes utilisé pour discrétiser la loi de germination entre  $0^{\circ}\text{C}$  et  $1^{\circ}\text{C}$  (en rouge). Pour chaque discrétisation, on donne les valeurs discrètes que peut prendre le diamètre de grain.

### 3. Couplage germination/croissance/transport et impact sur la formation des hétérogénéités de composition et de structure

#### 3.1. Introduction

La première partie de ce chapitre nous a permis de valider notre modèle de germination et de croissance dans un cas purement diffusif. L'objectif est maintenant d'appliquer ce modèle à un cas plus réaliste où les phénomènes de transport par convection ne sont plus négligeables. En effet, dans l'industrie, les plaques formées par coulée semi-continue aussi bien que les lingots ont des dimensions trop importantes pour pouvoir supposer le transport purement diffusif. La convection de la phase liquide, le transport des grains et celui des germes modifient localement les conditions en termes de concentration en soluté, de densité de germes et de grains, et modifient ainsi l'équilibre entre germination et croissance.

Afin de prendre en compte le mouvement des germes, estimons leur vitesse relativement à celle de la phase liquide. En utilisant l'expression de Stokes pour la traînée d'une sphère dans un milieu visqueux infini, on peut déterminer la vitesse de sédimentation maximale d'une sphère solide de rayon  $R$  :

$$|\vec{v}_{nuc} - \vec{v}_l| = \frac{(\rho_{nuc} - \rho_l)gd^2}{18\mu} \quad (3.7)$$

On considère des affinants de type  $\text{TiB}_2$  de densité égale à  $4930 \text{ kg.m}^{-3}$  (Brandes E.A. 1992) et de  $5\mu\text{m}$  de diamètre (de l'ordre de grandeur des plus grosses particules affinantes). Dans le cas de l'alliage  $\text{Al-22wt.\%Cu}$  étudié dans la suite du chapitre, on obtient une vitesse relative maximale des particules de  $\text{TiB}_2$  dans le métal liquide de  $24 \mu\text{m.s}^{-1}$ . La vitesse de sédimentation des germes est donc généralement très inférieure à cette valeur limite. De ce fait, elle est faible devant la vitesse de convection du liquide dans la zone totalement liquide et dans la zone de forte fraction liquide (dans laquelle les germes sont activés). C'est pourquoi on néglige cette vitesse de sédimentation dans notre étude, et l'on suppose que les germes sont transportés à la vitesse du liquide. Le transport des grains comme celui des germes va

modifier localement l'équilibre entre germination et croissance. Voyons donc dans quelle mesure ces phénomènes de transport modifient la formation des structures et des macroségrégations.

### 3.2. Définition du cas étudié

Le cas étudié est inspiré de l'expérience de Kumar et al. (W. M. Kumar A. 2011), dans laquelle l'alliage Al-22wt.%Cu affiné avec 5 kg/t de Al-5Ti-1B est solidifié dans un moule en sable refroidi par le côté par une paroi en cuivre. Les autres parois du moule sont isolées thermiquement. La cavité mesurant 76 mm x 76 mm x 254 mm, on suppose le système suffisamment long pour pouvoir considérer la solidification bidimensionnelle. Le cas est donc modélisé comme illustré Figure 3- 16 :

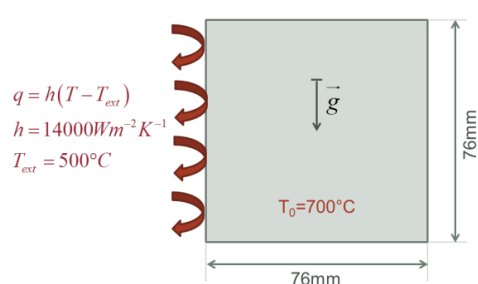


Figure 3- 16 : Système 2D étudié

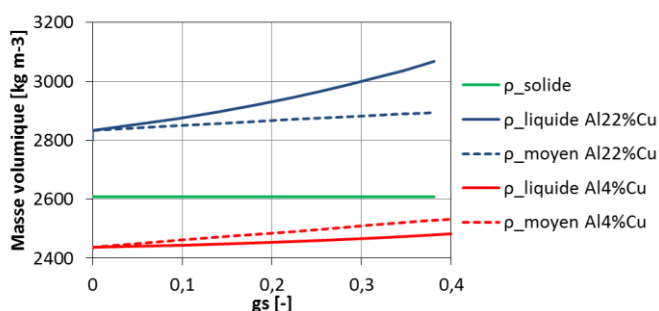


Figure 3- 17 : Masse volumique du solide, du liquide et la moyenne des deux phases en fonction de la fraction solide pour les alliages Al-22wt.%Cu et Al-4wt.%Cu. Le chemin de solidification est calculé par le modèle de Scheil.

La température a été mesurée au cours de la solidification dans seulement 5 points au sein du métal. Le refroidissement par la gauche est modélisé dans notre étude par une condition de Fourier dont les paramètres ont été déterminés de façon à se rapprocher de ces courbes expérimentales de température (données dans (Kumar A. 2008)). La thermique est donc grossièrement estimée. Les autres parois sont supposées totalement isolées. Des conditions de non glissement sont imposées à toutes les parois et la température initiale est de 700°C. Les valeurs de la pente de liquidus, du coefficient de partage et de la pseudo température de fusion de l'aluminium pur ont été choisies de façon à s'adapter à la zone de 22% de cuivre du diagramme de phase Al-Cu, et sont gardées constantes. Ces valeurs ainsi que les autres données thermodynamiques sont données en annexe.

Les coefficients de diffusion solutale dans les phases solide et liquide sont calculés d'après (Du Y. 2013) à 699°C, la température de liquidus de l'alliage à la composition nominale. Les densités des phases solide et liquide sont supposées constantes, excepté pour le terme de flottabilité dans l'équation de la quantité de mouvement, où la masse volumique du liquide suit la relation de Boussinesq. Les masses volumiques du liquide, du solide ainsi que la moyenne des deux phases sont données en fonction de la fraction solide Figure 3-17 d'après le modèle de Scheil. Le paramètre de restriction de croissance vaut 87K pour l'alliage Al-22wt.%Cu et 16K pour l'alliage Al-4wt.%Cu étudié plus tard. L'effet de la surfusion de courbure sur la compétition germination-croissance est donc négligeable, comme on l'a vu au paragraphe 2.4. Dans notre modèle, on néglige le retrait à la solidification mais la

différence de densité des phases liquide et solide est prise en compte et considérée variable pour le mouvement des grains. La fraction solide de blocage pour les grains est fixée à 0,27 (W. M. Kumar A. 2011). La distribution en taille des germes tirée de (Tronche A. 2000) pour 5kg/t de Al-5Ti-1B est modélisée par une fonction de distribution de particules de TiB<sub>2</sub> exponentielle de paramètres  $N_0=3,558.10^{12} \text{ m}^{-3}$  et  $d_0=7,1.10^{-7}\text{m}$ , pour des diamètres de 1 à 10 microns. La densité de distribution fonction de la taille des particules affinantes est continument décroissante. Cependant, lorsque cette même densité de distribution est exprimée en fonction de la surfusion critique d'activation de ces germes, la distribution atteint un maximum vers 0,5°C, comme on peut le voir Figure 3- 18 :

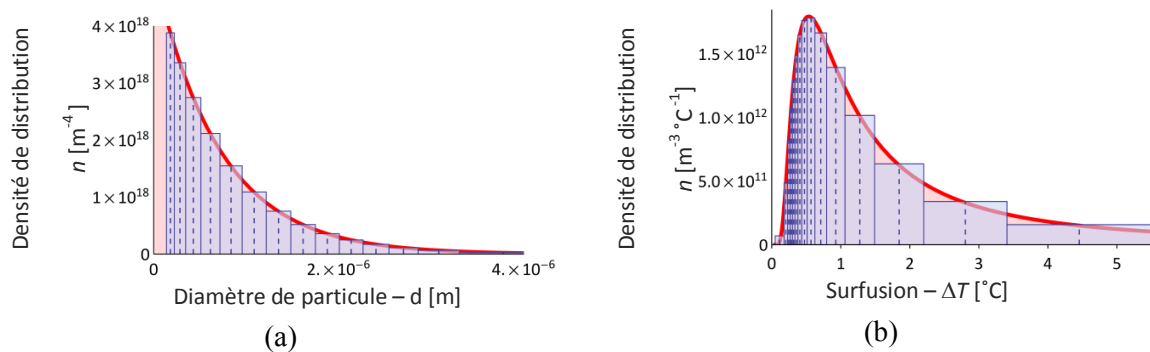


Figure 3- 18 : Distribution de la population de particules affinantes de type TiB<sub>2</sub> pour 5 kg/t de Al-5Ti-1B: (a) fonction du diamètre de particule, (b) fonction de la surfusion. La densité de distribution correspond à la ligne rouge et les 15 classes sont données par les barres bleues. La surface d'une barre correspond à la densité volumique de particules affinantes de cette classe  $N_{inuc} [\text{m}^{-3}]$ . La surfusion d'activation  $\Delta T_{ci}$  (dans (b)) et le diamètre correspondant  $d_i = -4\Gamma_{GT}/\Delta T_{ci}$  (in (a)) sont indiqués par les lignes pointillés.

La distribution de germes est discrétisée en 15 classes : les intervalles de surfusion sont définis par pas croissant de 0,1 à 0,95°C. Il est à remarquer que la distribution a été extrapolée en deçà de 0,1µm de façon à couvrir toute la plage de surfusion atteinte dans notre étude.

Pour toutes les simulations présentées ici, un maillage régulier de 40x40 mailles est utilisé et le pas de temps est fixé à  $dt=10^{-3}\text{s}$ . La croissance est dans un premier temps supposée globulaire, puis la prise en compte de la morphologie des grains par un modèle de pointe hémisphérique et un modèle de pointe parabolique est étudiée.

### 3.3. Définition des différents cas traités

Afin d'étudier l'impact du mouvement des grains et des germes sur la formation des structures et des macroségrégations, quatre cas de complexité croissante sont définis. Les principaux phénomènes physiques pris en compte sont donnés Tableau 3- 1. Dans tous les cas, le transport du liquide par convection thermo-solutale est pris en compte et la loi de germination correspond à celle donnée Figure 3- 18. Le Cas 1 sert de référence : les germes comme les grains sont fixés, donc la densité finale de grain locale ne dépend que de la surfusion maximale atteinte. Dans le Cas 2, les particules affinantes peuvent bouger avec le liquide donc la densité finale de grain locale dépend également de ce phénomène. Puis dans les Cas 3 et Cas 4, on étudie le même effet du mouvement des germes, lorsque les grains

bougent. Ainsi, dans le Cas 3, les grains bougent et les germes restent fixés et enfin dans le cas 4, le mouvement des germes est ajouté. Dans tous les cas, les germes sont initialement distribués de façon uniforme dans tout le produit.

Tableau 3- 1 : Définition des cas

	Cas 1	Cas 2	Cas 3	Cas 4	Cas 4 $V_{\text{pointe}}$ hémisphérique	Cas 4 $V_{\text{pointe}}$ parabolique
<b>Mouvement des grains</b>			oui	oui	oui	oui
<b>Mouvement des germes</b>		oui		oui	oui	oui
<b>Morphologie des grains</b>					oui	oui

Il faut noter que les Cas 1, Cas 2 et Cas 3 ne sont pas physiques puisque l'on bloque arbitrairement les germes ou les grains. Ils permettent simplement de décomposer les phénomènes de transport et leur impact sur la microstructure afin de rendre l'analyse de ces phénomènes couplés plus claire. Enfin, dans les deux derniers cas étudiés, la morphologie des grains est prise en compte par deux modèles de croissance de pointe différents discutés au chapitre II. Nous verrons comment ces modèles de pointe de dendrite influencent la croissance des grains et leur transport.

### 3.4. Compétition germination/croissance sans l'effet du transport (Cas 1)

Dans le premier cas étudié, les germes comme les grains sont fixés. La densité locale de germes activée et donc la densité locale de grains formés dépendent seulement de la surfusion maximale atteinte localement. Dans le cas général, une vitesse de refroidissement plus grande induit une surfusion plus grande. On peut le voir Figure 3- 19-b : la vitesse de refroidissement, et donc la surfusion, sont maximales près de la paroi gauche d'où la chaleur est extraite. Dans cette zone, 12 classes de germes sur les 15 prises en compte dans le modèle sont activées, induisant une densité finale de grains élevée (Figure 3- 19-a). Lorsque la distance à la paroi refroidie augmente, la vitesse de refroidissement et la surfusion maximale diminuent : la densité de grains finale diminue donc en conséquence. Ainsi, près de la paroi droite, seules 4 classes de germes sont activées.

Le gradient de vitesse de refroidissement et les gradients de surfusion et de densité finale de grains qui en découlent sont principalement horizontaux. C'est pourquoi l'analyse précédente est faite en ne considérant que la distance à la paroi refroidie. Malgré la boucle de convection dans le sens trigonométrique induite par les variations de densité au sein de la phase liquide, les transferts de chaleur restent en effet contrôlés par la diffusion. La chaleur est extraite horizontalement sur toute la longueur de la paroi gauche et en première approximation, le système peut être supposé unidimensionnel. De plus, l'impact de la macroségrégation sur la surfusion est négligeable dans la zone de germination, donc la germination est contrôlée uniquement par la thermique. Les variations de densité finale de grains dans la direction verticale restent donc faibles.

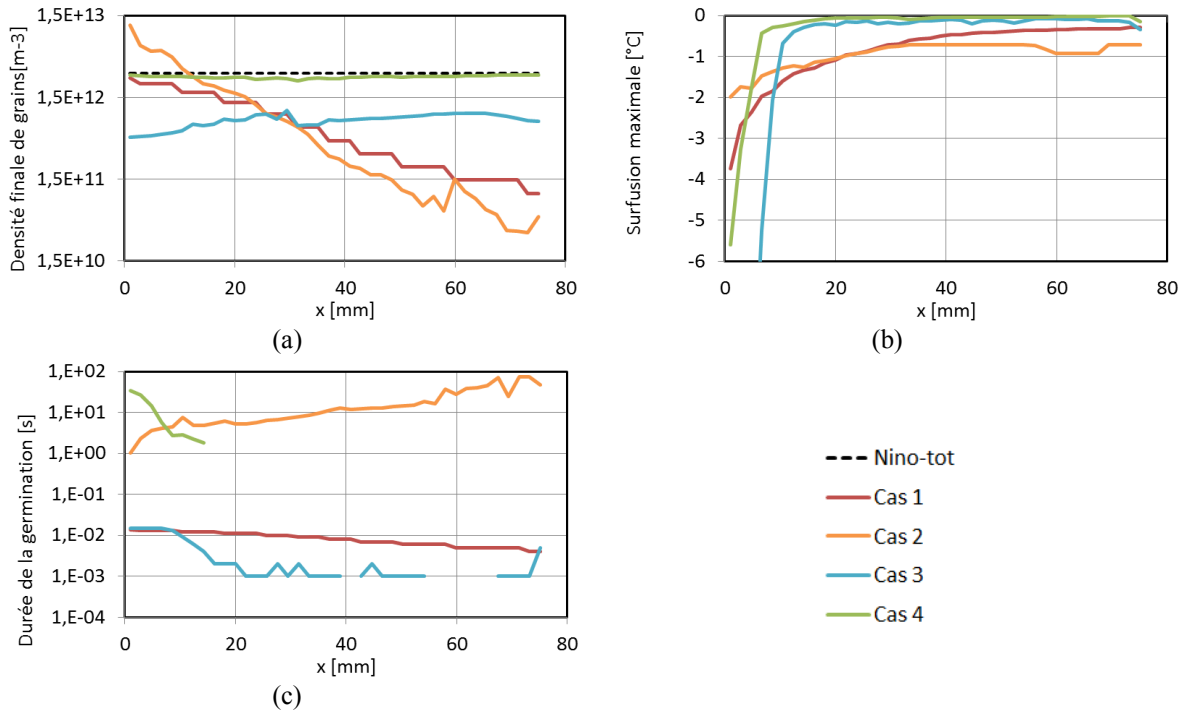


Figure 3- 19 : Profils horizontaux à mi-hauteur ( $y=37mm$ ) pour les cas 1 à 4 (a) densité finale de grains, (b) surfusion maximale atteinte, (c) durée de la germination (les lignes sont coupées lorsque la germination n'a localement pas lieu). La ligne en pointillés dans la figure (a) notée Nino-tot indique la somme de toutes les classes de germes de la distribution initiale.

La zone de germination à un instant donné peut être visualisée sur la carte de surfusion Figure 3- 20-a comme la bande de surfusion élevée près du liquidus, qui délimite la zone totalement liquide de la zone pâteuse. Lorsque la zone de germination se déplace de la paroi refroidie vers la droite, l'écart à l'équilibre diminue et la surfusion dans cette zone diminue, permettant l'activation d'un nombre plus faible de classes de germes : la taille des structures est donc plus grande.

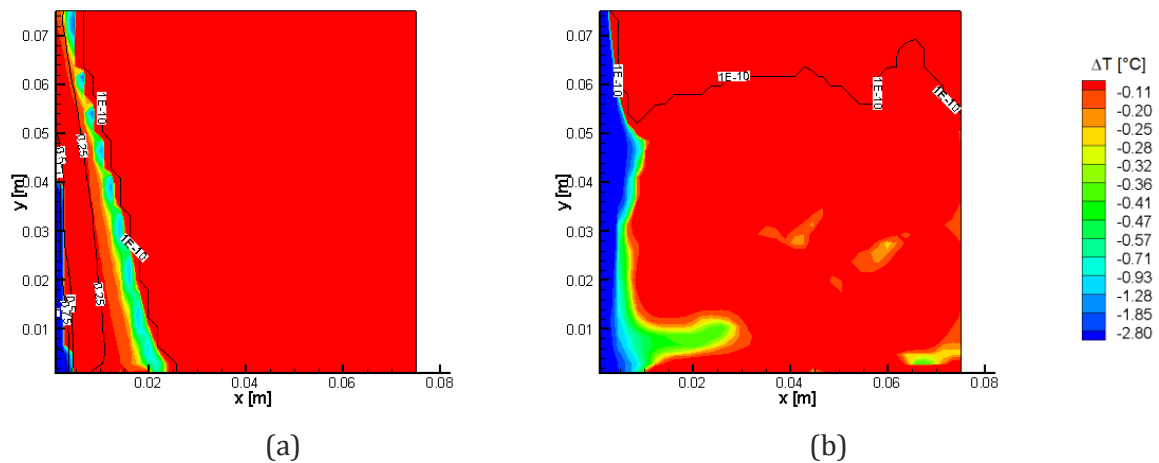


Figure 3- 20 : Carte de surfusion et isolignes de fraction solide en noir après 30s pour (a) Cas 1 et (b) Cas 3 (les cartes pour les Cas 2 et Cas 4 ne sont pas données car elles sont très proches respectivement des Cas 1 et Cas 3). Les intervalles de surfusion choisis correspondent à la surfusion d'activation des classes de germes ( $\Delta T_i^c$ ).

En revanche, l'effet de la convection naturelle sur la formation des macroségrégations ne peut pas être analysé en ne considérant que la distance à la paroi refroidie. On peut voir la carte finale de ségrégation dans le Cas Figure 3- 21-a.

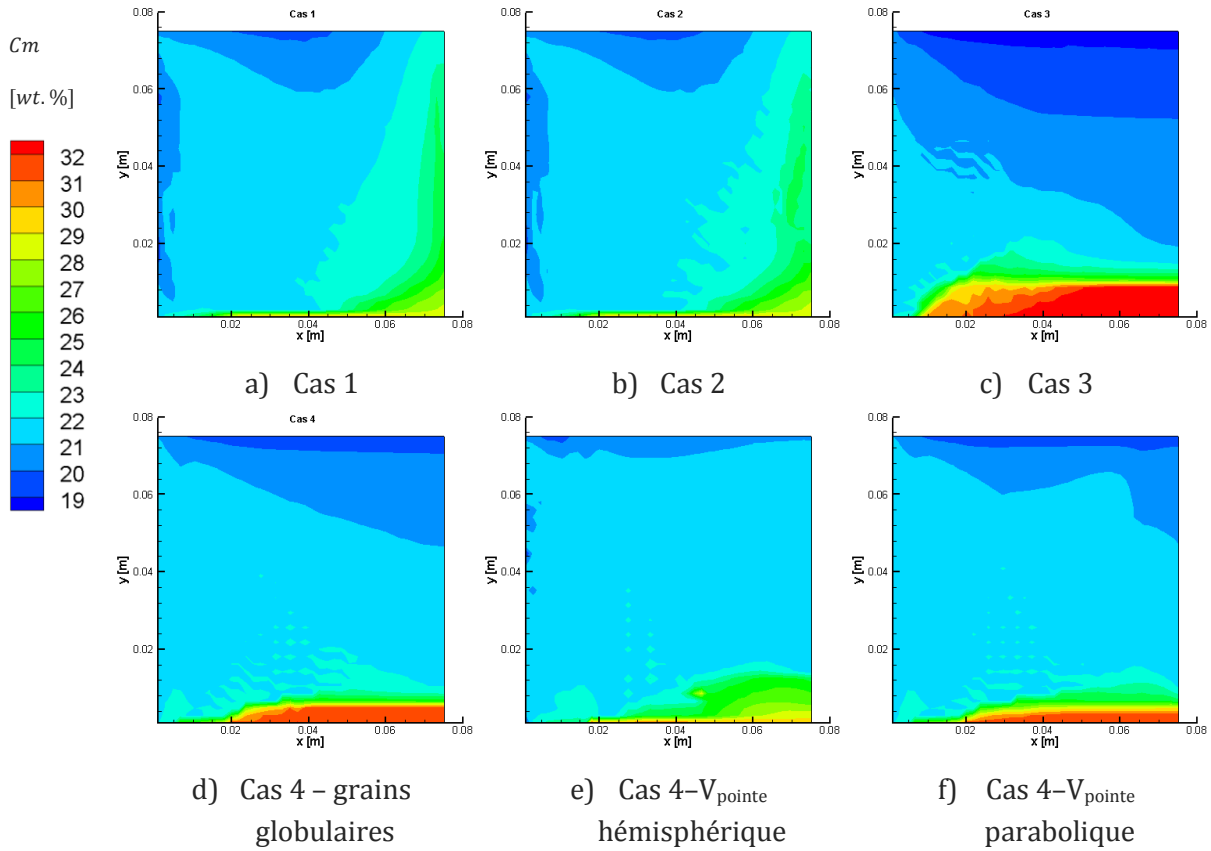


Figure 3- 21 : Cartes finales de composition en soluté obtenues par le modèle pour différentes hypothèses ((a) à (f)) (données Tableau 3- 1) et (g) par l'expérience (issu de (Kumar A. 2008)).

On a vu au chapitre précédent que la formation des ségrégations dépend en première approximation de la direction relative de l'écoulement liquide par rapport au gradient thermique (en négligeant la cinétique de croissance). Or l'écoulement est dans notre cas dans le sens trigonométrique, du fait de l'enrichissement en soluté et du refroidissement du liquide près de la paroi refroidie. En bas du lingot, le gradient thermique et l'écoulement ont la même direction, donc une ségrégation positive se forme, et à l'inverse en haut du lingot, une négative apparaît (cf chapitre II). De plus, le liquide enrichi étant plus lourd, il tend à rester au fond du lingot. Or l'enrichissement en soluté retarde la solidification donc la dernière zone à solidifier, et donc la plus riche en soluté, est située en bas à droite du lingot. Si la cinétique de croissance modifie légèrement l'intensité des ségrégations à travers le gradient de surfusion, elle ne modifie pas ce raisonnement.

### 3.5. Impact du transport des germes (Cas 2)

Le mouvement des germes a un très faible effet sur la dynamique de la zone pâteuse, l'évolution du champ de température et l'écoulement. Ceci est illustré Figure 3- 22, où le Cas 1 et le Cas 2 sont comparés en termes de champ de température et de zone pâteuse :



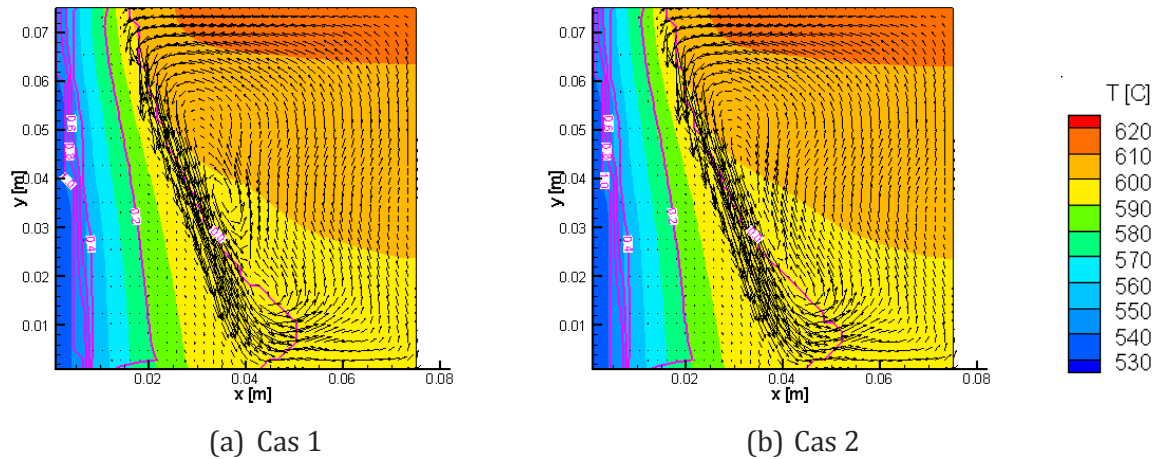


Figure 3- 22 : Carte de température, vecteurs de vitesse intrinsèque du liquide en noir et isolignes de fraction solide en rose après 50s pour (a) Cas 1 et (b) Cas 2.

La prise en compte du mouvement des germes a donc un effet négligeable sur la formation des macroségrégations, comme on peut le voir Figure 3- 21-a et Figure 3- 21-b. Cependant, la microstructure est fortement modifiée. On peut voir Figure 3- 19-a un gradient de densité finale de grains plus important et la Figure 3- 23 montre que globalement, plus de grains sont formés lorsque les germes bougent.

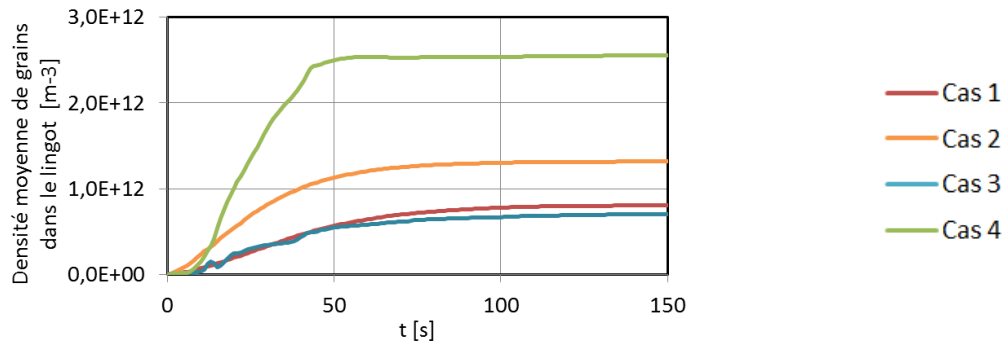


Figure 3- 23 : Evolution de la densité moyenne de grains au cours du temps dans le lingot pour les quatre cas étudiés.

Afin de mieux comprendre comment le mouvement des germes modifie la microstructure finale, l'évolution de la densité relative de germes (normalisée par la densité initiale de la classe en question) au cours du temps est étudiée. Elle est illustrée Figure 3- 24 pour deux classes de germes : la 2<sup>ème</sup> classe, caractérisée par un diamètre de particule élevé ( $d=3,7\mu\text{m}$ ) et une surfusion d'activation faible ( $\Delta T=0,20^\circ\text{C}$ ), et la 7<sup>ème</sup> classe, correspondant à un diamètre de particule plus faible ( $d=1,9\mu\text{m}$ ) et une surfusion d'activation plus élevée ( $\Delta T=0,47^\circ\text{C}$ ).

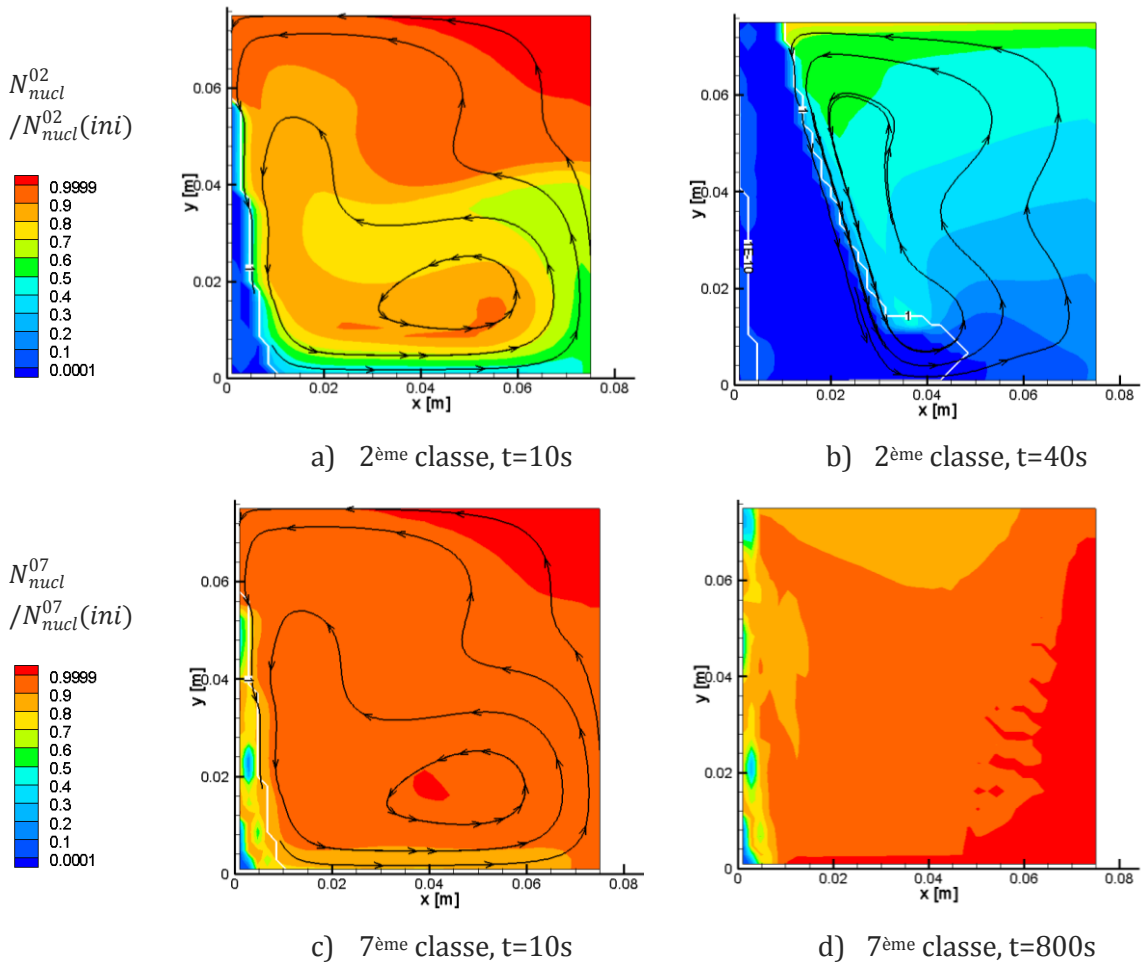


Figure 3- 24 : Cartes de densité de germes relative (normalisée par la densité initiale de la classe étudiée), lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide en noir et lignes de liquidus et de solidus en blanc (données par la fraction solide), pour la 2<sup>ème</sup> classe de germes ( ( a) et (b)) et la 7<sup>ème</sup> classe de germes ( ( c) et (d)), à différents instants, pour le Cas 2.

Au début de la solidification, lorsque la zone pâteuse avance depuis la paroi refroidie vers la paroi opposée, l'écoulement induit par la convection thermo-solutale est dirigé dans le sens trigonométrique. Du liquide contenant une forte densité de germes est donc amené de la zone totalement liquide vers la zone de germination dans la partie supérieure du lingot. Si la surfusion est suffisamment élevée dans la zone de germination pour activer une certaine classe de germes, cette classe disparaît pour former des grains. Le liquide quittant la zone de germination dans la partie inférieure du lingot pour retourner dans la zone totalement liquide est alors moins riche en germes et la densité de germes dans la zone totalement liquide diminue. Ce phénomène est illustré Figure 3- 24-a et Figure 3- 24-b pour la 2<sup>ème</sup> classe de germes. La densité de germes de cette classe diminue de plus de 50% après 40s. Ainsi, la ségrégation en germes induit une augmentation de la densité de grains près de la paroi refroidie de par l'alimentation en germes, tandis que le liquide s'appauvrit en germes au cours du temps, menant à une densité de grains plus faible près de la paroi droite du lingot. Ceci explique l'augmentation du gradient de densité de grains dans le lingot dans le Cas 2 comparativement au Cas 1, comme on peut le voir Figure 3- 19-a.

La ségrégation en germes a cependant des effets différents pour les germes de petite taille et de grande taille. Les gros germes sont activés à des surfusions faibles, qui sont atteintes dans tout le lingot, dans le Cas 1 aussi bien que dans le Cas 2. La ségrégation des germes de grande taille induit donc simplement une redistribution de la densité de grains, mais ne modifie pas la densité totale de grains dans le lingot. A l'inverse, les germes de petite taille sont activés à de fortes surfusions, qui ne sont atteintes que près de la paroi refroidie. La ségrégation de ces petits germes n'impacte donc pas le reste du lingot, mais a pour unique effet d'augmenter la densité de grains près de la paroi refroidie (Figure 3- 24-c et Figure 3- 24-d). L'effet du mouvement des germes est clairement visible Figure 3- 23, où l'évolution de la densité moyenne de grains dans le lingot est donnée pour le Cas 1 et le Cas 2. Dans le cas où la zone de forte surfusion est alimentée en germes, la densité moyenne de grains augmente plus rapidement, menant à une augmentation de la densité moyenne finale.

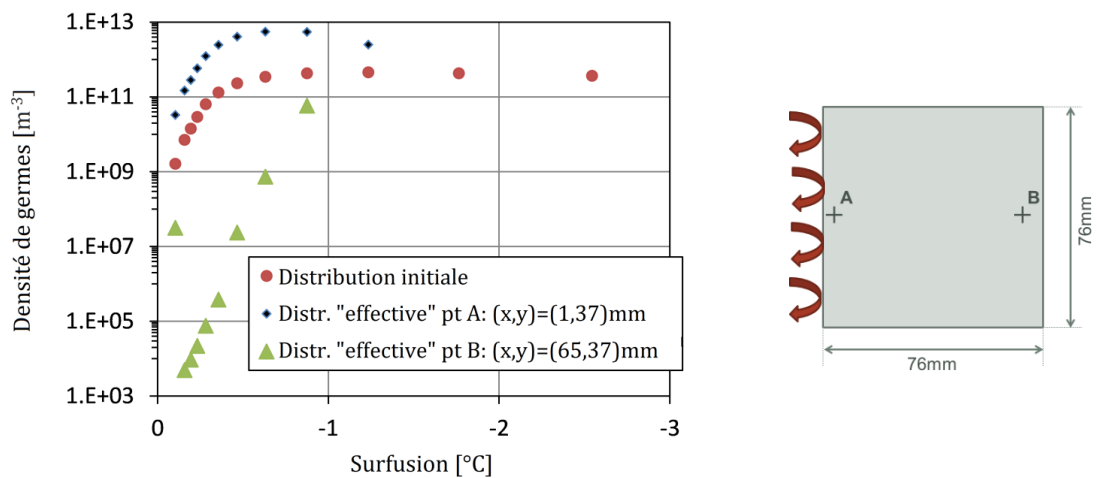


Figure 3- 25 : Densité « effective » des classes de germes pour le Cas 2. L'impact du mouvement des germes est illustré en donnant la distribution de germes localement activée en deux points du lingot A et B, comparée à la distribution nominale de germes (en rouge). Ces deux distributions sont donc données jusqu'à la surfusion maximale atteinte localement.

Plus précisément, dans la zone près de la paroi refroidie, l'alimentation en germes mène à une densité de grains plus élevée pour une surfusion donnée. La compétition entre germination et croissance est donc modifiée et on constate que la surfusion maximale atteinte près de la paroi est plus faible dans le Cas 2 que dans le Cas 1 (Figure 3- 19-b). Puis lorsque l'on s'éloigne de cette paroi, le liquide est plus pauvre en germes et la surfusion devient plus grande que dans le Cas 1. En regardant le nombre de grains formés à partir de chaque classe de germes, il est possible de reconstruire la distribution en taille « effective » induite par le mouvement des germes. La Figure 3- 25 donne la distribution effective pour deux positions dans le lingot, le point A près de la paroi refroidie ((x,y)=(1,37)mm) et le point B près de la paroi opposée ((x,y)=(65,37)mm) : ceci démontre l'impact significatif du mouvement des germes.

### 3.6. Impact du transport des grains (Cas 3)

Lorsque le mouvement des grains est pris en compte, la germination, la solidification et l'écoulement changent de façon significative. Les grains sont tout d'abord formés près de la paroi refroidie et sont transportés vers l'intérieur du lingot, formant la zone pâteuse. Lorsque la fraction solide atteint la fraction solide de blocage (imposée à  $g_{sp}=0,27$  dans notre étude), les grains sont fixés. La Figure 3- 26 donne la carte de fraction solide ainsi que les lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide à  $t=73s$  pour le Cas 3. On constate que le sens de l'écoulement dans la zone pâteuse reste inchangé par rapport au Cas 1 et au Cas 2. Sans mouvement des grains, l'écoulement est dans le sens trigonométrique, comme on l'a vu Figure 3- 22. La densité du liquide est en effet augmentée par refroidissement et enrichissement en soluté près de la paroi refroidie. Lorsque le mouvement des grains est pris en compte, l'écoulement pourrait être modifié car les grains, plus légers que le liquide pour l'alliage Al-22wt.%Cu (Figure 3- 17), tendent à flotter. Cependant, la différence de densité des deux phases n'est pas assez importante pour inverser le sens de l'écoulement. La densité moyenne croit toujours avec la fraction solide, car la diminution de la densité moyenne du fait de la solidification est plus que compensée par l'augmentation de la densité du liquide induite par l'enrichissement en soluté et le refroidissement. Ainsi, la direction de l'écoulement reste inchangée. Cependant, la forme de cet écoulement est clairement modifiée : une deuxième boucle de circulation apparaît dans le bas du lingot. La phase solide étant plus légère que le liquide, les grains flottent et s'accumulent en haut du lingot, menant à une zone de faible fraction solide dans le bas du lingot, comme on peut le voir Figure 3- 26.

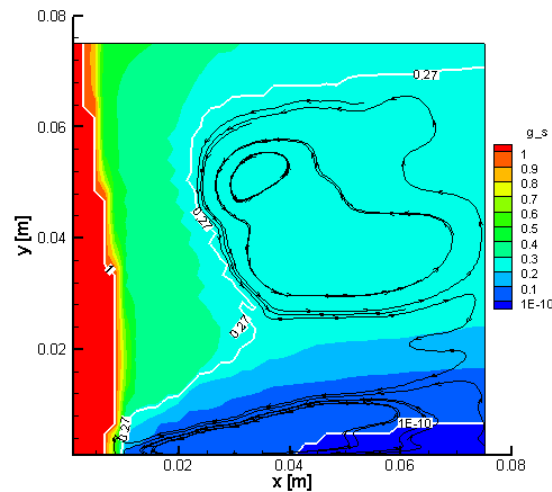


Figure 3- 26 : Carte de fraction solide, contours de liquidus, de blocage des grains et de solidus (à partir de la fraction solide) en blanc et lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide en noir à 73s pour le Cas 3.

Le transport des grains modifie de façon significative l'intensité des ségrégations dans le lingot. Les grains moins riches en soluté et plus légers que le liquide flottent, d'où l'augmentation de la zone et de l'intensité de la ségrégation négative en haut du lingot (Figure 3- 21-a et Figure 3- 21-c). A l'inverse, le liquide s'enrichit en soluté au cours de la solidification en bas du lingot, induisant l'amplification de la ségrégation positive en bas à droite du lingot, la dernière zone à solidifier. On atteint même la composition de soluté

eutectique dans cette zone, c'est-à-dire 32,7%. Le mouvement des grains s'ajoute donc à la convection du liquide et amplifie les macroségrégations.

L'étude du Cas 3 nous permet également de mettre en évidence l'impact du mouvement des grains à l'échelle du produit sur la dynamique de la compétition germination-croissance. Dans le Cas 3, les germes restent fixes, dont la ségrégation en germes n'a pas lieu. La solidification commence près de la paroi refroidie : dans cette zone, les grains quittent la zone de germination pour l'intérieur du lingot. Ceci modifie profondément la compétition entre germination et croissance. Du fait de la plus faible densité de grains dans la zone de germination, la croissance est limitée et la surfusion continue à augmenter. Ainsi, la germination continue jusqu'à ce que tous les germes soient activés et qu'il n'en reste plus aucun. Une très forte surfusion est observée dans cette région, comme on peut le voir à mi-hauteur Figure 3- 19-b. Comme les grains sont transportés vers l'intérieur du lingot, une zone pâteuse plus étendue apparaît, dans laquelle la surfusion reste faible. La germination n'a donc pas lieu dans cette zone, qui s'étend jusqu'à occuper tout l'espace du lingot.

On peut remarquer que l'origine des grains est très localisée : la plupart des grains est formée dans la zone de forte surfusion dans le 1<sup>er</sup> centimètre près de la paroi refroidie, alors que la germination dans le reste du lingot reste faible (Figure 3- 19-c). On peut observer la zone de germination après 30s dans ce cas Figure 3- 20-b ; elle reste proche de la paroi refroidie contrairement au Cas 1 (Figure 3- 20-a). La vitesse de refroidissement plus élevée près de la paroi refroidie induit déjà une plus forte densité de grains formés, mais on observe que le mouvement des grains amplifie cette tendance. La durée de la germination dans le Cas 1 et le Cas 3 donnée Figure 3- 19-b le montre clairement. Deux zones sont alors à distinguer : une zone de germination près de la paroi refroidie, dans laquelle sont formés la plupart des grains du lingot, et le reste du lingot, alimenté en grains. Il est à noter que le transport des grains est assez efficace pour donner une densité finale de grains très homogène dans tout le lingot, comme on peut le voir Figure 3- 19-a. On constate également que la densité finale moyenne de grains dans le lingot est légèrement plus faible lorsque les grains bougent (Cas 1 et Cas 3 de la Figure 3- 23). Le mouvement des grains induit donc dans notre étude non seulement une uniformisation des tailles de structures mais également une légère augmentation de leur taille moyenne.

### 3.7. Impact couplé du transport des germes et des grains (Cas 4)

Enfin, le mouvement des grains et le mouvement des germes sont tous deux pris en compte dans le Cas 4. L'écoulement reste inchangé par rapport au Cas 3, mais la germination près de la paroi refroidie est totalement modifiée. Comme dans le cas précédent, les germes sont activés près de la paroi et les grains sont ensuite transportés dans le reste du produit. La surfusion est donc maintenue élevée dans cette zone, tout comme dans le Cas 3. Le mouvement des grains a également tendance à homogénéiser la taille des structures dans le lingot (Figure 3- 19a). Cependant, maintenant que le mouvement des germes est pris en compte, la zone de germination est continuellement alimentée en germes (comme nous l'avons vu dans le Cas 2). L'efficacité de la zone de germination est donc fortement augmentée. L'alimentation en germes induit une augmentation de la durée de germination dans cette

zone par plus d'un facteur 3, comme on peut le voir Figure 3- 19-c. On constate également que la surfusion dans cette zone est plus faible que dans le cas où le mouvement des germes est négligé (Cas 3 et Cas 4 de la Figure 3- 19-b). En effet, la densité de grains formés à chaque instant dans cette zone est plus élevée donc l'effet de la croissance sur la surfusion est plus important. On observe une séparation encore plus nette entre la zone de germination, toujours localisée sur le premier centimètre près de la paroi refroidie, et le reste du lingot (Figure 3- 19-c). La formation de grains dans la première est plus élevée tandis qu'elle est désormais strictement nulle dans la seconde. En effet, la source de grains venant de la zone de germination est désormais suffisante dans le reste du lingot: la surface d'interface solide-liquide est assez élevée pour permettre une solidification avec une surfusion très faible. La germination est alors bloquée.

Comme nous l'avons dit, la source de grains venant de la zone de germination est augmentée par le transport des germes. L'évolution de la densité moyenne de grains dans le lingot au cours du temps donnée Figure 3- 23 montre que la densité moyenne de grains finale est plus de trois fois plus élevée lorsque les germes bougent (comparaison du Cas 3 et du cas 4). De plus, on peut voir Figure 3- 19-a que la densité finale de grains obtenue dans le Cas 4 est même plus élevée que celle obtenue près de la paroi refroidie dans le Cas 1. Cela signifie que le transport des germes a un effet plus important sur la microstructure que la vitesse de refroidissement et que l'efficacité de la zone de germination est contrôlée par le transport des germes.

La comparaison du Cas 3 et du Cas 4 montre que le mouvement des germes a également un impact sur la formation des macroségrégations (Figure 3- 21-c et Figure 3- 21-d). Les zones ségréguées positivement ou négativement restent les mêmes mais l'intensité des hétérogénéités est réduite lorsque le mouvement des germes est pris en compte. En effet, le mouvement des germes impacte la formation des structures et donc le mouvement des grains. Dans le Cas 4, beaucoup plus de grains sont formés. Leur taille est donc plus faible et leur vitesse relative par rapport au liquide, proportionnelle au carré de leur diamètre, est réduite. L'effet du mouvement des grains est alors atténué et les ségrégations sont réduites par rapport au Cas 3. La prise en compte du mouvement des germes a donc pour effet d'atténuer les macroségrégations et d'affiner la taille des structures.

### 3.8. Impact du modèle de croissance

Jusqu'à présent, la morphologie des grains a été prise en compte de façon très simplifiée en supposant des grains globulaires, approximés par des sphères. Voyons maintenant comment la prise en compte de la morphologie dendritique des grains modifie notre analyse. Les grains ne sont plus bloqués à  $g_s=0,27$  mais à  $g_{env}=0,27$ .

On donne Figure 3- 27 le champ de température ainsi que les isolignes de fraction solide et les vecteurs de vitesse intrinsèque de la phase liquide à  $t=50s$  pour les trois modèles de croissance, sans mouvement des grains (a-b-c) et avec (d-e-f) :

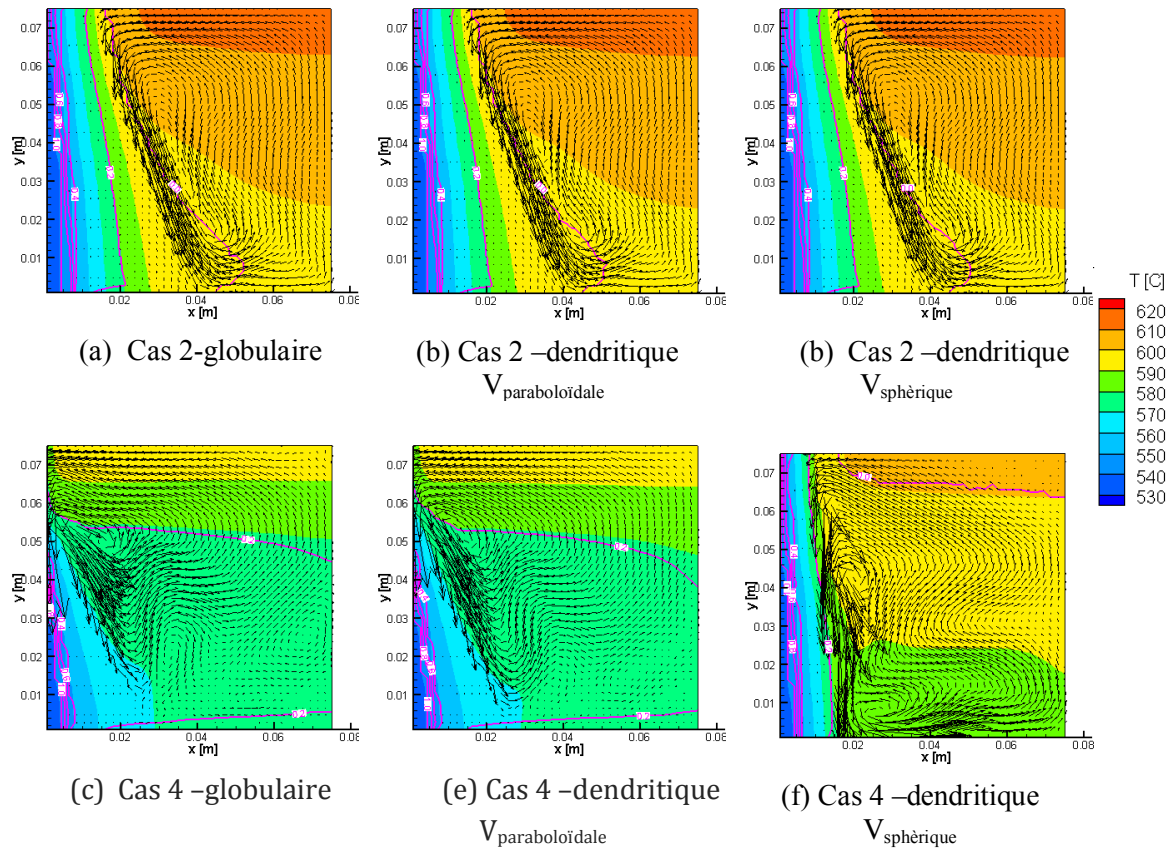


Figure 3- 27 : Carte de température, vecteurs de vitesse intrinsèque du liquide en noir et isolignes de fraction solide en rose après 50s pour (a-b-c) le Cas 2 (sans mouvement des grains) et (d-e-f) le Cas 4 (avec mouvement des grains) avec trois modèles de croissance différents : (a-d) globulaire, (b-e) dendritique avec pointe parabolique et (c-f) dendritique avec pointe hémisphérique.

On constate que lorsque le mouvement des grains n'est pas pris en compte, le modèle de croissance change très peu l'écoulement et le refroidissement. La recalescence a lieu avant que la dendritisation des grains ne modifie notablement le couplage germination/croissance. La carte de densité finale de grains est donc sensiblement identique pour les trois modèles de croissance, comme on peut le voir Figure 3- 28(a-b-c). De plus, étant donné que les grains sont supposés fixes et que l'écoulement n'est pas dépendant du modèle de croissance, la formation des macroségrégations est identique dans les trois cas et correspond à la Figure 3- 21-b.

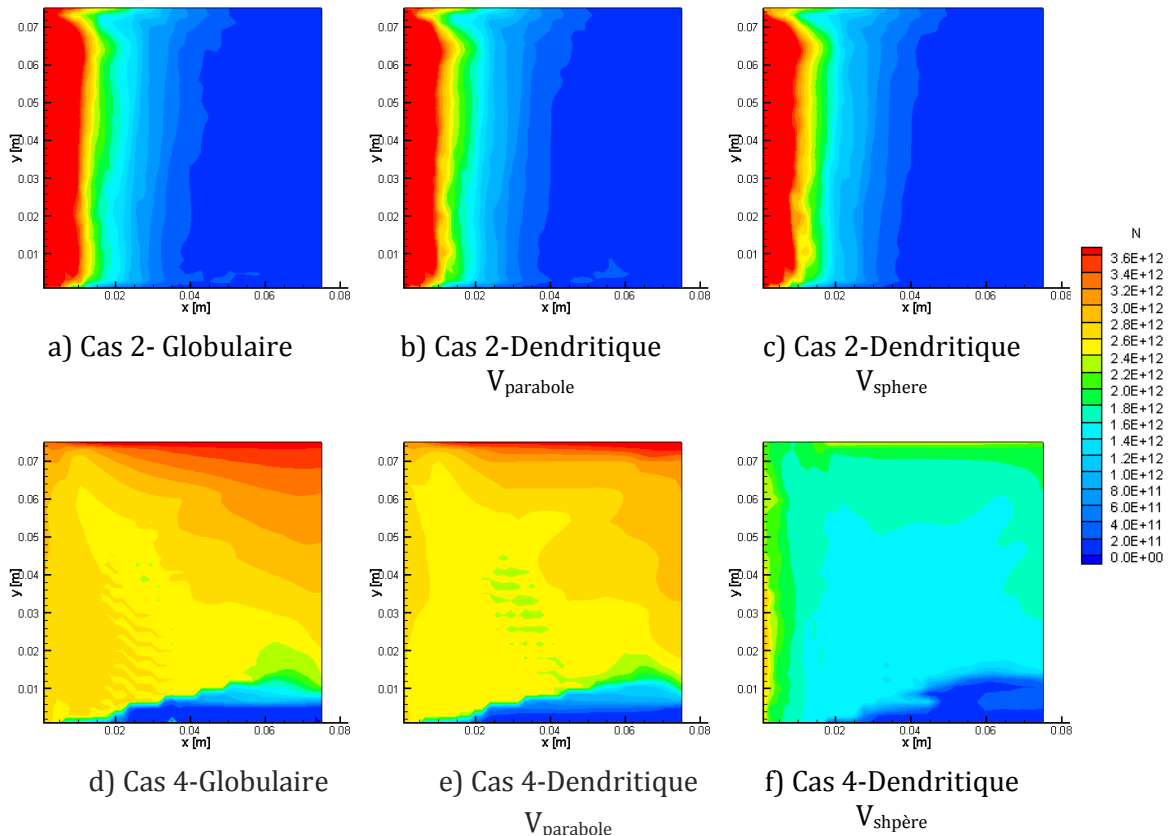


Figure 3- 28 : Carte finale de densité de grains pour le Cas 2 (a-b-c) et le Cas 4 (d-e-f) pour trois modèles de croissance des grains : (a-d) grains globulaires, (b-e) grains dendritiques et modèle de pointe parabolique et (c-f) grains dendritiques et modèle de pointe hémisphérique.

Lorsque le mouvement des grains est pris en compte, l'effet du modèle de croissance est beaucoup plus important. On peut constater Figure 3- 27(d-e-f) que si le modèle dendritique avec pointe parabolique donne des résultats très proches de ceux obtenus avec le modèle globulaire, il n'en est pas de même pour le modèle dendritique avec pointe hémisphérique. Dans ce dernier cas, le refroidissement est plus lent et la solidification plus rapide (excepté près de la paroi refroidie en haut). La carte finale de densité de grains est alors totalement modifiée (Figure 3- 28-d-e-f). Afin d'analyser l'effet du modèle de croissance sur la taille finale des structures dans le cas où les grains bougent, nous regardons les profils horizontaux à mi-hauteur de la densité de grains, de la surfusion maximale atteinte, de la durée de germination et de la morphologie (fraction interne  $g_i = g_s / g_{env}$  au moment du blocage des grains) pour quatre cas. Dans le Cas 3 les germes sont fixes et dans le Cas 4 leur mouvement est pris en compte. Dans les deux cas, le mouvement des grains est pris en compte jusqu'à une fraction de grain égale à 0,27. Dans le Cas 4, trois hypothèses de croissance différentes sont faites. Les grains sont supposés globulaires (en vert) ou dendritiques (en bleu marine), et la vitesse de pointe des dendrites est basée sur un modèle de pointe hémisphérique (traits pleins) ou parabolique (pointillés) :



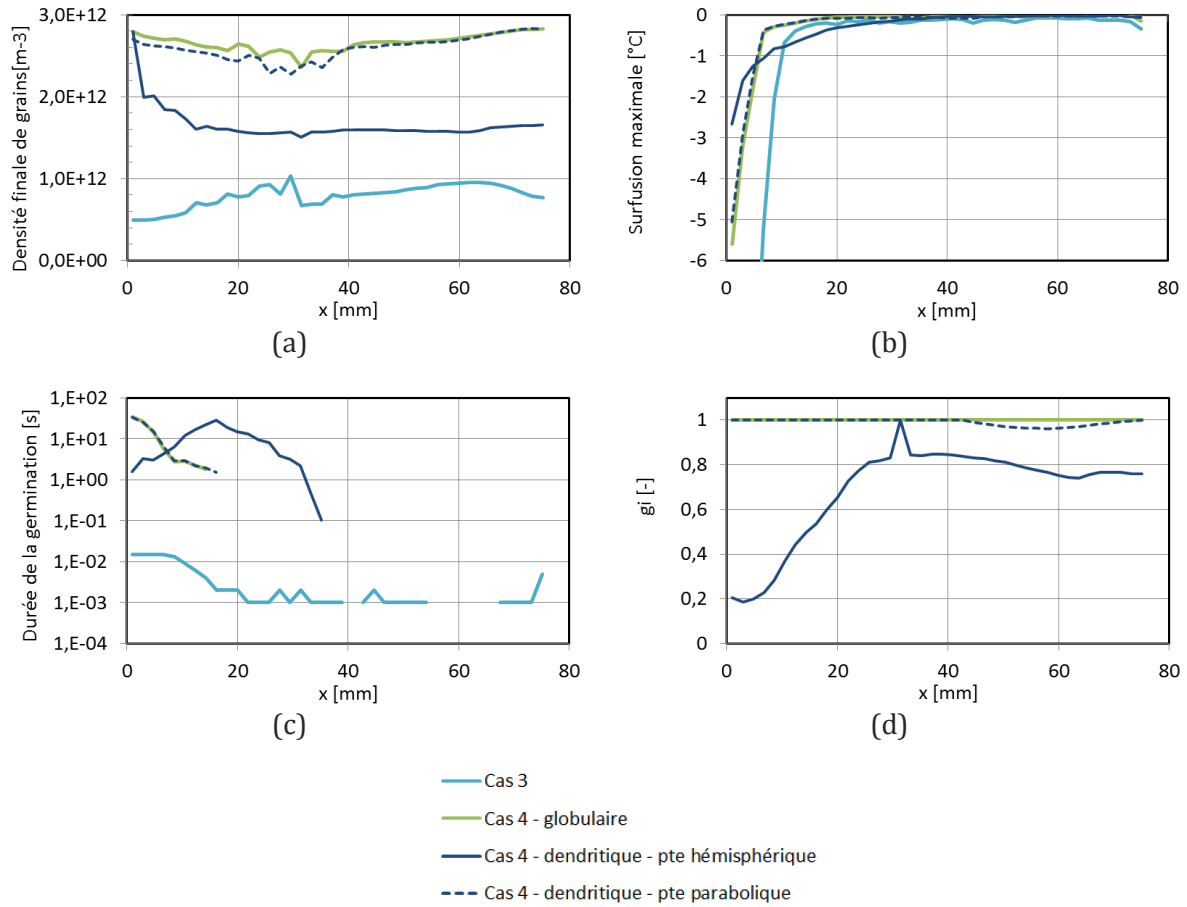


Figure 3- 29 : Profils horizontaux à mi-hauteur ( $y=37mm$ ) pour le Cas 3 et le Cas 4 avec différents modèles de croissance pour (a) la densité finale de grains, (b) la surfusion maximale atteinte, (c) la durée locale de germination et (d) la fraction interne  $g_i=g_s/g_{env}$  au moment du blocage des grains ( $g_{env}=0.27$ ).

On peut constater Figure 3- 29-d que le modèle dendritique avec pointes paraboloidales prédit pour la configuration étudiée une morphologie globulaire. En conséquence, les différences par rapport au modèle globulaire sont négligeables (Figure 3- 28 à Figure 3- 30).

Au contraire, lorsque la forme des pointes est supposée hémisphérique, les résultats sont totalement différents. Près de la paroi refroidie, les enveloppes croissent plus vite, donc la surfusion augmente plus rapidement, favorisant la croissance de la phase solide (voir chapitre II). La recalescence intervient alors plus tôt : la surfusion maximale atteinte est plus faible (Figure 3- 29-b) et la durée de la germination est plus faible également (Figure 3- 29-c). La densité moyenne de grains dans le lingot augmente alors moins rapidement, comme on peut le voir Figure 3- 30 :

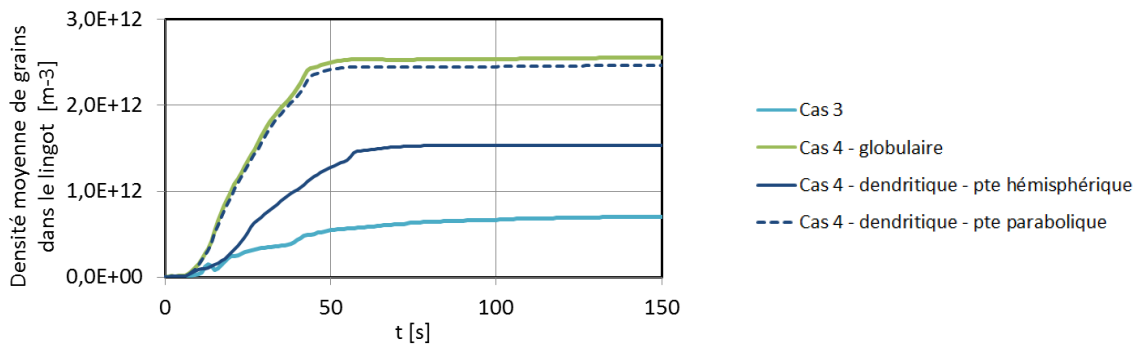


Figure 3- 30 : Evolution de la densité moyenne de grains dans le lingot pour quatre cas, le Cas 3 et le Cas 4 avec trois modèles de croissance.

Les grains étant moins nombreux et bloqués plus rapidement, l'alimentation en grains depuis la paroi refroidie vers le reste du lingot n'est plus suffisante pour empêcher la germination dans le reste du lingot: la zone de germination est élargie et les grains germent sur près de la moitié du lingot (Figure 3- 29-c). La densité moyenne de grains évolue donc plus longtemps, mais ne suffit pas à former autant de grains que dans le cas de pointes paraboliques : la densité finale de grains est plus faible (Figure 3- 30) et les grains plus dendritiques (Figure 3- 29-d). La microstructure est donc notablement impactée par le modèle de croissance de pointe choisi.

De même, la formation des macroségrégations est différente selon que le modèle de pointe est parabolique ou hémisphérique. La prise en compte de la morphologie avec un modèle de pointe parabolique modifie très peu la carte de ségrégation finale par rapport au cas globulaire (Figure 3- 21-d et Figure 3- 21-f) car l'écoulement et le mouvement des grains ne sont pas affectés. Lorsque les pointes sont supposées hémisphériques, les grains sont bloqués à des fractions solides plus faibles. L'effet du mouvement des grains sur les macroségrégations est donc réduit, et l'intensité de la ségrégation est réduite également (Figure 3- 21-e et Figure 3- 21-f).

Cette première partie de l'étude a donc permis de mettre en évidence l'effet des phénomènes de transport sur la germination. Le mouvement des germes affine la taille des structures : cette tendance est observée sans ou avec mouvement des grains. Le mouvement des grains a pour effet d'amplifier ce phénomène. De plus, il modifie la localisation et l'intensité de la zone de germination et il homogénéise la distribution de la taille des structures dans le lingot. Le modèle de croissance a également un impact important sur la formation des structures lorsque le mouvement des grains est pris en compte. Cette étude mène à la conclusion que le mouvement des germes est un phénomène prépondérant dans la formation des structures dans les alliages affinés. Il semble donc inévitable de prendre en compte le mouvement des germes dans l'étude de la formation des structures à l'échelle du procédé.

### 3.9. Comparaison aux résultats expérimentaux

Après avoir étudié l'impact des différents phénomènes de transport sur la formation des macroségrégations et des structures, voyons si notre modèle permet de reproduire au moins qualitativement les tendances observées expérimentalement.

On peut comparer les cartes de ségrégation obtenues pour les différentes hypothèses de calcul (données Tableau 3- 1) au profil expérimental de ségrégation obtenu par mesure de composition aux positions marquées d'un point noir (données dans (Kumar A. 2008)) Figure 3- 31. La composition est déterminée sur des échantillons cylindriques de 2,4 mm de diamètre sur 10 mm de hauteur. Des profils de ségrégation sont également tracés pour  $y=5\text{mm}$  et  $x=70\text{mm}$  Figure 3- 32. On peut constater qu'un modèle très simple négligeant le mouvement des grains ainsi que leur morphologie (Figure 3- 31-a et Figure 3- 31-b) permet déjà de prédire les tendances : la composition est maximale en bas à droite et plus faible en haut du lingot. Cependant, la composition minimale n'est pas située en haut à droite du lingot comme dans l'expérience. De plus, la région de ségrégation positive est plus étendue que dans l'expérience.

Lorsque le mouvement des grains est pris en compte (en imposant leur blocage à  $g^{\text{bloc}}=0,27$ ) et en supposant les grains globulaires (Figure 3- 31-c et Figure 3- 31-d), on constate que l'enrichissement en soluté en bas du lingot est très largement surestimé. La prise en compte du mouvement des grains permet cependant de prédire correctement la localisation de la ségrégation négative, en haut à droite du lingot. Lorsque le mouvement des germes est considéré, l'intensité des macroségrégations est atténuée (Figure 3- 31-d) mais reste surestimée en bas du lingot.

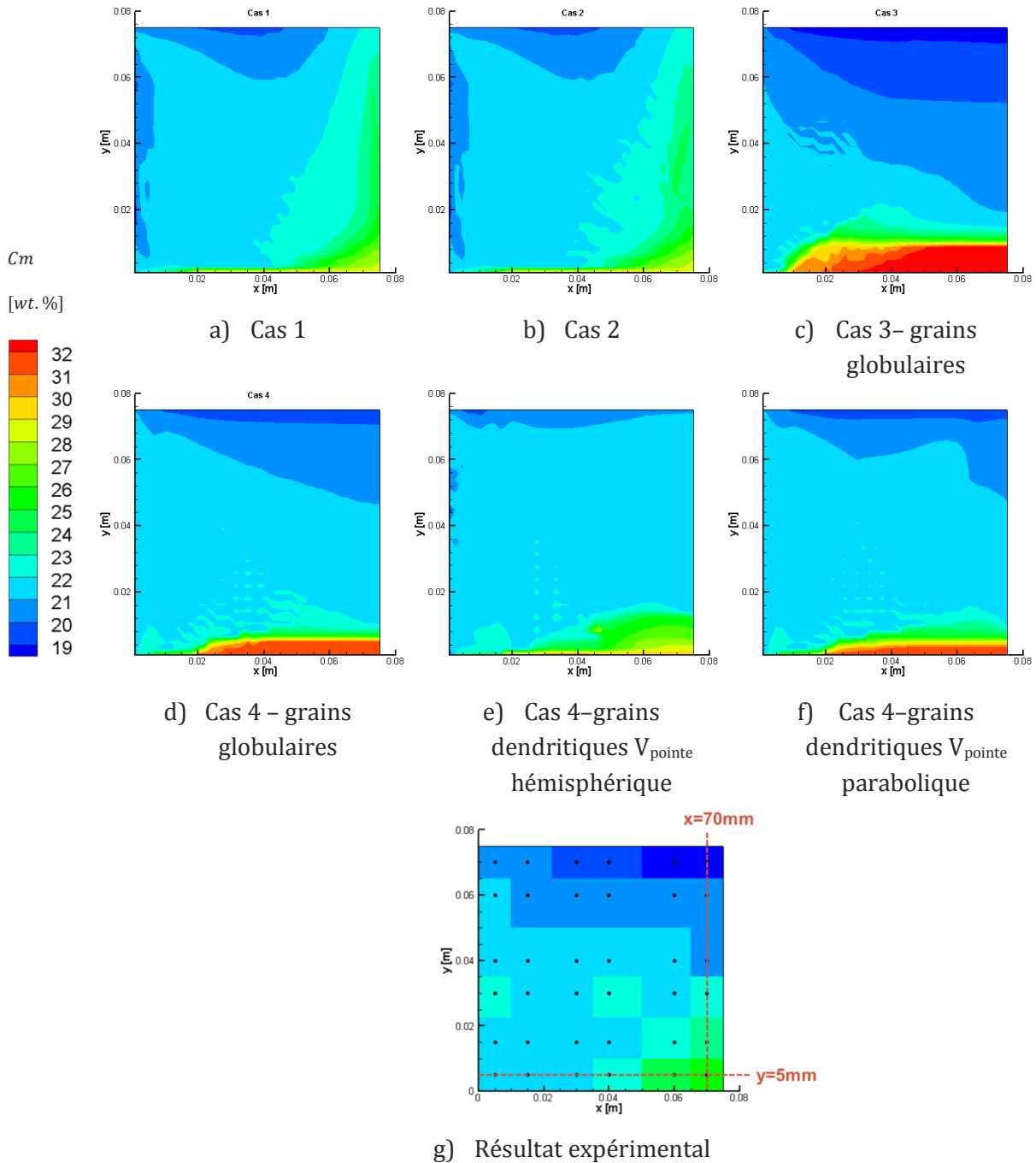


Figure 3- 31 : Cartes finales de composition en soluté obtenues par le modèle pour différentes hypothèses ((a) à (f)) (données Tableau 3- 1) et (g) par l'expérience (issu de (Kumar A. 2008)).

Puis lorsque la morphologie dendritique des grains est modélisée, la carte finale de ségrégation se rapproche de la carte expérimentale. On constate que le modèle de pointe hémisphérique (Figure 3- 31-e) permet de retrouver la localisation et l'intensité de la zone de ségrégation positive en bas à droite du lingot tandis que le modèle de pointe parabolique (Figure 3- 31-f) induit une surestimation de cette ségrégation positive (la composition eutectique est même atteinte en bas du lingot). On peut le voir clairement Figure 3- 32-b le long du profil vertical à  $x=70\text{mm}$ . A l'inverse, le modèle de pointe paraboloidale permet de prédire de façon légèrement plus précise la ségrégation négative en haut à droite du lingot

(Figure 3- 31-f). Ainsi, si aucun des modèles ne permet d'estimer précisément la composition finale dans tout le lingot, le modèle de pointe hémisphérique en donne une estimation plus précise. En effet, le Cas 4 avec le modèle de pointe hémisphérique, en prenant en compte le transport des grains et des germes ainsi que la morphologie dendritique des grains, semble donner l'estimation la plus précise de la carte finale de ségrégation obtenue expérimentalement.

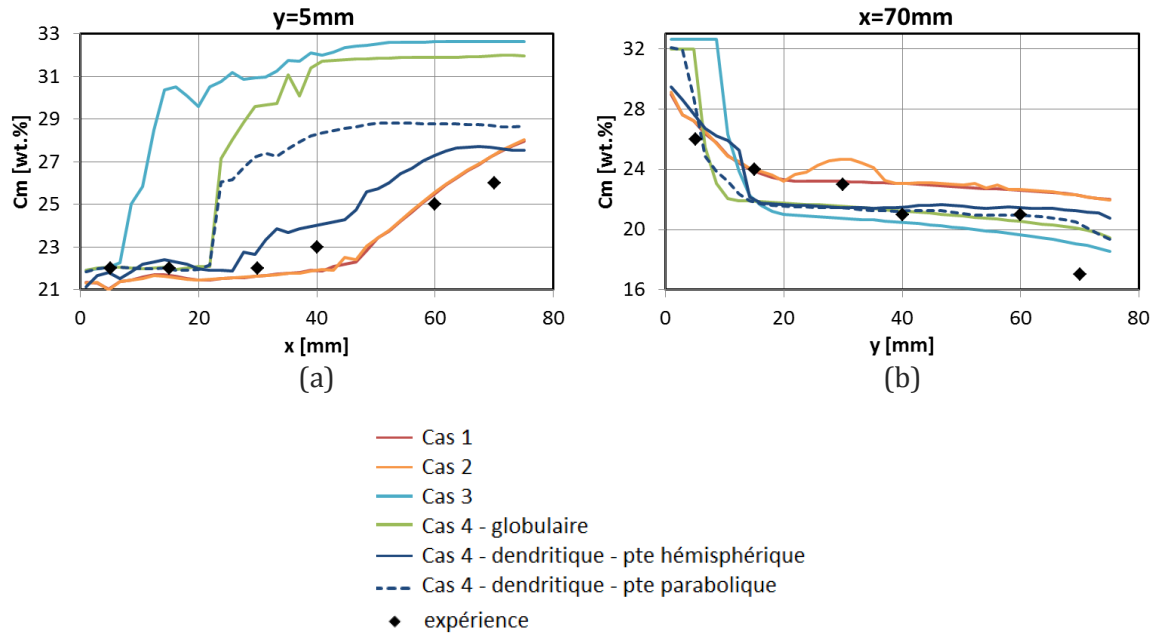


Figure 3- 32 : Profils de composition en soluté obtenus par le modèle pour les différents cas (en traits pleins) et par l'expérience (points noirs, tirés de (Kumar A. 2008)) pour (a)  $y=5mm$  et (b)  $x=70mm$ .

Intéressons-nous maintenant à l'estimation de la taille finale des grains dans le lingot. Elle est obtenue dans le modèle à partir de la densité finale de grains et de la fraction eutectique par l'expression suivante :

$$d = \left( \frac{6(1 - g_{eut})}{\pi N} \right)^{1/3} \quad (3.8)$$

Deux profils de diamètre final de grains sont donnés : un profil horizontal à  $y=15mm$  Figure 3- 33 et un profil vertical à  $x=60mm$  Figure 3- 34. Les prédictions du modèle sont comparées aux images des structures obtenues lors de l'expérience. Même si la comparaison à l'expérience est seulement qualitative, on peut constater que la prise en compte du mouvement des grains entraîne une homogénéisation des tailles de structures que l'on n'observe pas dans les micrographes. A  $y=15mm$ , on constate en effet que la taille de grains dans les images issues de l'expérience est beaucoup plus faible à  $x=15mm$  qu'aux deux positions suivantes (Figure 3- 33). Ce n'est pas le cas dans les prédictions du modèle dès lors que le mouvement des grains est pris en compte. Il est donc possible que nous ne modélisons pas correctement le blocage des grains.

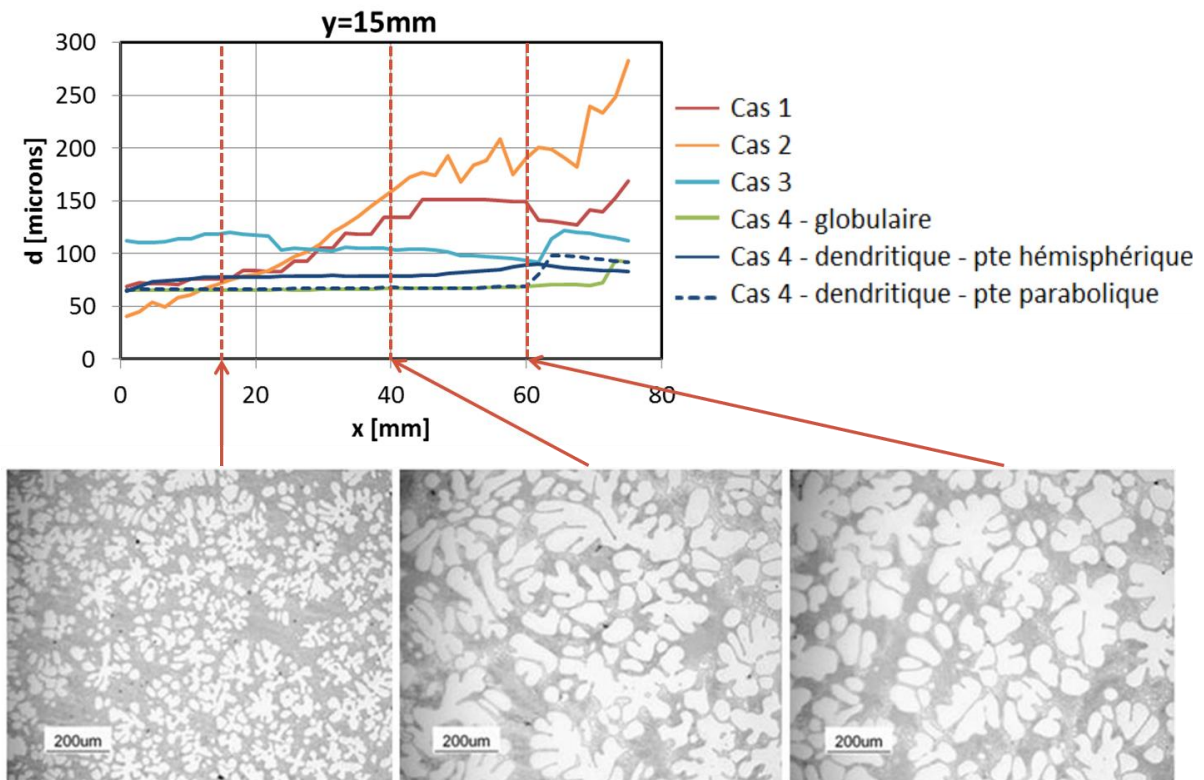


Figure 3- 33 : Comparaison du profil de taille finale de grain obtenu par le modèle pour les différents cas à y=15mm aux micrographes obtenus par l'expérience à cette même hauteur : x=15mm, 40mm et 60mm.

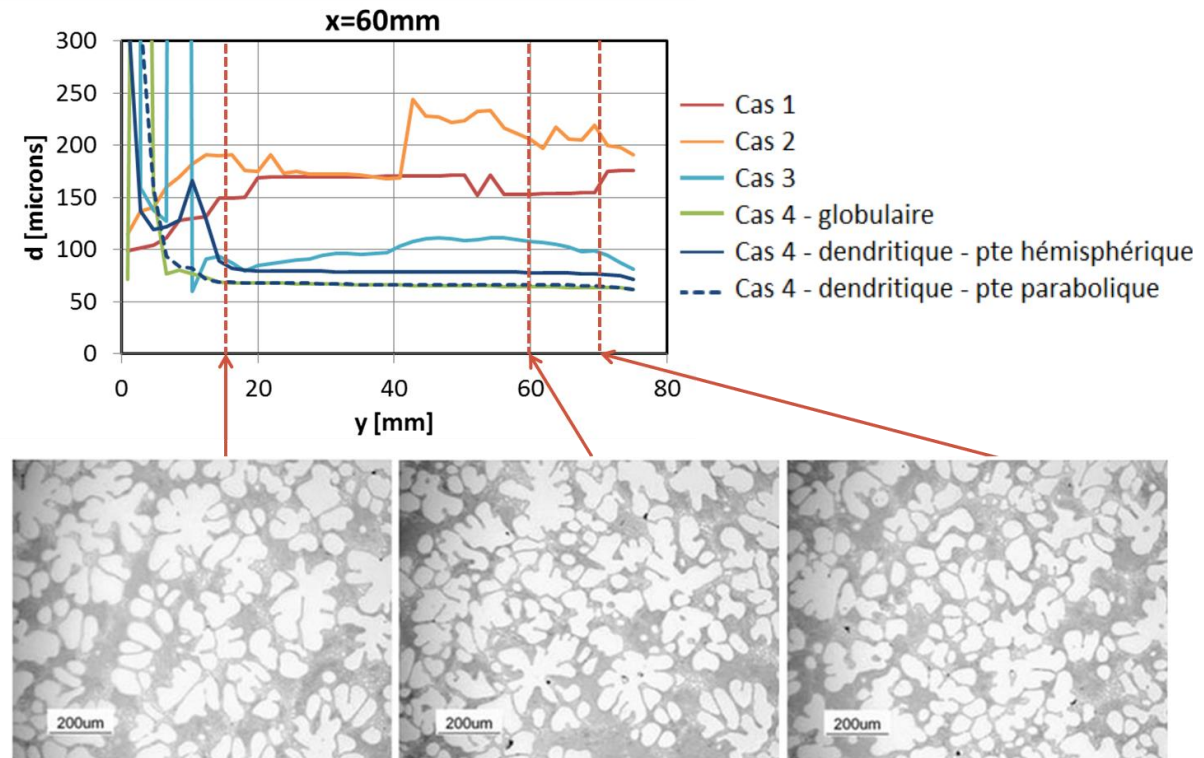


Figure 3- 34 : Comparaison du profil de taille finale de grain obtenu par le modèle pour les différents cas à x=60mm aux micrographes obtenus par l'expérience à cette même abscisse : y=15mm, 60mm et 70mm.

Le long du profil vertical à  $x=60\text{mm}$  (Figure 3- 34), l'analyse est moins claire car quel que soit le modèle choisi, la taille finale de grains est relativement homogène. D'après les micrographes, il semblerait cependant qu'elle décroisse légèrement avec la hauteur.

○ *Effet de la fraction de blocage*

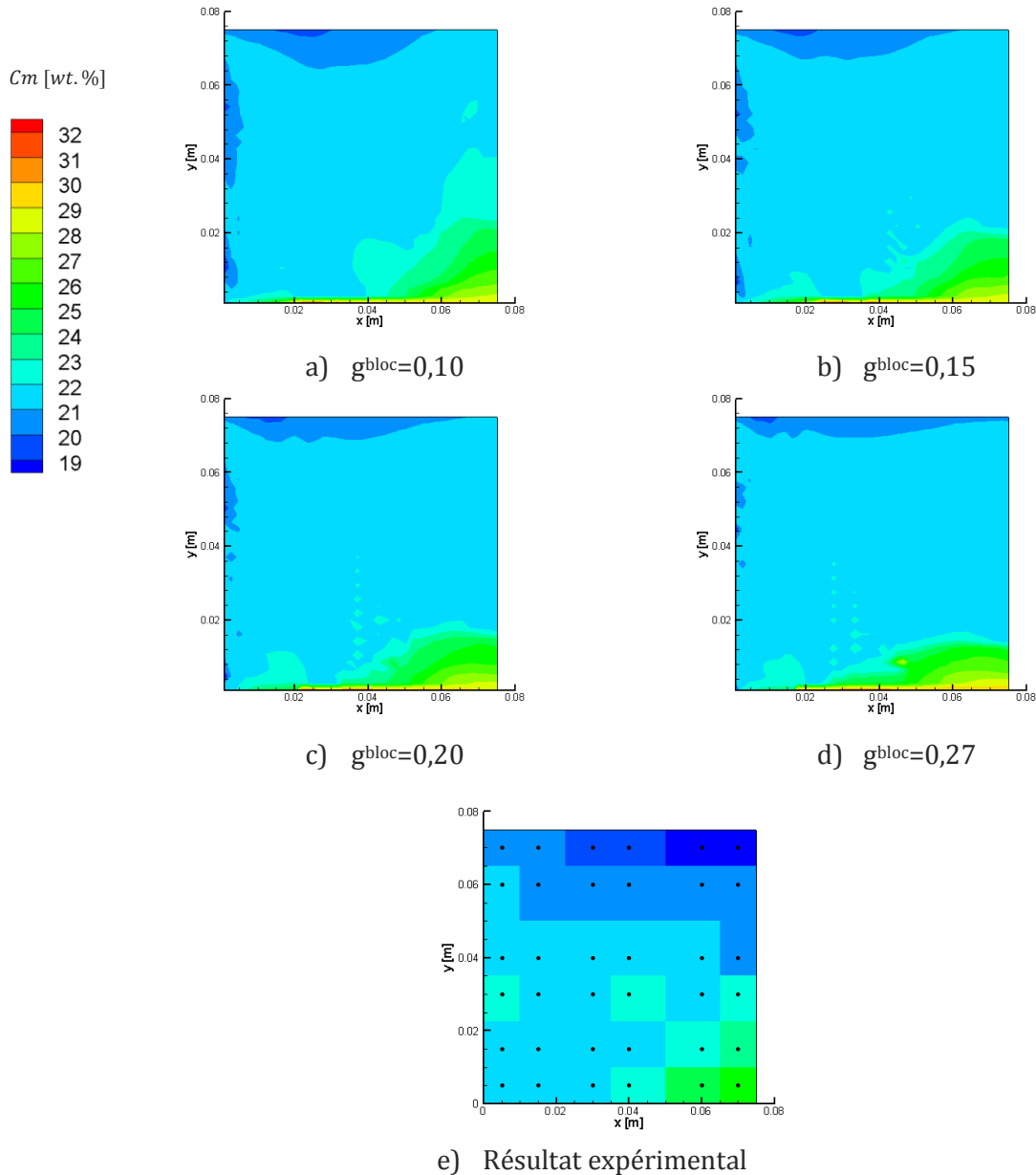


Figure 3- 35 : Cartes finales de composition en soluté obtenues par le modèle pour le Cas 4 (grains dendritiques et modèle de pointe hémisphérique) pour différentes valeurs de fraction de blocage des grains et (g) par l'expérience (issu de (Kumar A. 2008)).

Cette comparaison aux résultats expérimentaux a montré qu'aucun des cas testés ne permet de prédire à la fois la macroségrégation et les hétérogénéités de tailles de structures dans tout le lingot. Si la prise en compte du mouvement des grains et de leur morphologie dendritique (avec le modèle de pointe hémisphérique) permettent de prédire la macroségrégation, ils prédisent une taille de grain très uniforme dans le produit. Le critère pour le blocage des grains étant très simplifié, nous cherchons donc à tester l'impact de la

valeur de ce critère sur la microstructure. La fraction de grains de blocage, fixée jusqu'à présent à 0,27 (d'après (Kumar A. 2008)), est testée à 0,10 0,15 et 0,20. Les cartes de ségrégations sont données pour ces 4 valeurs de la fraction de blocage et comparées à la carte obtenue expérimentalement Figure 3- 35.

On observe que si les tendances restent les mêmes pour les quatre valeurs de la fraction de blocage, la zone de ségrégation positive en bas à droite du lingot s'aplanie et s'élargit lorsque la fraction de blocage augmente. En effet, lorsque la fraction de blocage des grains augmente, les grains sont bloqués plus tard donc l'alimentation en grains dans le reste du lingot est plus importante. L'enrichissement en soluté en bas du lingot apparaît plus rapidement car les grains ont le temps de flotter avant d'être bloqués, même relativement près de la paroi refroidie où la croissance est très rapide. Mais l'amplification du mouvement des grains induite par l'augmentation de la fraction de blocage modifie également la fin de la solidification. Les grains sont bloqués plus rapidement par empilement en haut du lingot, donc la zone où les grains peuvent bouger se réduit plus rapidement. L'enrichissement en soluté est alors plus localisé en bas du lingot, contrairement au cas  $g^{\text{bloc}}=0,1$  où la ségrégation est positive jusqu'à mi-hauteur.

La valeur de la fraction de blocage a l'effet attendu sur la formation des grains. Lorsque celle-ci augmente, les grains peuvent quitter la zone de germination jusqu'à des fractions d'enveloppe plus élevées, donc la surfusion dans la zone de germination est plus élevée au début de la solidification. Dans un premier temps, la densité de grains augmente donc plus rapidement. Plus loin de la paroi refroidie, plus la fraction de blocage des grains est élevée, plus l'alimentation en grains est importante, donc la germination est plus rapidement stoppée. La densité moyenne finale de grains formés dans le lingot est donc peu impactée par la fraction de blocage des grains, comme on peut le voir Figure 3- 36. Lorsque  $g^{\text{bloc}}$  augmente, la densité de grains augmente plus rapidement au début de la solidification mais elle atteint son maximum (lorsque la germination est terminée) plus rapidement également.

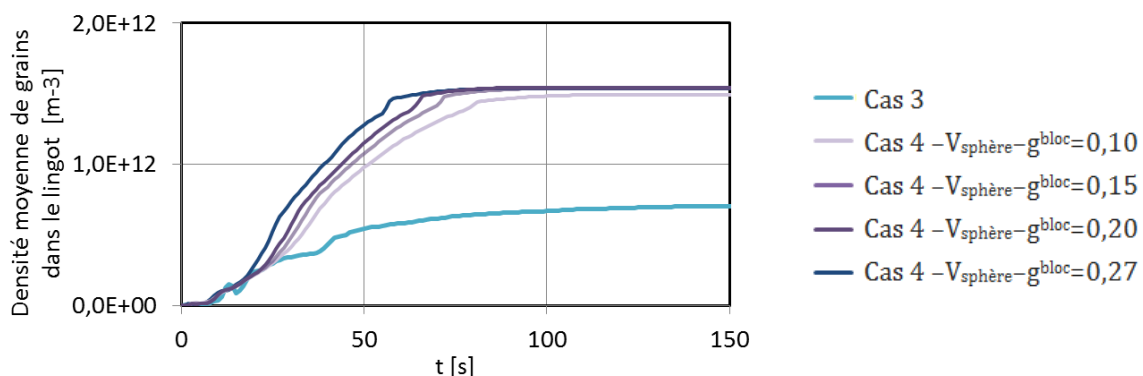


Figure 3- 36 : Evolution de la densité moyenne de grains dans le lingot pour quatre cas, le Cas 3 et le Cas 4 (grains dendritiques, modèle de pointe hémisphérique) pour quatre valeurs de la fraction de blocage.

L'effet de la fraction de blocage des grains sur la taille finale des structures est visible seulement en fin de solidification. En effet, le mouvement des grains rend la taille de grains très homogène dans le lingot (autour de  $80\mu\text{m}$ ). Seule la dernière zone à solidifier, en bas à



droite du lingot, est moins riche en grains lorsque la fraction de blocage diminue (Figure 3-37). On vient de voir que lorsque  $g^{bloc}$  augmente, la zone de transport des grains se réduit plus rapidement en fin de solidification. Le phénomène de flottaison des grains est donc atténué et la taille de grains dans la zone en bas à droite du lingot augmente moins.

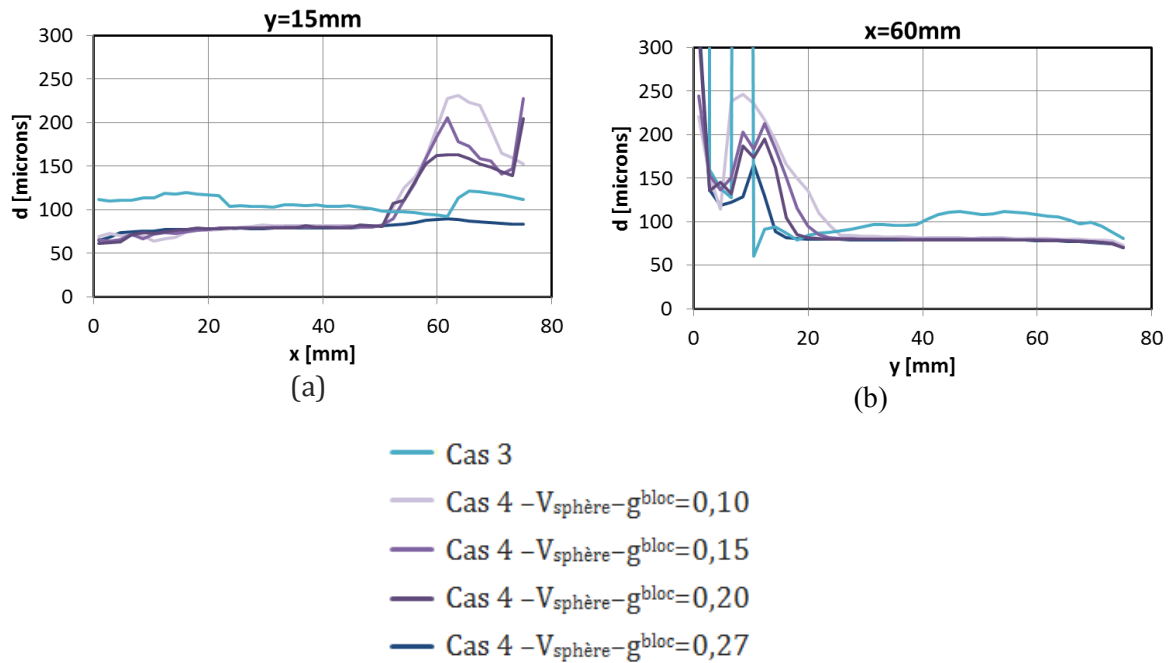


Figure 3- 37 : Profil de taille finale de grain obtenu par le modèle, pour le Cas 3 (sans mouvement des grains) et pour le Cas 4 (pour le modèle dendritique avec pointe hémisphérique) pour quatre fractions de blocage des grains à (a)  $y=15\text{mm}$  et (b)  $x=60\text{mm}$ .

La fraction de blocage des grains impacte donc principalement la fin de la solidification. L'intensité des ségrégations reste inchangée mais la localisation de la ségrégation positive est modifiée. La taille des grains dans cette zone en bas à droite du lingot diminue lorsque  $g^{bloc}$  augmente. Ce test sur la valeur de la fraction de blocage permet d'estimer plus précisément la carte finale de ségrégation : diminuer  $g^{bloc}$ , c'est-à-dire réduire l'impact du mouvement des grains, permet d'estimer quantitativement les ségrégations (Figure 3- 35-a et Figure 3- 35-e). La prédiction de la taille finale de grains n'est par contre pas améliorée.

#### ○ Effet du DAS

Voyons à présent comment l'écoulement dans la zone poreuse peut impacter la formation des hétérogénéités. L'écoulement dans cette zone dépend de la perméabilité, qui est supposée dans notre modèle être proportionnelle au carré du DAS. Ce paramètre a été pris égal à  $50\ \mu\text{m}$  dans toute l'étude d'après (Kumar A. 2008). On double ici cette valeur, c'est-à-dire que l'on prend pour longueur caractéristique approximativement le diamètre de grain estimé par le modèle. La convection naturelle est alors amplifiée dans la zone poreuse, ce qui amplifie les ségrégations, comme on le voit Figure 3- 38.

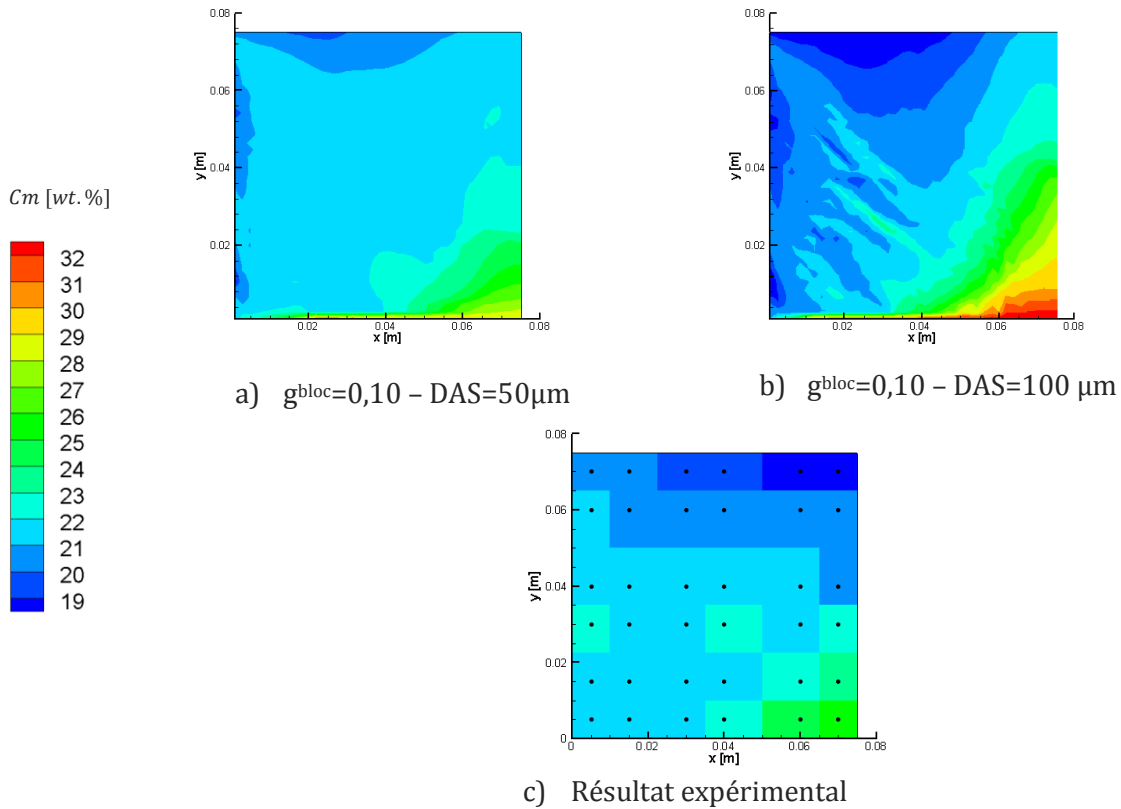


Figure 3- 38 : Cartes finales de composition en soluté obtenues (a-b) par le modèle pour le Cas 4 (grains dendritiques et modèle de pointe hémisphérique) pour une fraction de blocage des grains  $g^{bloc}=0,1$  pour deux valeurs du DAS et (c) par l'expérience (issu de (Kumar A. 2008)).

L'estimation de la carte finale de ségrégation s'éloigne alors des résultats obtenus expérimentalement. La densité moyenne de grains dans le lingot n'est presque pas modifiée, donc on ne donne pas ici l'évolution de la densité moyenne de grains avec le temps. Cependant, la solidification est légèrement retardée par cet écoulement dans la zone poreuse et la flottaison des grains a le temps d'impacter une plus grande zone en bas à droite du lingot. Le diamètre des grains atteint  $200\mu m$  sur une plus grande zone, comme on peut le voir Figure 3- 42.

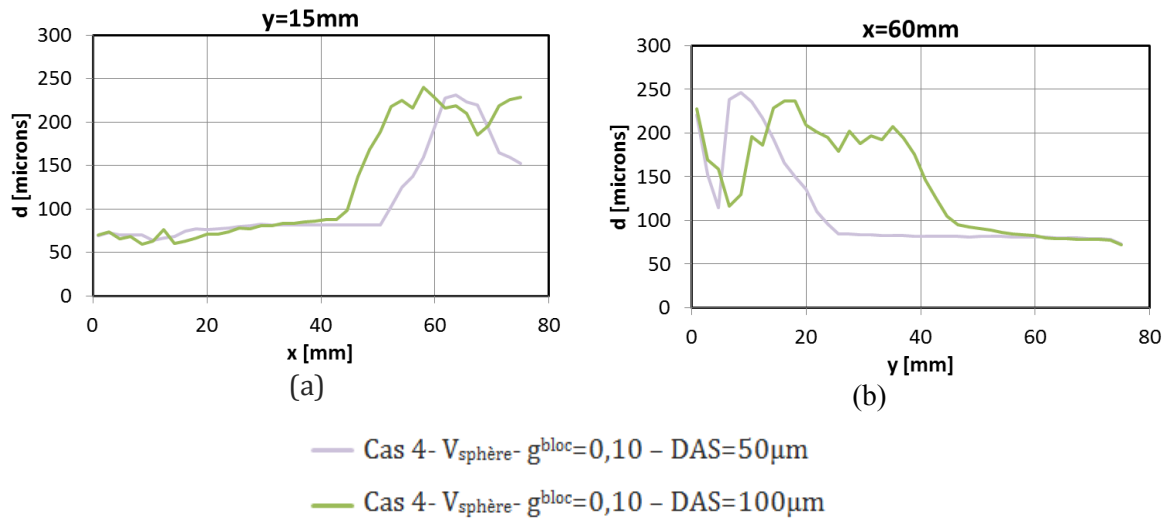


Figure 3- 39 : Profil de taille finale de grain obtenu par le modèle, pour le Cas 4 (pour le modèle dendritique avec pointe hémisphérique) pour  $g^{\text{bloc}}=0,10$  pour deux valeurs du DAS à (a)  $y=15\text{mm}$  et (b)  $x=60\text{mm}$ .

On constate donc que la longueur caractéristique de la zone poreuse a un impact important sur l'intensité des macroségrégations et sur la zone en bas à droite du lingot où la taille de grains augmente. Cependant, ces différents jeux de paramètres n'ont pas permis d'estimer quantitativement la taille des structures dans tout le lingot.

On constate donc que s'il est possible de prédire de façon quantitative la formation des macroségrégations, il est plus complexe de prédire la ségrégation en taille finale des structures. C'est pourquoi nous allons mener dans le paragraphe suivant une étude sur l'impact du procédé et de l'alliage sur la formation des hétérogénéités de tailles de structures, et plus particulièrement sur l'effet du mouvement des germes.

### 3.10. Impact du procédé et de l'alliage

Afin de vérifier que nos conclusions concernant l'effet des phénomènes de transport sur la formation des structures restent valables pour différents paramètres du procédé et compositions en soluté, différents cas sont maintenant étudiés. Au paragraphe 3.10.1, l'effet du taux d'extraction de chaleur est testé en considérant trois valeurs de la température extérieure  $T_{\text{ext}}$ . Puis l'effet de la composition en soluté de l'alliage est étudié au paragraphe 3.10.2 en comparant les résultats obtenus pour l'alliage Al-22wt.%Cu et Al-4wt.%Cu. Afin de changer le moins de paramètres possible entre les deux cas outre la composition en soluté, la même surchauffe initiale est imposée en augmentant la température initiale pour l'alliage Al-4wt.%Cu. Comme l'extraction de chaleur est proportionnelle à la différence de température entre le métal et le milieu extérieur, la température extérieure est également augmentée en conséquence. Enfin, l'impact de la surchauffe initiale est étudié au paragraphe 3.10.3. L'alliage Al-4wt.%Cu est solidifié avec deux températures initiales  $T_0$  et  $T_0'$ . La température extérieure est alors adaptée de façon à conserver le même taux d'extraction initiale de chaleur dans les deux cas. Dans tous les cas, la morphologie des grains est supposée globulaire.

### 3.10.1. Impact du taux d'extraction de chaleur

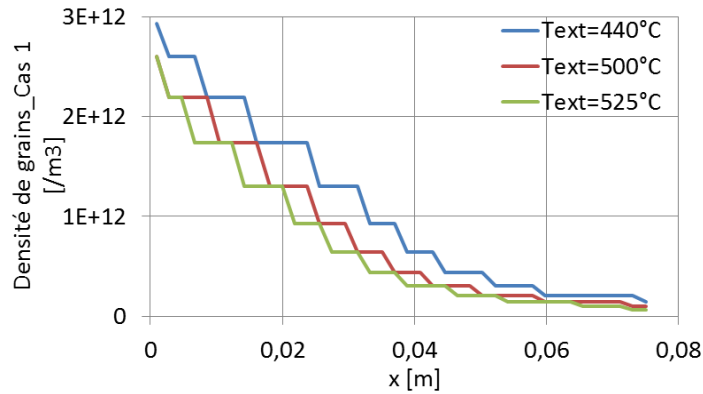


Figure 3- 40 : Profil horizontal de densité finale de grains à mi-hauteur ( $y=37\text{mm}$ ) pour le Cas 1, pour trois vitesses de refroidissement (correspondant à trois valeurs pour la température extérieure  $T_{\text{ext}}$ ).

L'effet du taux d'extraction de chaleur sur la taille des structures est illustré Figure 3-40. Le profil horizontal à mi-hauteur de la densité finale de grains  $y$  est donné pour trois vitesses de refroidissement dans le Cas 1 (pas de mouvement de germes ou de grains). Lorsque la vitesse de refroidissement augmente (c'est-à-dire lorsque la température extérieure diminue), la densité de grains augmente également du fait de la surfusion plus élevée. La tendance reste la même pour les quatre cas comme on peut le voir Figure 3-41. L'évolution de la densité moyenne de grains dans le lingot avec le temps  $y$  est donnée pour les quatre cas, pour la vitesse de refroidissement la plus grande (Figure 3-41-a) et la plus faible (Figure 3-41-b) :

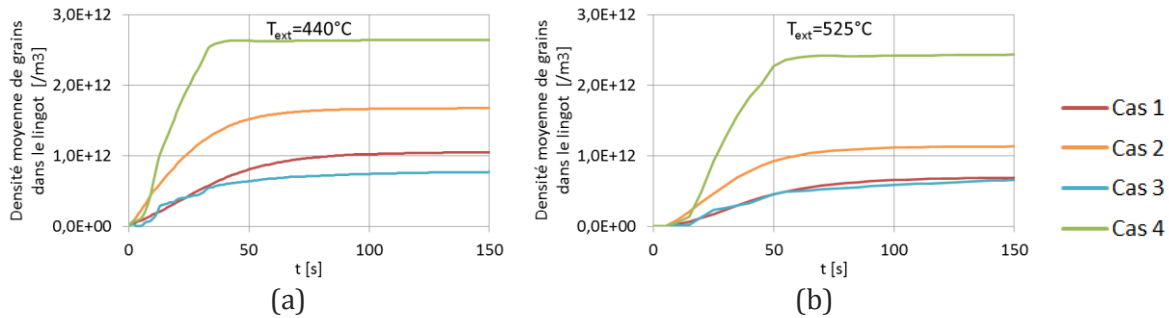


Figure 3- 41 : Evolution de la densité moyenne de grains dans le lingot pour les quatre cas pour deux valeurs de la température extérieure (a)  $T_{\text{ext}}=440^\circ\text{C}$  et (b)  $T_{\text{ext}}=525^\circ\text{C}$  (modèle de croissance globulaire).

L'effet du mouvement des germes pour différentes vitesses de refroidissement est étudié en traçant le rapport de la densité de grains avec et sans mouvement des germes, lorsque les grains sont fixes (Figure 3-42-a) et lorsqu'ils bougent (Figure 3-42-b). Ce rapport est donné sur toute la largeur du produit, à mi-hauteur. On remarque que l'effet du mouvement des germes reste similaire pour les trois vitesses de refroidissement, que les grains bougent ou non. Lorsque les grains sont fixes (Figure 3-42-a), le mouvement des germes induit une augmentation de la densité de grains près de la paroi refroidie et une diminution près de la paroi opposée. Lorsque les grains bougent (Figure 3-42-b), le

mouvement des germes induit une augmentation de la densité de grains sur toute la largeur du lingot. Ces observations restent vraies pour les trois vitesses de refroidissement.

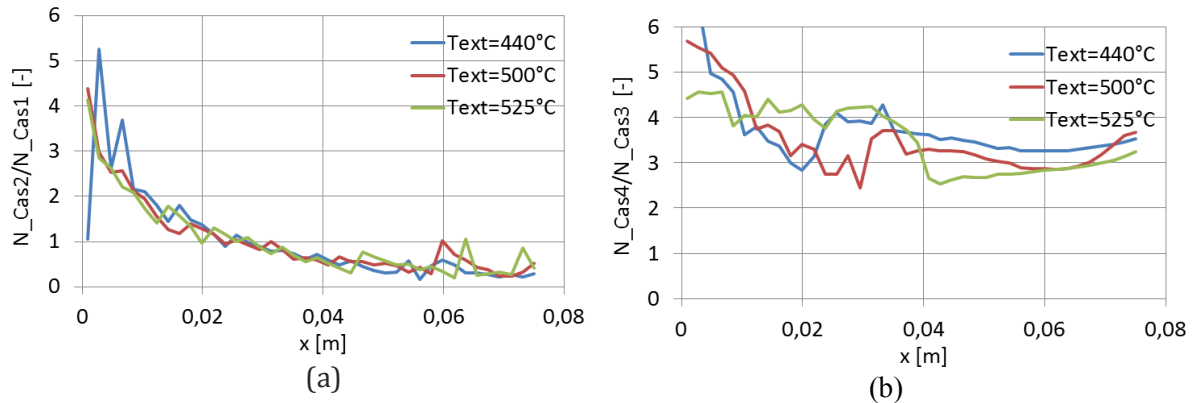


Figure 3- 42 : Comparaison du profil horizontal à mi-hauteur de densité finale de grains entre (a) le Cas 1 et le Cas 2 et (b) le Cas 3 et le Cas 4, pour trois valeurs de la température extérieure ( $T_{ext}=440^{\circ}\text{C}$ ,  $T_{ext}=500^{\circ}\text{C}$  et  $T_{ext}=525^{\circ}\text{C}$ )(modèle de croissance globulaire)

Cependant, si l'effet du mouvement des germes est similaire pour les trois vitesses de refroidissement, de légères différences peuvent être observées. Lorsque les grains sont fixes, le mouvement des germes n'a pas d'effet sur la densité de grains tout près de la paroi refroidie pour la vitesse de refroidissement maximale (Figure 3- 42-a,  $T_{ext}=440^{\circ}\text{C}$ ). Pour les deux vitesses de refroidissement plus faibles (Figure 3- 42-a,  $T_{ext}=500^{\circ}\text{C}$  et  $T_{ext}=525^{\circ}\text{C}$ ), le mouvement des germes induit pourtant une augmentation de la densité de grains par un facteur 4 dans cette même zone. Cette différence s'explique par la vitesse d'avancée du front de solidification relativement à la vitesse de convection du liquide (et donc des germes). La Figure 3- 43 montre le temps auquel les premiers germes sont activés le long de la paroi refroidie pour  $T_{ext}=440^{\circ}\text{C}$  pour le Cas 2. On constate que jusqu'à  $y=0,06\text{m}$ , le temps auquel les premiers germes sont activés le long de la paroi refroidie est presque uniforme, et mène à une vitesse d'avancée du front de solidification (verticale) d'environ  $0,17\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , qui est beaucoup plus grande que la vitesse de convection des germes (moins de  $0,05\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ). L'intervalle de temps pendant lequel a lieu la germination est donc trop court pour permettre aux germes d'alimenter la zone de germination. Pour les deux vitesses de refroidissement plus faibles, la vitesse d'avancée du front le long de la paroi refroidie est plus lente et les germes ont le temps d'être apportés par le liquide dans la zone de germination, même près de la paroi refroidie. La différence entre le Cas 1 et le Cas 2 est alors beaucoup plus grande.

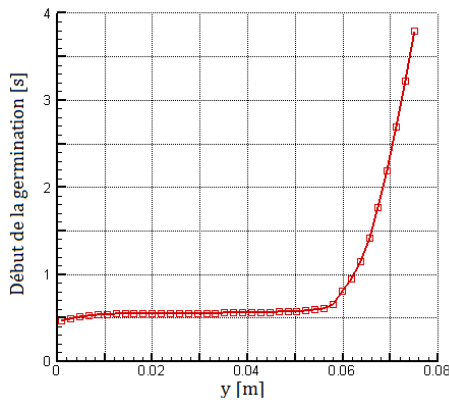


Figure 3- 43 : Profil vertical de l'instant de début de germination le long de la paroi refroidie, pour  $T_{ext}=440^{\circ}C$  pour le Cas 2.

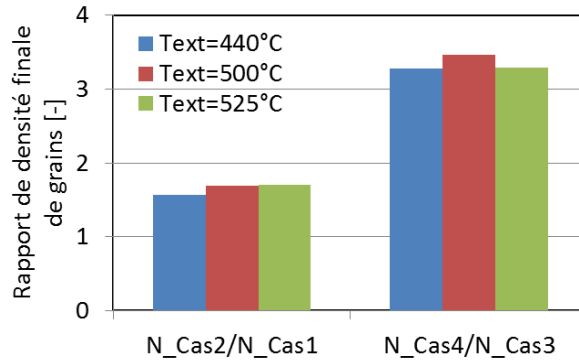


Figure 3- 44 : Rapport de densité finale de grain moyenne dans le lingot entre les cas avec et sans mouvement des germes pour trois valeurs de la température extérieure. A gauche : sans mouvement des grains (Cas 2/Cas 1). A droite : avec mouvement des grains (cas 4/Cas3).

Cependant, en dépit de ces différences, l'effet du mouvement des germes à l'échelle du lingot reste le même pour les trois vitesses de refroidissement, comme on peut le voir Figure 3- 44. Le mouvement des germes induit une augmentation de la densité finale moyenne de grains de plus de 50% lorsque les grains sont fixes et une augmentation par plus qu'un facteur trois lorsque le mouvement des grains est pris en compte.

### 3.10.2. Impact de la composition en soluté de l'alliage

Afin d'étudier l'effet du coefficient de restriction de croissance  $Q=mC_0(k-1)$  sur l'impact du mouvement des germes, une autre composition en cuivre est étudiée : Al-4wt.%Cu, et comparée à l'alliage de référence Al-22wt.%Cu. Afin de changer le moins de paramètres possible, le même diagramme de phases est utilisé, même si la linéarisation avait été adaptée pour les fortes compositions en cuivre. La même surchauffe initiale est conservée. La température initiale du métal est adaptée en conséquence ( $T_0'=785,8^{\circ}C$ ) (Figure 3- 45). La température extérieure est également modifiée afin de conserver la même extraction de chaleur initiale ( $T_{ext}=585,8^{\circ}C$ ). Ce nouveau système noté B (Al-4wt.%Cu,  $T_0'=785,8^{\circ}C$ ,  $T_{ext}=585,8^{\circ}C$ ) est comparé au système de référence A (Al-22wt.%Cu,  $T_0=700^{\circ}C$ ,  $T_{ext}=500^{\circ}C$ ).

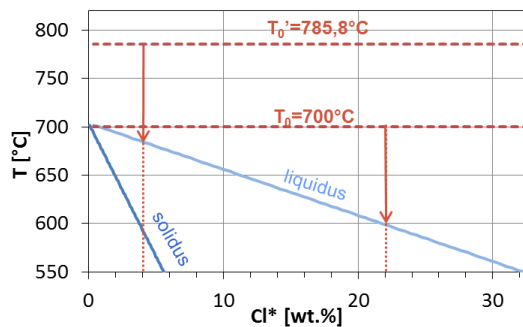


Figure 3- 45 : Diagramme de phases Al-Cu avec les différents systèmes étudiés: système A (22wt.%Cu et  $T_0=700^{\circ}C$ ), système B (4wt.%Cu et  $T_0'=785,8^{\circ}C$ ) et système C (4wt.%Cu et  $T_0=700^{\circ}C$ )

Ce changement de composition en soluté induit également une évolution différente de la masse volumique du liquide avec la fraction solide, et surtout il modifie l'écart entre les masses volumiques liquide et solide. L'alliage Al-22wt.%Cu mène à la flottaison des grains ( $\rho_s < \rho_l$ ) tandis que l'alliage Al-4wt.%Cu induit leur sédimentation ( $\rho_s > \rho_l$ ), comme on peut le voir Figure 3- 17. Dans ce paragraphe, seuls les systèmes A et B sont étudiés. Ainsi, seule la composition en soluté est modifiée et la surchauffe et le refroidissement initiaux restent identiques.

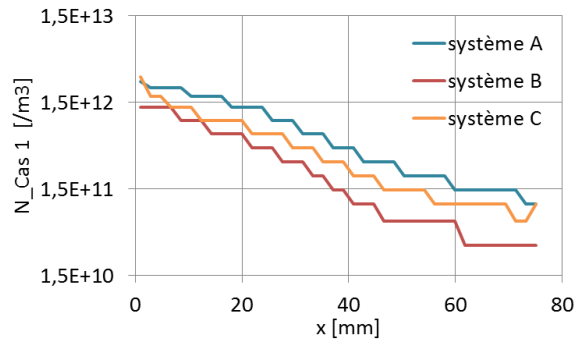


Figure 3- 46 : Comparaison du profil horizontal à mi-hauteur de densité finale de grains pour le Cas 1 pour trois systèmes : système A (22wt.%Cu et  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ), système B (4wt.%Cu et  $T_0'=785,8^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=585,8^\circ\text{C}$ ) et système C (4wt.%Cu et  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ).

La Figure 3- 46 donne le profil horizontal de densité finale de grains à mi-hauteur pour le Cas 1 (ni mouvement de germes, ni mouvement de grains) pour les deux systèmes A et B. La composition en soluté étant plus faible dans le système B, le coefficient de restriction de croissance est plus faible également. On a vu dans la première partie de ce chapitre l'effet du coefficient de restriction de croissance sur la densité finale de grains : diminuer sa valeur mène à une densité de grains plus faible dans tout le lingot. De plus, ce résultat reste vrai pour les trois autres cas (Cas 2 à 4), comme on peut le voir Figure 3- 47. Lorsque le coefficient de restriction de croissance diminue, la densité finale de grains diminue également, pour les quatre cas étudiés.

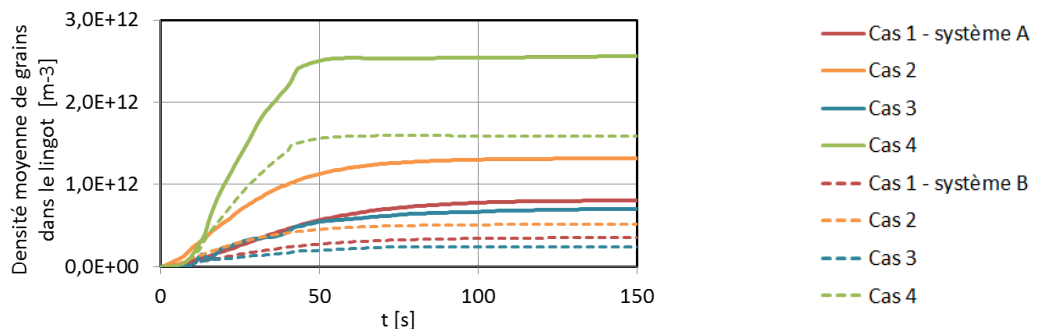


Figure 3- 47 : Evolution de la densité moyenne de grains dans le lingot pour les quatre cas pour deux systèmes : système A (22wt.%Cu et  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ) et système B (4wt.%Cu et  $T_0'=785,8^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=585,8^\circ\text{C}$ )(modèle de croissance globulaire).

La Figure 3- 48 montre l'effet du mouvement des germes sans mouvement des grains (Figure 3- 48-a) et avec (Figure 3- 48-b). On remarque que l'effet du mouvement des germes reste le

même pour les deux systèmes lorsque les grains sont fixes. La différence de cinétique de croissance induite par la composition en soluté de l'alliage ne modifie pas l'effet du mouvement des germes. Cependant, lorsque le mouvement des grains est pris en compte, l'effet du mouvement des germes est amplifié dans le système B, et est moins uniforme que dans le système A. En effet, dans le Cas 3, les germes sont fixes et les grains bougent. Plus précisément, dans le système A, les grains flottent. Ainsi, les grains quittent la zone de germination entraînés par le liquide en bas du lingot et se répartissent rapidement dans tout le lingot. Les grains quittant la zone de germination en bas du lingot sont donc rapidement compensés par ceux amenés par le haut du lingot. Ainsi, la densité de grains est homogénéisée avant le blocage des grains : le seul effet du mouvement des germes dans le système A est d'affiner la taille des structures et le rapport Cas 4/Cas 3 est relativement uniforme. Dans le système B au contraire, les grains sédimentent. Dans le Cas 3, les grains quittent toujours la zone de germination par le bas du lingot du fait de la boucle de convection du liquide dans le sens trigonométrique mais leur densité étant plus élevée que celle du liquide, ils tendent à rester au fond du lingot. L'alimentation en grains de la zone de germination par le haut du lingot est donc réduite, et la densité de grains près de la paroi refroidie diminue. Le rapport Cas 4/Cas 3 est donc augmenté.

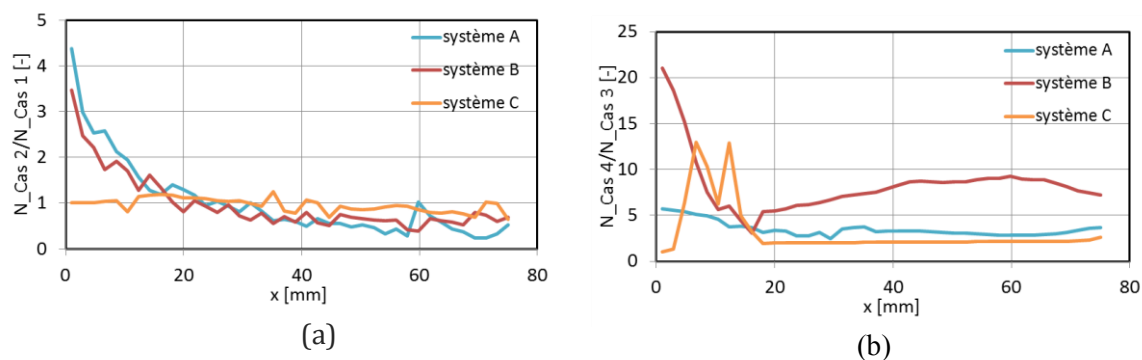


Figure 3- 48 : Comparaison du rapport de densité finale de grains le long du profil horizontal à mi-hauteur entre (a) Cas 2 et Cas 1 et (b) Cas 4 et Cas 3, pour trois systèmes : système A (22wt.%Cu et  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ), système B (4wt.%Cu et  $T_0'=785,8^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=585,8^\circ\text{C}$ ) et système C (4wt.%Cu et  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ) (modèle de croissance globulaire).

### 3.10.3. Impact de la surchauffe initiale

Afin d'étudier l'effet de la surchauffe initiale, deux valeurs de la température initiale du métal sont étudiées pour l'alliage Al-4wt.%Cu :  $T_0'=785,8^\circ\text{C}$  correspondant au système B, et  $T_0=700^\circ\text{C}$  correspondant au système C. La surchauffe initiale est donc réduite de  $101^\circ\text{C}$  à  $15^\circ\text{C}$  (Figure 3- 45). Afin de conserver la même extraction de chaleur initiale, la température extérieure est adaptée (elle passe de  $T_{\text{ext}}=585,8^\circ\text{C}$  dans le système B à  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$  dans le système C). Ainsi, le système B (Al-4wt.%Cu,  $T_0'=785,8^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=585,8^\circ\text{C}$ ) est comparé au système C (Al-4wt.%Cu,  $T_0=700^\circ\text{C}$ ,  $T_{\text{ext}}=500^\circ\text{C}$ ).

La Figure 3- 48 montre l'effet du mouvement des germes à travers le rapport Cas 2/ Cas 1 de densité de grains le long d'un profil horizontal à mi-hauteur, pour le système B et le système C. On peut ainsi constater que la surchauffe initiale a un effet important sur l'impact du mouvement des germes et sa contribution à la formation des structures. En réduisant la surchauffe initiale de  $101^\circ\text{C}$  à  $15^\circ\text{C}$  (respectivement système B et système C), l'impact du



mouvement des germes devient négligeable. Afin de comparer la germination et le mouvement des germes dans les deux cas, l'évolution dans le temps de la fraction solide, la densité de grains, la vitesse verticale intrinsèque du liquide et la surfusion est donnée Figure 3- 49 pour un point situé le long de la paroi refroidie à mi-hauteur du lingot.

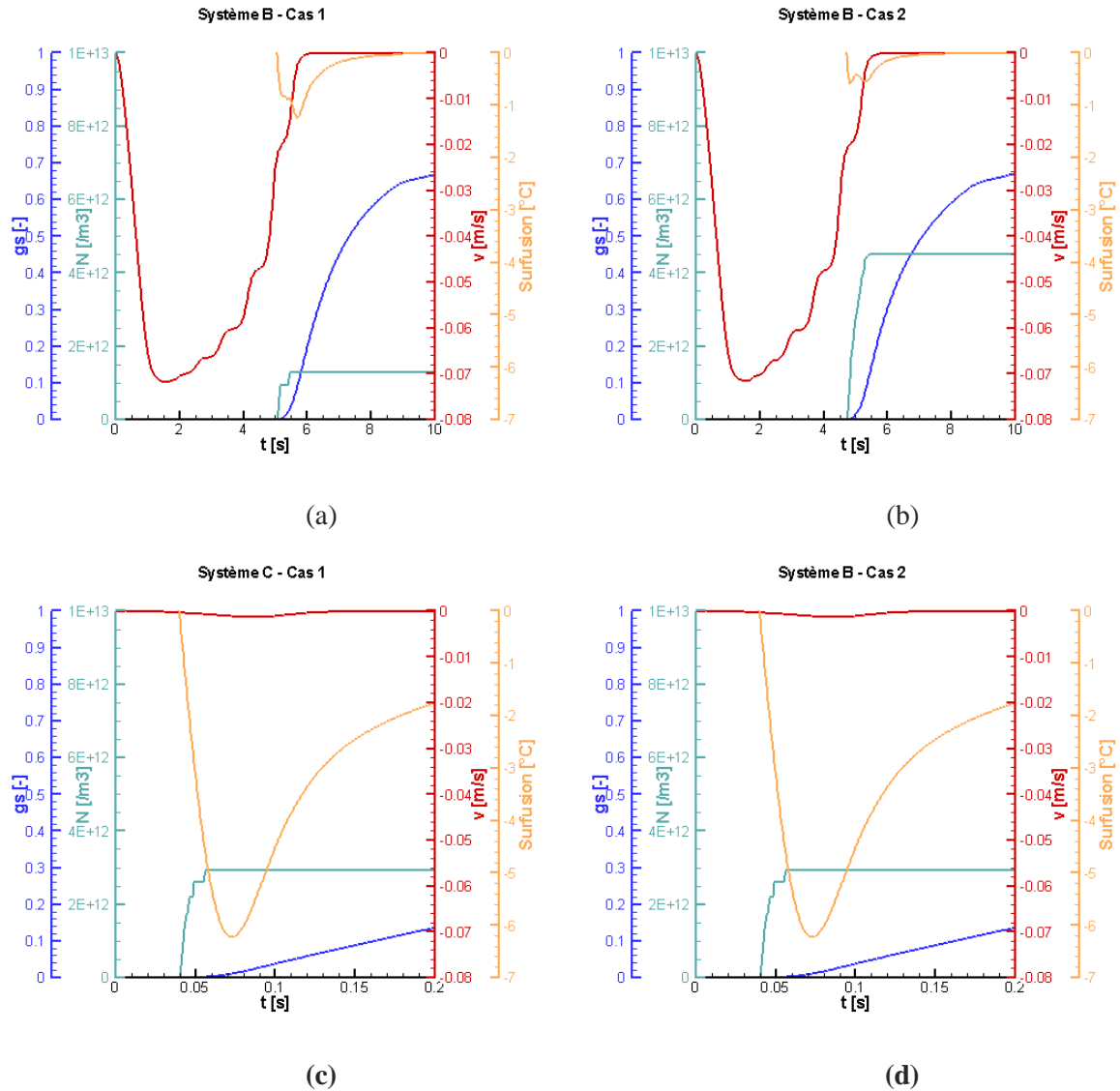


Figure 3- 49 : Evolution avec le temps de la fraction solide  $g_s [-]$ , la densité de grains  $N [1/m^3]$ , la vitesse verticale intrinsèque de la phase liquide  $v [m/s]$  et la surfusion  $[^{\circ}C]$  à mi-hauteur de la paroi refroidie  $((x,y)=(0,37)mm)$  pour le Système B ((a) et (b)) et pour le système C ((c) et (d)).

Dans le système B (Figure 3- 49-a et Figure 3- 49-b), le mouvement des germes entraîne une augmentation importante de la densité de grains du fait de l'alimentation en germes de la zone de germination. De plus, l'augmentation de la densité de grains induit une surfusion plus faible : la compétition entre germination et croissance est donc totalement modifiée. Dans le système C (Figure 3- 49-c et Figure 3- 49-d), la vitesse intrinsèque du liquide est beaucoup plus faible. La vitesse atteignait en effet  $7,17 \cdot 10^{-2} m \cdot s^{-1}$  dans le système B tandis qu'elle ne dépasse pas  $1,38 \cdot 10^{-3} m \cdot s^{-1}$  dans le système C. l'alimentation de la zone de germination en germes devient alors négligeable et la densité de grains n'est pas modifiée par le mouvement

des germes. Ceci montre donc que l'impact du mouvement des germes est fortement lié à l'intensité de la convection du liquide.

Lorsque le mouvement des grains est pris en compte, l'effet du mouvement des germes devient plus complexe. On peut distinguer trois zones dans le système C (Figure 3- 48-b). Près de la paroi refroidie, les grains croissent et sont bloqués avant que les germes n'aient le temps d'alimenter la zone de germination, car la vitesse de convection du liquide est très faible comparativement au système B. L'effet du mouvement des germes est alors négligeable et le rapport Cas 4/ cas 3 est très proche de 1. Dans le système B, la vitesse du liquide étant plus élevée du fait de la plus grande surchauffe initiale, on ne retrouve pas ce phénomène. Plus loin de la paroi refroidie, on retrouve l'effet du mouvement des grains aussi bien dans le système B que dans le système C: dans le Cas 3 comme dans le Cas 4, les grains quittent la zone de germination par le bas du lingot et ne l'alimentent pas par le haut du lingot comme ils sédimentent. Mais lorsque les germes sont fixes (Cas 3), la densité de grains dans cette zone reste faible tandis que lorsque le mouvement des germes est pris en compte, la zone de germination a le temps d'être alimentée en germes avant la fin de la germination. La densité de grains est alors beaucoup plus importante et le rapport Cas 4/ Cas 3 devient grand. Encore plus loin de la paroi refroidie, le transport des grains tend à homogénéiser la densité de grains dans tout le lingot. En conclusion, la diminution de la surchauffe initiale tend en moyenne à réduire l'effet du mouvement des germes, comme le mouvement de convection de la phase liquide est ralenti.

### 3.11. Résumé de l'étude

Cette deuxième partie nous a donc permis d'étudier l'effet aussi bien de la convection du liquide que du transport des grains et des germes sur la formation des structures et des ségrégations.

Nous avons pu constater que si l'effet du mouvement des germes sur la formation des macroségrégations est négligeable lorsque les grains sont supposés fixes, il tend à atténuer les ségrégations lorsque le mouvement des grains est pris en compte. Le modèle de croissance, en impactant le transport et le blocage des grains, a également un effet important. Dans cette étude, le modèle de croissance dendritique avec pointe paraboloidale mène à des résultats très proches de ceux obtenus par le modèle de croissance globulaire, mais il n'en est pas de même pour le modèle dendritique avec pointe hémisphérique. Ce dernier permet même d'estimer qualitativement la ségrégation finale mesurée expérimentalement.

La prédiction de la ségrégation en taille des structures s'avère plus complexe. Nous avons retrouvé l'effet bien connu du mouvement des grains sur la microstructure, à savoir qu'il tend à homogénéiser la taille des structures. L'effet du mouvement des germes n'avait par contre jamais été pris en compte jusqu'ici, et notre étude montre qu'il est loin d'être négligeable pour la prédiction des ségrégations en taille de structures. Déjà en négligeant le mouvement des grains, nous avons pu constater que le mouvement des germes, en modifiant le couplage germination/croissance, amplifie les hétérogénéités de tailles de structures. De plus, il induit en moyenne un affinage de la structure. Lorsque de plus le mouvement des grains est pris en compte, l'effet affinant du mouvement des germes est encore amplifié. Cet effet du transport

des germes a été retrouvé pour trois vitesses de refroidissement et deux compositions nominales en soluté. Ainsi, même si cette conclusion ne peut être généralisée à tous les procédés et alliages, elle est valable pour différents paramètres de solidification et alliages. Un test sur la surchauffe initiale a également permis de relier l'effet du mouvement des germes à l'écoulement dans le lingot. Nous avons également constaté que le modèle de croissance, en impactant le mouvement et le blocage des grains, a un effet important sur la formation des hétérogénéités de structures.

Il s'avère être plus complexe de prédire les ségrégations en tailles de grains que les macroségrégations. La modélisation du blocage des grains, bien que primordiale, reste modélisée de façon très simplifiée ici. De plus, la distribution en taille des germes est approchée par une loi exponentielle qui peut être très différente de celle réellement utilisée dans l'expérience. Il est également possible que les effets tridimensionnels, négligés ici, impactent la formation des hétérogénéités de structures.

Quoi qu'il en soit, l'objectif de cette étude n'était pas de prédire quantitativement les ségrégations en soluté et en tailles de structures dans le lingot mais d'analyser la contribution des différents phénomènes de transport à la formation des macroségrégations et des structures. Si la convection thermo-solutale et le mouvement des grains avaient déjà été étudiés auparavant, le mouvement des germes n'avait jamais été pris en compte. Or nous avons montré que son impact sur la formation des structures est primordial.

## 4. Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre la compétition entre germination et croissance, tout d'abord à l'échelle microscopique puis à l'échelle des systèmes industriels, où les phénomènes convectifs ne peuvent plus être négligés. Dans le cas d'un système microscopique, nous avons vu que notre modèle de germination et de croissance permet d'estimer correctement la densité finale de grains. A l'échelle macroscopique, les phénomènes de transport du liquide, des grains et des germes impactent également ce couplage. Nous avons donc étudié la solidification d'un lingot en ajoutant successivement les phénomènes afin d'analyser l'effet de chacun d'entre eux sur la formation des structures et des ségrégations. Tous ces phénomènes étant corrélés, on comprend pourquoi il est difficile d'estimer les hétérogénéités de tailles de structures dans un système macroscopique. Négliger l'un d'entre eux mène à une estimation des hétérogénéités significativement différente.

On peut donc se demander si l'on prend en compte correctement tous ces phénomènes ainsi que leurs interactions. On a vu que la prise en compte de la morphologie des grains dépend énormément du modèle de pointe choisi. Celui-ci impacte en effet le profil de soluté devant le grain mais également le mouvement des grains à l'échelle macroscopique. Or nous avons vu au chapitre II que les deux modèles de pointe étudiés ici sont plus ou moins adaptés selon les conditions de solidification. Ces conditions n'étant pas uniformes dans tout le lingot, il est possible que le modèle le plus adapté varie selon la position dans le lingot et même l'avancée de la solidification. Un autre point nécessitant un approfondissement

concerne l'estimation de la surfusion, critique pour l'estimation de la germination. Nous avons pu constater que la zone de germination est relativement étroite. Il est donc possible que la séparation des échelles, nécessaire dans la méthode de prise de moyenne, ne soit pas satisfaite lorsque l'on décrit les variations spatiales de la surfusion et de la densité de germes et de grains.

Plusieurs questions théoriques restent donc ouvertes, et des résultats expérimentaux seront nécessaires afin d'y répondre. Un cas dans lequel les conditions de refroidissement sont maîtrisées et connues, et pour lequel des mesures précises de composition en soluté et de taille finale de grains sont effectuées, permettrait de comparer ces résultats aux prédictions du modèle. Une expérience permettant de mettre en évidence le mouvement des germes validerait ou non notre modèle.

# Chapitre IV : Application à la coulée semi-continue : impact des phénomènes de transport sur la formation des hétérogénéités à l'échelle macroscopique

## 1. Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié l'effet des phénomènes de transport sur la formation des ségrégations et des structures dans le cas de la solidification en lingot. L'objectif final de la thèse reste toutefois l'étude de la solidification en coulée semi-continue, procédé plus couramment utilisé pour la solidification d'alliages d'aluminium. En lingot, le système reste fixe et évolue au cours du temps tandis qu'en coulée continue au contraire, on se place dans le repère attaché au moule et on retrouve souvent un régime permanent établi.

L'étude préalable en lingot a permis de mettre de côté les problèmes liés à l'approche utilisée pour la coulée semi-continue. L'advection du lingot en coulée semi-continue amène de nouvelles difficultés numériques. De plus, l'hypothèse d'un régime permanent faite dans le cas de la coulée semi-continue n'est pas sans soulever des questions. Des ségrégations en forme de V observées dans les coulées industrielles par exemple pourraient laisser penser à un régime oscillant.

Malgré ces difficultés, nous allons donc étudier ce procédé afin d'analyser les phénomènes à l'origine des hétérogénéités de tailles de structures et de ségrégations en coulée semi-continue d'aluminium (noté CCV). Une estimation quantitative des macroségrégations a déjà été possible dans le cas d'un lingot 7449 (Bedel M. 2010). Nous chercherons donc pour finir à comparer les résultats de notre modèle aux données expérimentales disponibles en termes de composition en soluté et de taille de grains pour un autre cas : EMPACT, pour lequel l'alliage et les dimensions de la plaque sont différents.

## 2. Impact des phénomènes de transport sur la formation des hétérogénéités de composition et de tailles de structure en CCV

### 2.1. Introduction

Dans un premier temps, nous cherchons à étudier l'impact des différents phénomènes de transport sur la formation des macroségrégations et des hétérogénéités de tailles de structures en appliquant la même méthode qu'au chapitre précédent, cette fois-ci au procédé de la CCV. Nous allons donc définir différents cas d'étude permettant de décomposer l'effet de chaque phénomène sur la formation des hétérogénéités.

## 2.2. Définition du cas étudié

On étudie la solidification d'un alliage 7449, composé principalement de zinc, affiné par 0,4 kg/t de TiC et coulé à  $v_c=30$  mm/min dans un moule de 350 mm d'épaisseur sur 2600 mm de largeur. Cette seconde dimension étant grande devant la première, on suppose que la solidification est en première approximation bidimensionnelle. De plus, l'hypothèse de symétrie axiale permet de ne modéliser qu'une demi-épaisseur. La géométrie du système étudié est donnée Figure 4- 1:

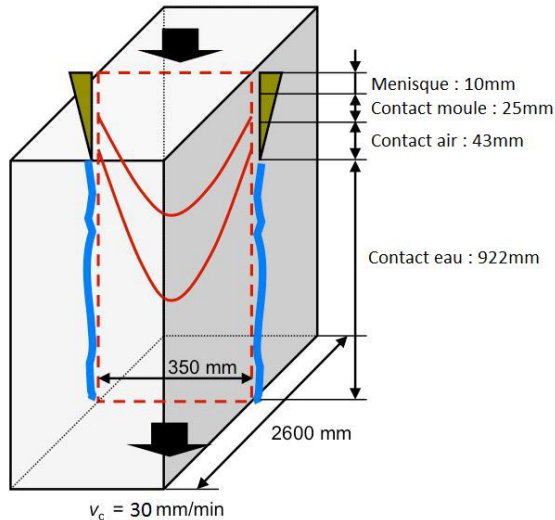


Figure 4- 1 : Schéma du système étudié

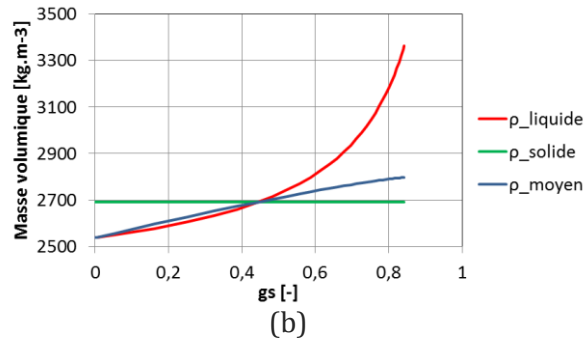


Figure 4- 2 : Evolution de la masse volumique du solide, du liquide et de la moyenne des deux phases avec la fraction solide (le chemin de solidification est calculé par le modèle de Scheil jusqu'à la température eutectique).

Ses dimensions sont les suivantes : 175 mm de largeur sur 1000 mm de hauteur. Le refroidissement dans la zone du ménisque (sur 10mm), le refroidissement par contact avec le moule (sur 25 mm) et le refroidissement par contact avec l'air (sur 43 mm) sont pris en compte par une condition de type Fourier  $\varphi = h(T - T_{ext})$  avec h respectivement égal à 0 et 2000 et 30 W/m<sup>2</sup>/K. Le refroidissement par l'eau est modélisé par la corrélation de Weckman et Niessen, fonction du débit et de la température de l'eau de refroidissement ainsi que de la température de surface du métal (Weckman D.C. 1982). L'échange de chaleur est supposé nul en bas du système et la vitesse y est égale à  $v_c$ . L'entrée du métal se fait sur toute la largeur du système à une température imposée  $T_0=684^\circ\text{C}$  et à une vitesse uniforme (calculée de façon à obtenir en bas du système la vitesse de sortie du métal solide égale à la vitesse de coulée  $v_c$ ). L'alliage 7449 est modélisé par un alliage pseudo-binaire équivalent comme décrit dans (K. A. Založnik M. 2011). Les valeurs des propriétés thermodynamiques utilisées dans cette étude sont données en annexe.

L'évolution de la masse volumique de la phase solide, de la phase liquide et de la moyenne des deux phases avec la fraction solide est donnée Figure 4- 2 en utilisant le modèle

de Scheil pour estimer l'évolution de la fraction solide. Les courbes sont coupées lorsque la température eutectique est atteinte. Lorsque le mouvement des grains est pris en compte, la fraction de grain pour le blocage des grains est fixée à 0,3. Le retrait à la solidification est considéré constant et sa valeur, est déterminée au liquidus. Les germes sont initialement distribués de façon uniforme dans le produit et rentrent avec le liquide par le haut sur toute la largeur du système à leur densité nominale. La taille des grains est obtenue à partir de la densité de grains par la relation (3.8) comme au paragraphe précédent. La distribution en taille des germes est tirée de (Tronche A. 2000) pour 0,4 kg/t de TiC selon une loi exponentielle. Elle est discrétisée pour les besoins du modèle en 16 classes d'intervalle de surfusion croissant, comme illustré Figure 4- 3 :

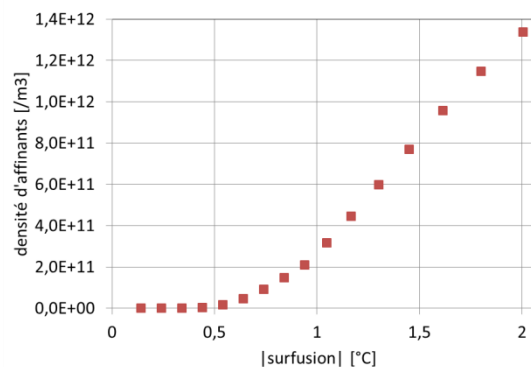


Figure 4- 3 : Classes de germes utilisées dans l'étude, correspondant à 0.4kg/t d'affinants de type TiC (caractéristiques de la loi de germination tirées de (Tronche A. 2000)).

Le maillage est constitué de 87x140 mailles non régulières. Le maillage est affiné dans la partie liquide et pâteuse du métal, et dans cette zone les mailles sont carrées, de côté 2mm. Le pas de temps est fixé à  $dt=2.10^{-3}s$  dans tous les calculs.

### 2.3. Définition des cas traités

Afin d'étudier l'effet du transport du liquide, des grains et des germes sur la formation des structures et des ségrégations à l'échelle macroscopique en coulée semi-continue, nous définissons des cas de complexité croissante comme au chapitre précédent en solidification en lingot. Les phénomènes physiques pris en compte dans chaque cas sont donnés Tableau 4-1. Dans le Cas 1, aucun phénomène de transport autre que la diffusion thermique n'est pris en compte : le métal est simplement advecté à la vitesse de coulée. Ce premier cas sert de référence. Puis dans le Cas 2, la convection thermo-solutale et le retrait sont pris en compte, sans ou avec mouvement des germes avec le liquide (respectivement Cas 2-a et Cas 2-b). L'écoulement et le refroidissement sont donc modifiés. Le mouvement des grains est ensuite ajouté dans le Cas 3, toujours sans ou avec mouvement des germes (Cas 3-a et Cas 3-b). Dans les Cas 1 à 3, les grains sont supposés globulaires. Lorsque tous les phénomènes sont pris en compte (convection thermo-solutale, retrait, mouvement des grains et des germes), l'impact de la morphologie des grains est également étudié pour les deux modèles de pointe : un modèle de pointe hémisphérique (Cas 4-a) et un modèle de pointe paraboloidale (Cas 4-b).

Tableau 4- 1 : Définition des cas

	<b>Mouvement du liquide</b>	<b>Mouvement des germes</b>	<b>Mouvement des grains</b>	<b>Morphologie dendritique des grains</b>
Cas 1	non	non	non	non
Cas 2 -a	<b>oui</b>	non	non	non
Cas 2 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	non	non
Cas 3 - a	<b>oui</b>	non	<b>oui</b>	non
Cas 3 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui</b>	non
Cas 4 - a	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>Oui-<math>V_{\text{pointe}}</math> hémisphérique</b>
Cas 4 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>Oui-<math>V_{\text{pointe}}</math> paraboloïdale</b>

#### 2.4. Compétition germination/croissance sans transport (Cas 1)

Dans le premier cas étudié, le métal est simplement advecté à la vitesse de coulée  $v_c$ . Le métal liquide entre avec les germes par le haut du système sur toute la largeur à la vitesse  $v_c$ . Au cours de sa descente, il est refroidi et commence à se solidifier lorsque la surfusion devient suffisante pour activer au moins la première classe de germes. On peut voir Figure 4-4-a que la germination a lieu sur toute l'épaisseur du produit. Puis la solidification se poursuit et le métal entièrement solide quitte le système par le bas.

Négligeant tous les mouvements du liquide et du solide outre leur advection à la vitesse de coulée  $v_c$ , aucune ségrégation ne se forme à l'échelle du produit. La taille de grains n'est par contre pas uniforme dans le produit. La chaleur étant extraite par les côtés, la vitesse de refroidissement est plus élevée près des parois du produit (correspondant au côté droit de notre système d'étude) qu'au centre du produit (correspondant au côté gauche de notre système d'étude). On représente cette vitesse de refroidissement au niveau du liquidus en fonction de la distance au centre du produit Figure 4- 5-a. Les grains et les germes étant fixes, le système peut être localement assimilé à un système fermé et la densité finale de grains à une certaine abscisse ne dépend que de la surfusion maximale atteinte dans la zone de germination à cette même abscisse. La carte de surfusion est représentée Figure 4- 4-a. La densité de grains est donc plus élevée près des parois, d'où un profil de taille finale de grains comme donné Figure 4- 5-b.



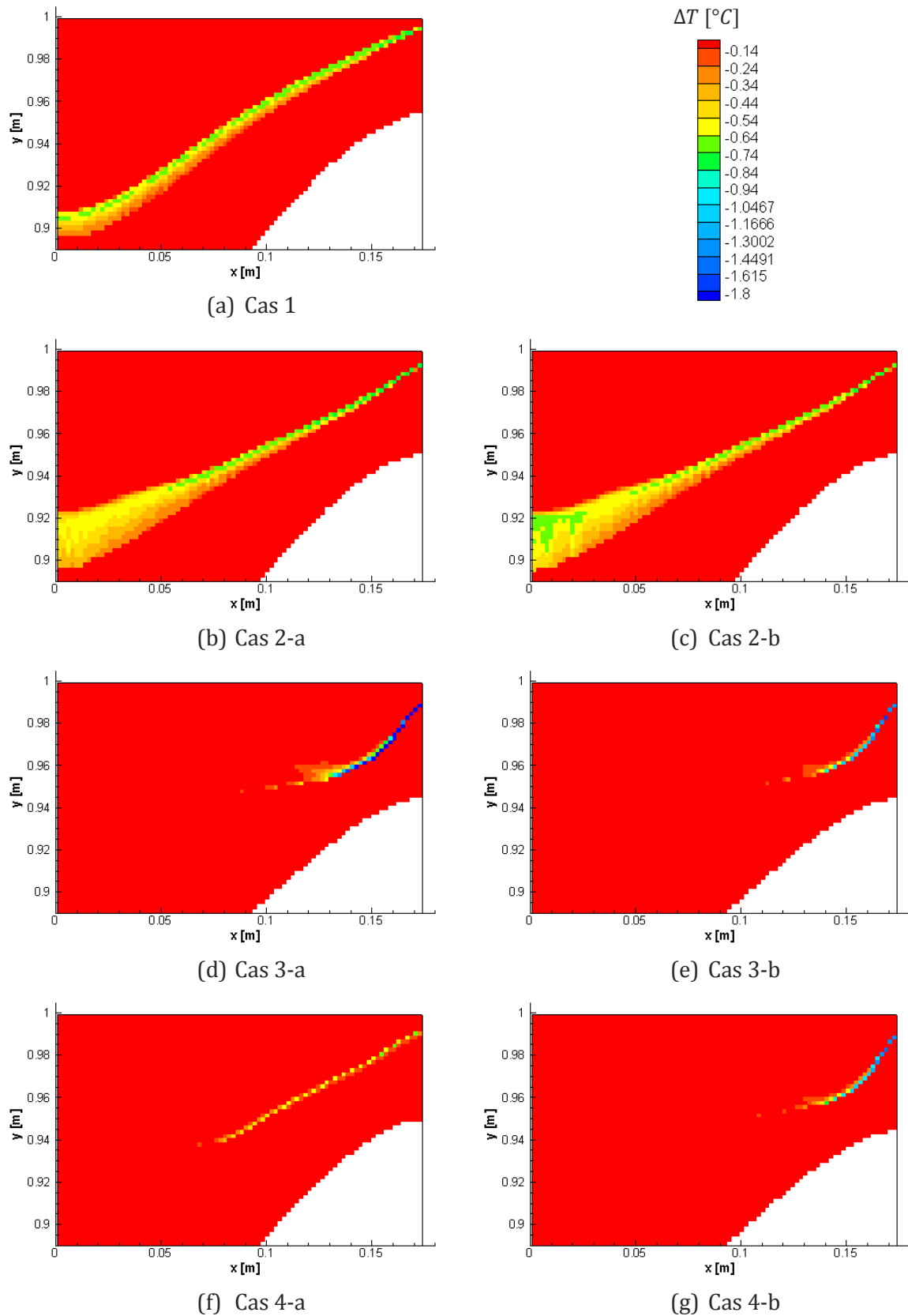


Figure 4- 4 : Carte de surfusion pour les 7 cas étudiés à un instant donné. La zone en blanc correspond à la zone totalement solidifiée dans laquelle la surfusion n'a pas de sens. Les différentes couleurs correspondent aux surfusions d'activation des différentes classes de germes, donc la zone colorée autrement qu'en rouge correspond à la zone où les germes peuvent être activés.

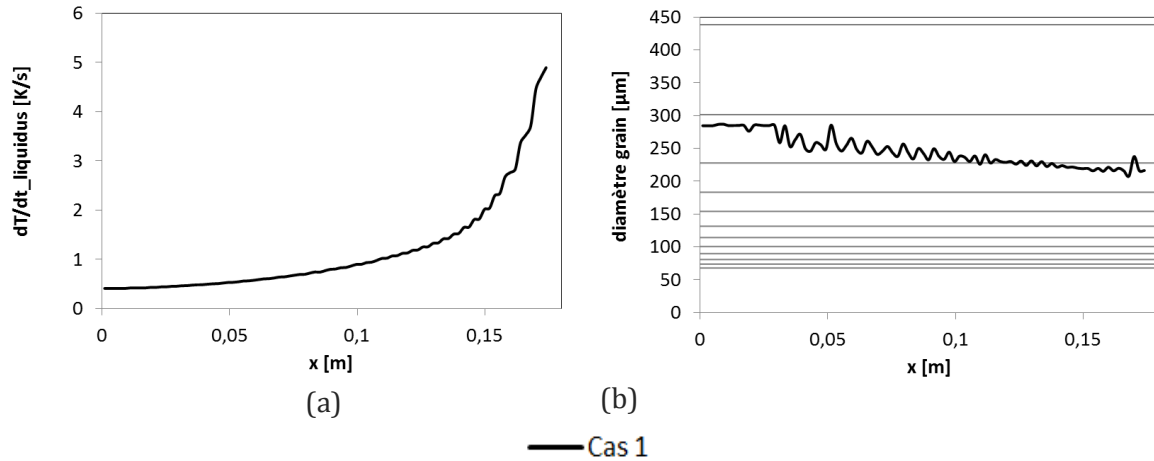


Figure 4- 5 : (a) Profil de vitesse de refroidissement au liquidus et (b) profil de diamètre final de grain selon  $x$ , la distance au centre, dans le Cas 1. Les lignes horizontales dans (b) correspondent aux valeurs de taille finale de grains correspondant à un nombre exact de classes de germes activées (6 classes :  $d=301,4\mu\text{m}$  ; 7 classes :  $227,8\mu\text{m}$  ; 8 classes :  $183,4\mu\text{m}$  ;...).

On peut néanmoins constater que la taille de grains obtenue ne correspond pas à un nombre exact de classes de germes. En supposant que le régime est permanent, on devrait en effet obtenir un profil final de taille de grains en paliers, correspondant à chaque abscisse à un nombre exact de classes de germes. Or on peut voir Figure 4- 5-b que le profil de taille de grain finale correspond à un nombre de classes activées oscillant entre 6 et 8. Ce résultat met en évidence un résultat très important : le régime n'est pas permanent. La surfusion à une abscisse donnée oscille entre la surfusion d'activation de deux classes successives pour donner une taille finale moyenne comprise entre la taille finale de ces deux classes. Malgré une discrétisation relativement grossière des classes aux fortes tailles de grains, on parvient ainsi à un profil final de taille de grain relativement continu.

## 2.5. Impact de la convection du liquide (Cas 2-a)

Dans le Cas 2-a, on ajoute le mouvement du liquide dû à la convection thermo-solutale et au retrait. Le mouvement des grains et des germes est toujours négligé donc ils sont simplement advectés. Le liquide, refroidi et enrichi par le rejet de soluté dû à la solidification près des parois, devient plus dense et descend le long des isolignes de fraction solide vers le centre du produit. Un mouvement de convection dans le sens horaire apparaît donc dans notre système, comme on peut le voir Figure 4- 6-a :

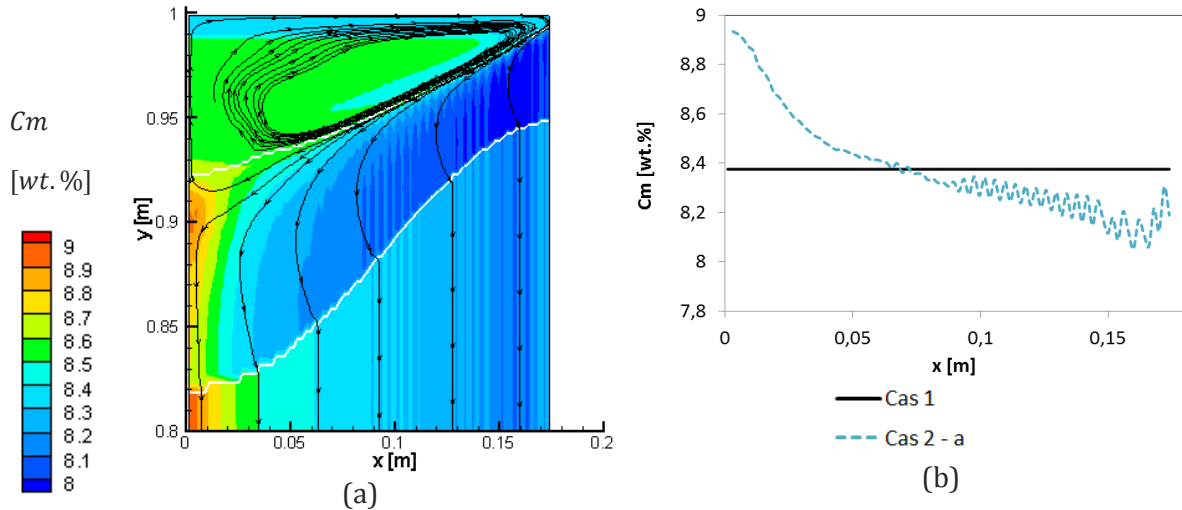


Figure 4- 6 : (a) Carte de composition moyenne en soluté, fractions solide correspondant au solidus et au liquidus en blanc et lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide en noir. (b) Profil de composition moyenne en soluté, dans le Cas 1 et le Cas 2-a, donnant l'effet de la convection thermo-solutale et du retrait.

Ce phénomène de convection modifie le refroidissement au cœur du produit, tandis que près des parois, le refroidissement est toujours principalement contrôlé par l'extraction de chaleur. La vitesse de refroidissement au niveau du liquidus est donc modifiée comme montré Figure 4- 7-a :

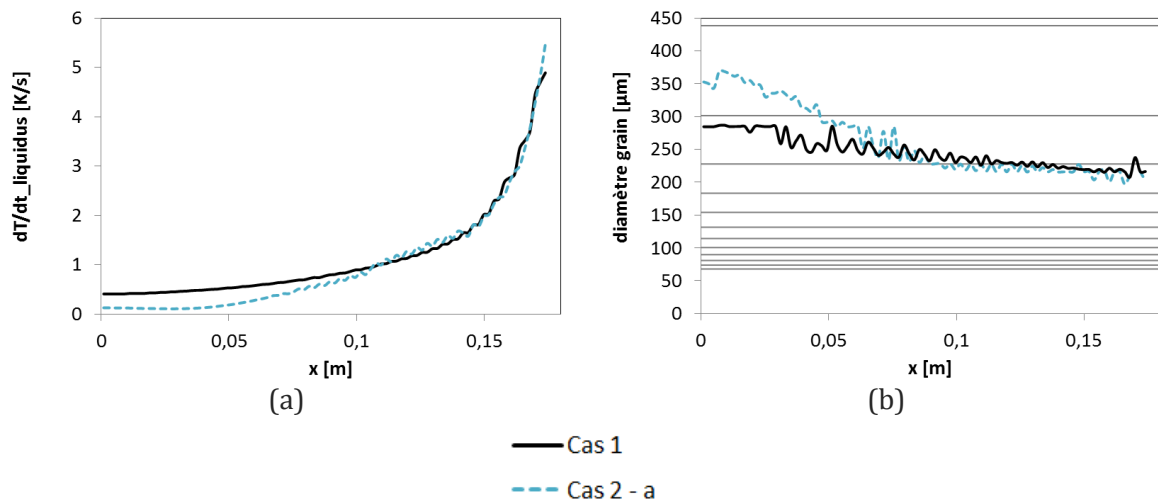


Figure 4- 7 : (a) Profil de vitesse de refroidissement au liquidus et (b) profil de diamètre final de grain, dans le Cas 1 et le Cas 2-a, donnant l'effet de la convection thermo-solutale et du retrait.

Ce mélange modifie également la composition en soluté dans le liquide. En effet, le liquide plus riche en soluté se déplace vers le centre du produit. Ainsi, au niveau du liquidus, si elle est toujours égale à la composition nominale près de la paroi, elle est plus élevée au centre. La température de liquidus est alors abaissée de 1,6°C dans cette zone. Donc non seulement la vitesse de refroidissement est réduite au centre du produit mais la température de liquidus y est également abaissée. Ces deux phénomènes s'ajoutent pour abaisser la surfusion (Figure 4- 4-a et Figure 4- 4-b) dans cette zone et donc pour augmenter la taille finale de grains (Figure 4- 7-b).

La prise en compte du mouvement du liquide induit également l'apparition de macroségrégations. Le liquide plus froid et plus riche en soluté étant plus dense, il descend vers le centre du produit. Le retrait induit de plus un mouvement du liquide aux fortes fractions solides, approximativement dirigé selon le gradient de fraction solide. Ces phénomènes de transport de la phase liquide induisent l'apparition d'une ségrégation positive au centre et d'une négative près des parois. Le profil final de macroségrégation est donné Figure 4- 6-b.

## 2.6. Impact du transport des germes (Cas 2-b)

Lorsque le mouvement des germes est pris en compte, la densité de germes n'est plus homogène dans tout le bain liquide. Ceux-ci sont entraînés par le liquide dès leur entrée dans le système vers la paroi. Si la surfusion est suffisante dans cette zone pour les activer, le liquide quittant la zone est appauvri en germes. On peut le constater pour la deuxième classe de germes Figure 4- 8-a. Les germes de cette classe sont activés près de la paroi et n'atteignent pas le centre du produit.

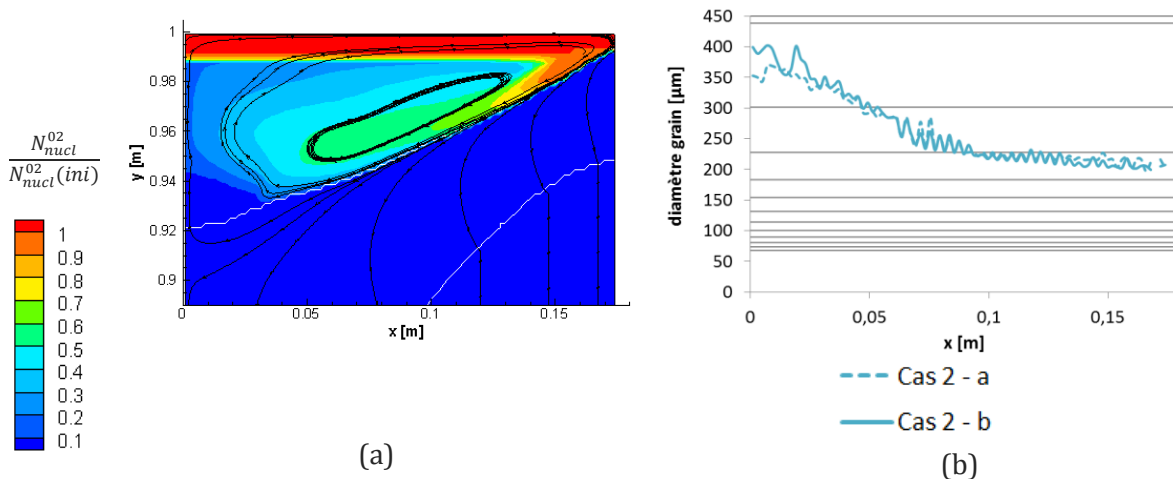


Figure 4- 8 : (a) Carte de densité relative de la 2<sup>ème</sup> classe de germes dans le Cas 2-b et (b) profil de diamètre de grain, dans le Cas 2-a et le Cas 2-b donnant l'effet du mouvement des germes.

Cette modification de la distribution locale en taille des germes impacte le couplage germination/croissance. La distribution en taille des germes est modifiée au centre du produit car les germes de grande taille n'atteignent pas cette zone. La surfusion atteinte dans la zone de germination est donc modifiée (Figure 4- 4-b et Figure 4- 4-c) et la taille finale de grains l'est également : elle est légèrement plus grande au centre lorsque le mouvement des germes est pris en compte.

La modification de la taille de grain induite par le mouvement des germes n'influence pas suffisamment la cinétique de solidification pour induire une modification de la macroségrégation. La prise en compte du mouvement des germes avec le liquide ne modifie pas l'écoulement dans la zone liquide et dans le marais. La ségrégation est donc la même que dans le Cas 2-a donnée Figure 4- 6-b. De plus, le refroidissement est inchangé donc la vitesse de refroidissement au niveau du liquidus correspond toujours à celle donnée Figure 4- 7-a.

Dans le Cas 2, où seul le mouvement de la phase liquide est considéré, la prise en compte du mouvement des germes n'a donc aucun effet sur les macroségrégations mais induit une légère augmentation des tailles de structures au centre du produit.

### 2.7. Impact du transport des grains (Cas 3-a)

Dans le Cas 3, on ajoute la prise en compte du mouvement des grains, ce qui modifie de façon importante l'écoulement et le refroidissement. On Figure 4- 9 la carte de vitesse intrinsèque du liquide dans le Cas 2-a et le Cas 3-a, ainsi que la position du liquidus (isoligne  $g_s=0$ ), de la fraction solide de blocage des grains ( $g_s=0$  dans le Cas 2-a et  $g_s=0,3$  dans le Cas 3-a) et du solidus ( $g_s=1$ ). La différence d'écoulement est donc directement imputable au mouvement des grains, seule différence dans la physique modélisée entre ces deux cas.

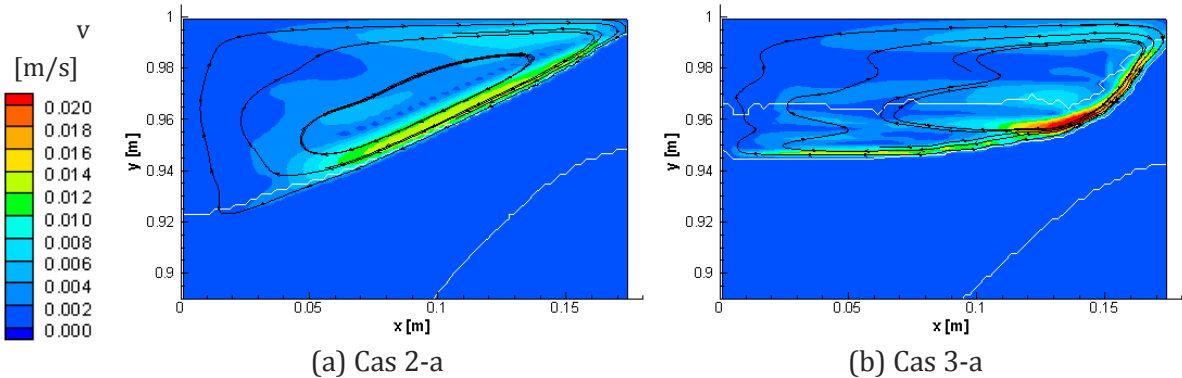


Figure 4- 9 : Carte et lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide (relative à la vitesse de coulée), et isolignes du liquidus, du blocage des grains et du solidus pour (a) le Cas 2-a et (b) le Cas 3-a.

On constate tout d'abord que la géométrie de la zone pâteuse est modifiée. Si le solidus est inchangé, le liquidus remonte et s'aplanie. La vitesse de convection du liquide avant blocage des grains est également plus grande : elle atteint 26mm/s juste avant le blocage des grains dans le Cas 3-a tandis qu'elle ne dépasse pas 14mm/s dans le Cas 2-a.

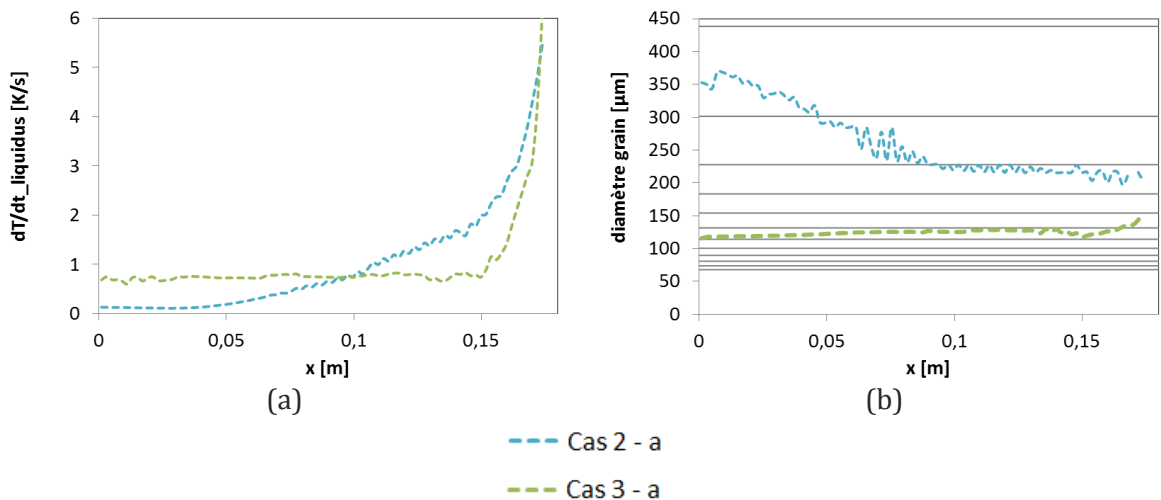


Figure 4- 10 : (a) Profil de vitesse de refroidissement au liquidus et (b) profil de diamètre de grain, dans le Cas 2-a et le Cas 3-a, donnant l'effet du mouvement des grains.

La modification de l'écoulement a un impact direct sur le refroidissement : celui-ci devient beaucoup plus homogène loin des parois, comme on peut le voir Figure 4- 10-a. Mais la taille finale ne peut pas être expliquée par ce seul paramètre car le système n'est pas fermé. Les grains quittant la zone de germination modifient la compétition entre germination et croissance. Près des parois, les germes sont advectés jusqu'à la zone de germination et les grains formés, plus denses que le liquide, sédimentent vers le centre du produit. Une forte surfusion est donc maintenue et toutes les classes de germes sont activées. De plus, ces grains qui sédimentent au centre du produit réduisent suffisamment la surfusion dans cette zone pour prévenir toute germination. La germination n'a donc plus lieu sur toute la largeur du produit mais dans une zone très localisée près de la paroi, comme on peut le voir Figure 4- 4-d. La surfusion étant très fortement augmentée dans cette zone de germination du fait de la sédimentation des grains, plus de germes sont activés et la structure est globalement affinée. De plus, le mouvement des grains tend à uniformiser la taille des structures. Le profil de diamètre final de grains est donné Figure 4- 10-b.

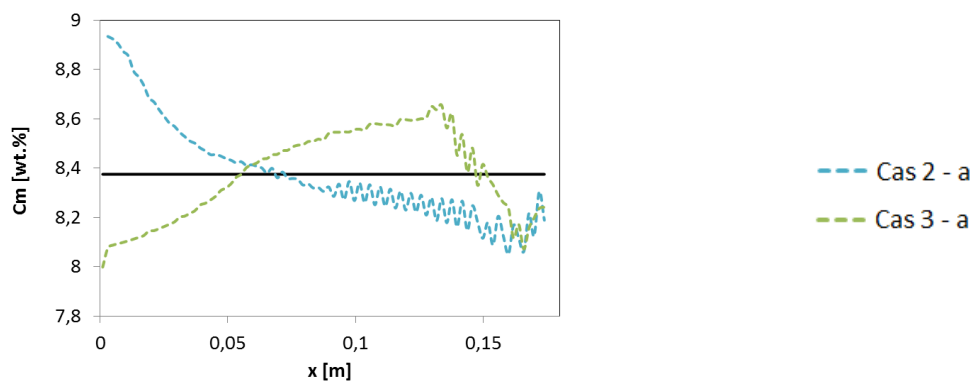


Figure 4- 11 : Profil de composition en soluté dans le Cas 2-a et le Cas 3-a, donnant l'effet du mouvement des grains.

Le mouvement des grains a également un impact important sur la formation des macroségrégations, comme on peut le voir Figure 4- 11. Les grains moins riches en soluté sédimentent vers le centre du produit, ce qui se traduit par une ségrégation négative au centre du produit. Le mouvement des grains a donc un effet prédominant sur la formation des ségrégations par rapport au mouvement induit par la convection thermo-solutale. La ségrégation est fortement modifiée sur toute l'épaisseur du fait du mouvement des grains.

## 2.8. Impact couplé du transport des grains et des germes

On rajoute au cas précédent le mouvement des germes. Malgré son effet non négligeable sur la taille des grains, le mouvement des germes ne modifie pas le refroidissement de façon notable. La zone de germination reste également localisée près de la paroi, comme on peut le voir Figure 4- 4-e. Mais désormais, non seulement les grains quittent la zone de germination mais les germes sont apportés par convection à une vitesse supérieure à la vitesse de coulée. En effet, la vitesse de la phase liquide dans la zone de germination est d'environ 10mm/s dans le Cas 3-b contre exactement 0,5mm/s dans le Cas 3-a (correspondant à la vitesse de coulée). Le taux d'activation des grains est donc augmenté.

On l'estime Figure 4- 12 en intégrant le taux de formation des grains par unité de temps ( $\dot{N}$ ) à une abscisse donnée :

$$\bar{N}(x) = \frac{1}{y_{\max}} \int_{y=0}^{y_{\max}} \dot{N}(x, y) dy \quad (4.1)$$

On voit bien que si la germination reste localisée dans les 5 derniers centimètres près de la paroi, le taux de germination devient beaucoup plus important lorsque le mouvement des germes est pris en compte.

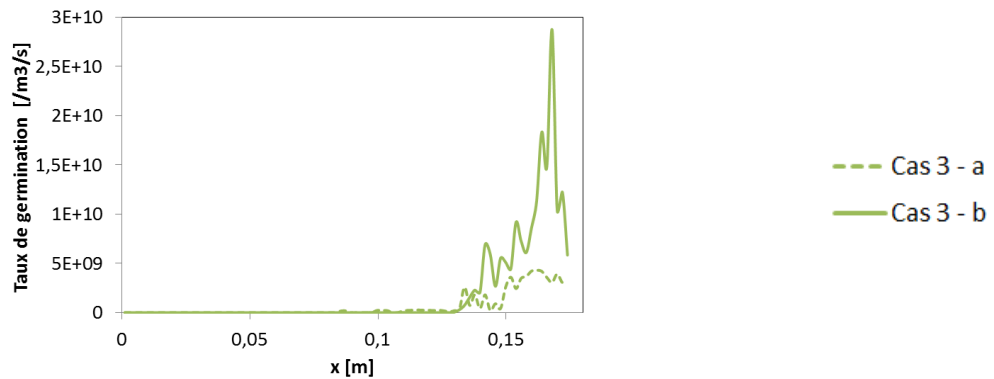


Figure 4- 12 : Profil de taux de germination dans le Cas 3-a et le Cas 3-b, donnant l'effet du mouvement des germes, lorsque le mouvement des grains est pris en compte.

Ainsi, la densité finale de grains augmente et la taille de grain diminue en moyenne, comme on peut le voir Figure 4- 13-a :

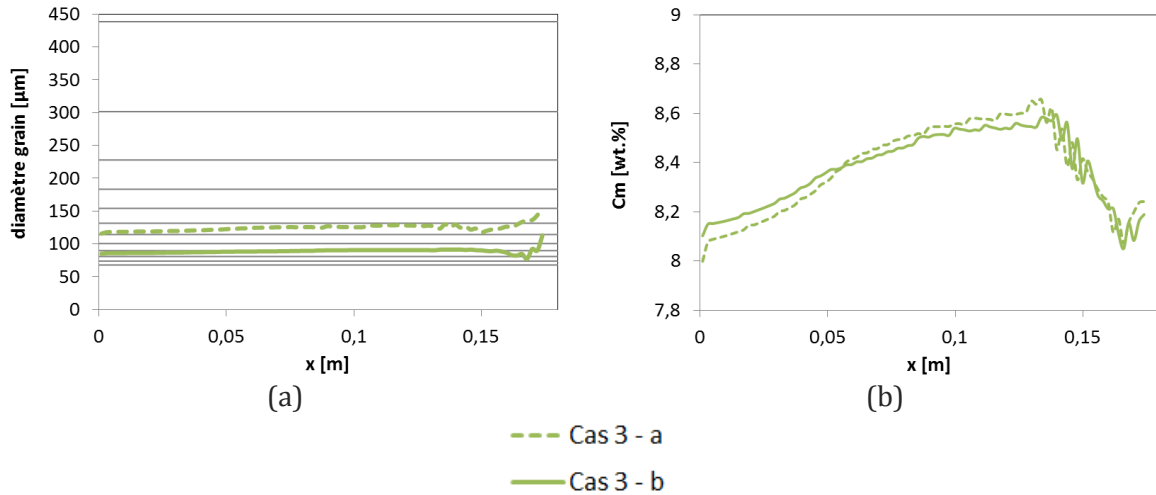


Figure 4- 13 : (a) Profil de diamètre de grain et (b) profil de composition en soluté, dans le Cas 3-a et le Cas 3-b, donnant l'effet du mouvement des germes.

Le mouvement des grains étant pris en compte dans les deux cas, la taille de grains reste très uniforme sur toute la largeur du système. Le mouvement des germes, en modifiant la microstructure, impacte également la formation des macroségrégations. Plus de grains étant formés, leur taille est plus faible. Leur vitesse de sédimentation (c'est-à-dire relative à la vitesse du liquide) passe alors d'environ 0,1mm/s sans mouvement des germes à 0,05mm/s

avec mouvement des germes. L'impact du mouvement des grains sur la macroségrégation est alors atténué et la ségrégation centrale est moins négative, comme on peut le voir Figure 4-13-b.

## 2.9. Impact du modèle de croissance (Cas 4)

Jusqu'à présent, la structure a toujours été supposée globulaire. Or on sait qu'en réalité, les grains ne sont jamais parfaitement sphériques. Nous allons donc voir comment la prise en compte de la morphologie dendritique des grains impacte la formation des macroségrégations et des hétérogénéités de taille de structures. Pour cela, nous allons comparer les résultats obtenus sans mouvement des grains (Cas 2-b) et avec, pour les trois modèles de croissance : globulaire (Cas 3-b), dendritique avec pointe hémisphérique (Cas 4-a) et dendritique avec pointe paraboloidale (Cas 4-b). Le mouvement des germes est dans tous les cas pris en compte.

La fraction interne, donnant le rapport de la fraction solide sur la fraction d'enveloppe, évolue continument de 0 au début de la solidification à 1 à la fin de la solidification. Le modèle de pointe influe sur l'évolution de la fraction interne entre ces deux extrema. On donne la carte de fraction interne pour les Cas 4-a et Cas 4-b Figure 4- 14:

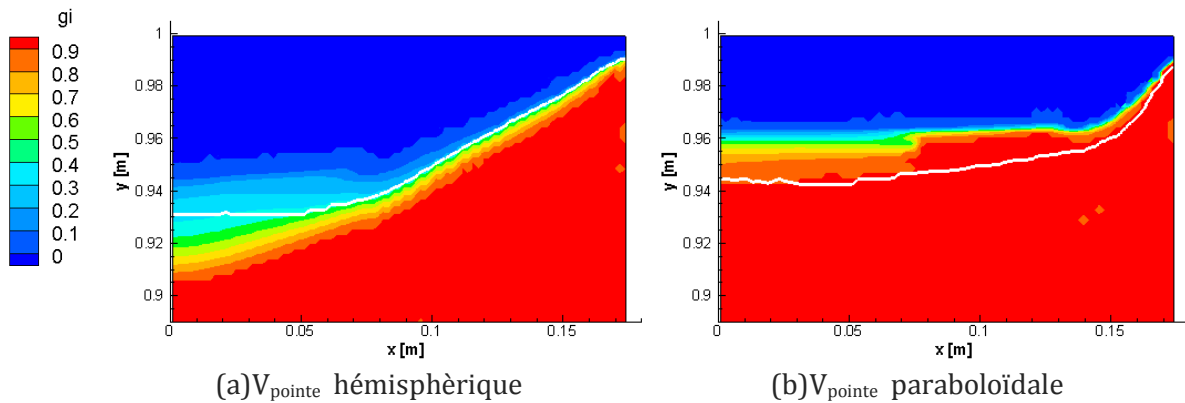


Figure 4- 14 : Carte de fraction interne  $g_i=g_s/g_{env}$  et isoligne de blocage des grains ( $g_{env}=0,3$ ) pour deux modèles de croissance de pointe (a) Cas 4-a et (b) Cas 4-b.

La fraction interne au moment du blocage des grains est tracée Figure 4- 15-a. Près de la paroi, on retrouve l'effet du modèle de pointe étudié en 0D ; le modèle de pointe hémisphérique induit une croissance de l'enveloppe et de la phase solide plus rapide. Les grains sont donc bloqués plus rapidement (à 6mm du haut du système contre 10mm dans le cas du modèle de pointe paraboloidale). Le mouvement des grains est ainsi atténué par le modèle de pointe hémisphérique. Moins de grains quittent la zone de germination, donc le taux de germination  $y$  est plus faible, comme on peut le voir Figure 4- 15-b. Le mouvement des grains devient insuffisant pour alimenter tout le centre du produit : la zone de germination est plus étalée (Figure 4- 4-f). Si le taux de germination est plus faible dans le Cas 4-a, il est donc non nul sur une plus grande épaisseur (Figure 4- 15-b).



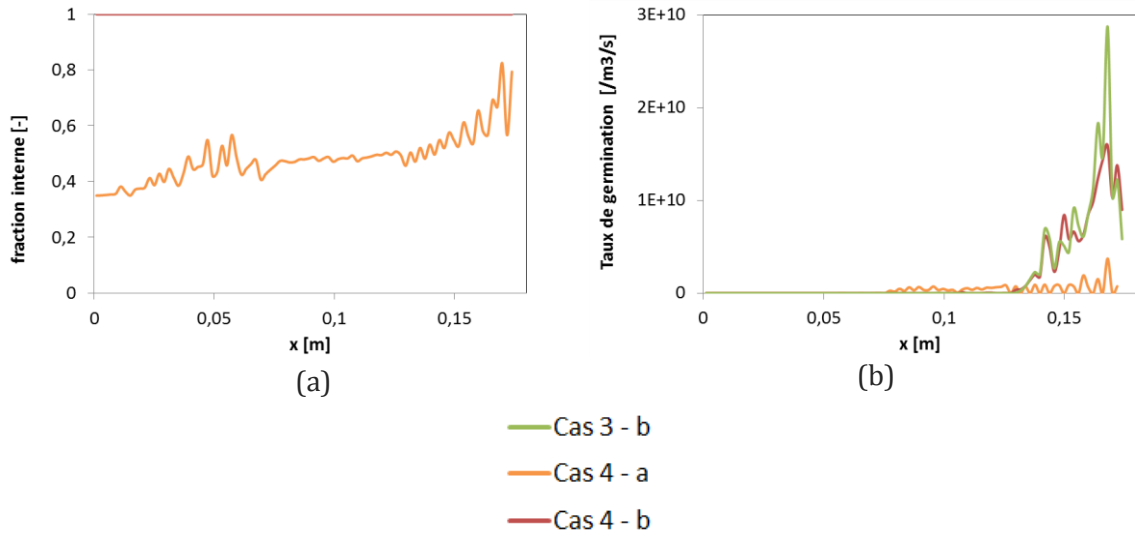


Figure 4- 15 : (a) Profil de fraction interne ( $g_i=g_s/g_{env}$ ) au moment du blocage des grains ( $g_{env}=0,3$ ) et (b) profil de taux de germination, pour le Cas 3-a (grains globulaires), le Cas 4-a ( $V_{pointe}$  hémisphérique) et le Cas 4-b ( $V_{pointe}$  paraboloidale).

Dans le cas du modèle de pointe paraboloidale au contraire, les grains se globularisent très rapidement, et sont totalement globulaires au moment du blocage, et ce sur toute l'épaisseur, comme on peut le voir Figure 4- 15-a. La prise en compte de la morphologie avec ce modèle de pointe change donc très peu les résultats. Le profil de taux de germination est très proche de celui obtenu avec l'hypothèse de grains globulaires (Figure 4- 15-b). Le profil de ségrégation comme celui de taille finale de grain (donnés Figure 4- 16) sont presque identiques à ceux obtenus par le modèle globulaire (Cas 3-b et Cas 4-b) :

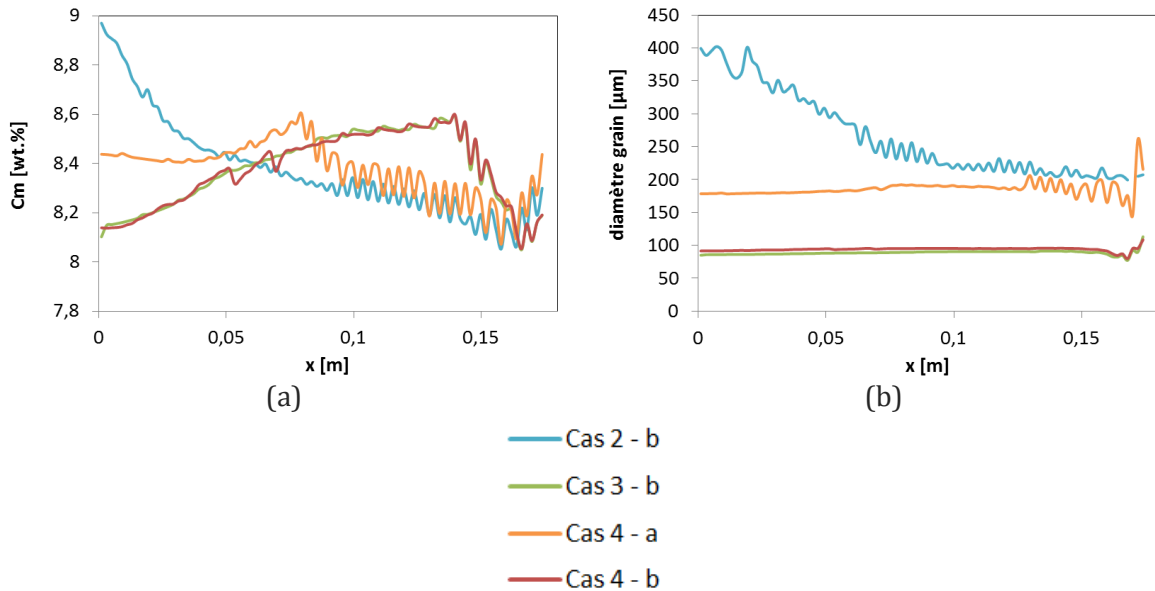


Figure 4- 16 : (a) Profil de composition en soluté et (b) profil de diamètre de grain, dans les cas avec mouvement des germes : pour le Cas2-b sans mouvement des grains, et les Cas 3 et 4 avec mouvement des grains (Cas3-b : grains globulaires, Cas4-a : grains dendritiques et  $V_{pointe}$  hémisphérique et Cas4-b : grains dendritiques et  $V_{pointe}$  paraboloidale).

Au contraire, le mouvement des grains étant atténué par le modèle de pointe hémisphérique, son impact sur la formation des macroségrégations est réduit. Le profil final de ségrégation est alors compris entre le profil obtenu sans mouvement des grains (Cas 2-b) et celui obtenu avec mouvement de grains globulaires (Cas 3-b) et est très proche de celui obtenu sans mouvement des grains près de la paroi. La ségrégation devient même légèrement positive à cœur (on rappelle que  $C_0=8,375\text{wt.}\%$ ). De plus, on a vu que la prise en compte de la morphologie par ce modèle réduit l'intensité du mouvement des grains, ce qui réduit l'intensité de la germination (Figure 4- 15-b). La densité finale de grains est donc plus faible. Si la taille des structures reste homogène dans le produit, elle est presque doublée par rapport au cas globulaire (Cas 3-b), comme on peut le voir Figure 4- 16-b.

## 2.10. Conclusion

Cette première étude en coulée semi-continue a permis de mettre en évidence l'impact des différents phénomènes de transport sur la formation des macroségrégations et des hétérogénéités de tailles de structures. L'impact du mouvement des grains est connu : il affine et uniformise la taille des structures et induit une augmentation de la ségrégation négative à cœur. On constate l'apparition d'une zone de germination très localisée, près de la paroi. L'effet du mouvement des germes était par contre inconnu jusqu'à présent. On a pu constater que s'il n'impacte pas la localisation de la zone de germination, il amplifie le taux de germination. La taille de grains reste relativement uniforme dans le produit mais est donc affinée, le diamètre moyen de grain passant de  $125\mu\text{m}$  sans mouvement des germes à  $90\mu\text{m}$  avec.

La prise en compte de la morphologie dendritique des grains a également été testée pour deux modèles de pointe : hémisphérique et paraboloidale. Dans notre étude, le choix de ce modèle de pointe a une très forte influence, à la fois sur la taille de grains et sur la macroségrégation. Si le modèle de pointe paraboloidale donne des résultats très proches de ceux obtenus en supposant les grains globulaires, il n'en est pas de même pour le modèle de pointe hémisphérique. La croissance des grains et de la phase solide est alors plus rapide, et les grains sont plus dendritiques. Ils sont donc bloqués à une plus faible fraction solide, réduisant l'impact du mouvement des grains. La zone de germination est élargie et la taille de grains est plus élevée. De même, le profil de macroségrégation est proche de celui obtenu sans mouvement des grains près de la paroi.

Afin de juger de la capacité de notre modèle à prédire la formation de ces hétérogénéités, nous allons à présent étudier un cas de coulée semi-continue pour lequel de nombreuses informations obtenues expérimentalement sont disponibles.

## 3. Application à la coulée industrielle EMPACT

### 3.1. Introduction

Dans le cadre du programme Brite-Euram, le projet EMPACT ( European Program on Aluminium Casting Technology), réalisé entre 1996 et 2000, avait pour objectif d'améliorer le procédé de coulée semi-continue pour les alliages d'aluminium. Pour ce faire, cinq industries

européennes de l'aluminium (Alusuisse, Hoogovens, Hydro Aluminium, Pechiney, VAW), une entreprise de simulation numérique (Calcom SA) et quatre centres de recherche universitaires (Ecole Polytechnique de Lausanne, Ecole des Mines de Nancy, TU Delft, Sintef) se sont regroupés. Ils ont réalisé un grand nombre de mesures expérimentales pour différents alliages et pour différents paramètres de coulée. A chaque fois, des mesures de température ont été effectuées tout au long de la solidification dans le métal et dans le moule, puis des mesures de composition et de taille de structures ont été réalisées post-mortem dans le métal. Ces résultats sont d'un grand intérêt car ils permettent à la fois d'estimer relativement précisément le refroidissement dans le métal, de visualiser la ségrégation et la taille des structures dans tout le lingot et de corrélérer ces résultats aux conditions de coulée. C'est pourquoi nous allons étudier une plaque coulée dans le cadre de ce projet. Nous pourrons ainsi comparer les résultats de notre modèle aux résultats expérimentaux, aussi bien en termes de macroségrégations que de tailles de structures.

### 3.2. Définition du cas étudié

Le lingot que nous étudions est référencé dans le projet EMPACT comme AA5182#2. Il est schématisé Figure 4- 17-a. L'alliage, principalement composé de magnésium (à hauteur de 4,6wt.%), est coulé à  $v_c=1\text{mm/s}$  dans un moule de 1897mm de largeur (noté  $z$ ) par 510mm d'épaisseur (noté  $x$ ). La première moitié du lingot est coulée sans affinant puis 1kg/t de l'affinant Al-3Ti-1B est ajouté pour le reste de la coulée. La température d'entrée du métal liquide est de 705°C et un sac de distribution est utilisé (Joly A. 2000).

#### 3.2.1. Résultats expérimentaux

Les mesures de composition en soluté faites par OES (Optical Emission Spectroscopy) sont décrites dans (Daloz D. 2002). La composition en magnésium (initialement égale à 4,06wt.%) est mesurée pour une altitude (notée  $y$ ) donnée entre  $x=-62,5\text{ mm}$  et  $x=262,5\text{ mm}$  ( $x$  l'épaisseur) et entre  $z=12,5\text{ mm}$  et  $z=1037,5\text{ mm}$  ( $z$  la largeur). Cette zone de mesure correspond au plan représenté en rouge Figure 4- 17-a. Des mesures sont effectuées dans cette zone selon un quadrillage d'environ 25 mm de côté, comme représenté Figure 4- 17-b. On a ainsi la composition en soluté sur légèrement plus d'un quart d'un plan horizontal.

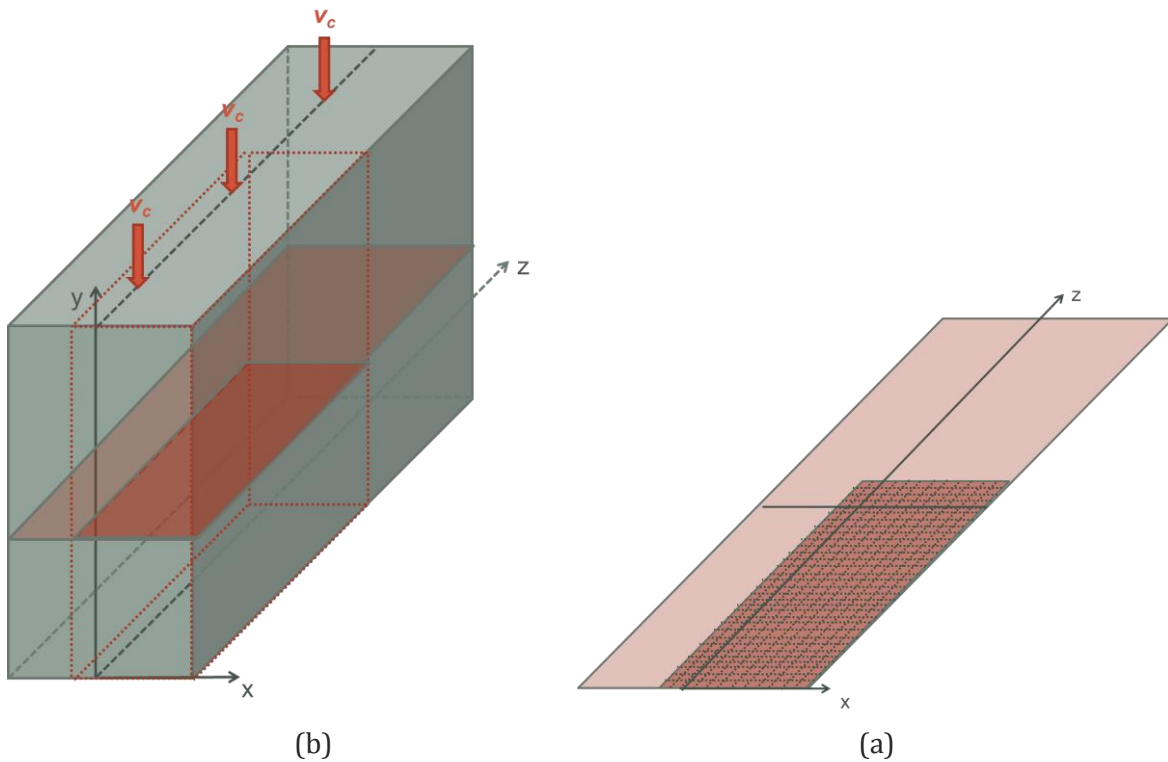


Figure 4- 17 : (a) Schéma de la coulée étudiée avec en rouge la partie du plan horizontal où les mesures de composition en soluté sont réalisées et (b) quadrillage des points de mesure dans la zone concernée - réalisé à partir des données dans (Joly A. 2000).

En supposant ensuite une symétrie axiale à mi-largeur et à mi-épaisseur, on peut en déduire une carte de ségrégation en magnésium sur tout un plan horizontal. Ces mesures sont effectuées dans la première partie du lingot, non affinée, et dans la seconde moitié, affinée 1kg/t de l'affinant Al-3Ti-1B. On obtient ainsi les cartes de ségrégation données Figure 4- 18:

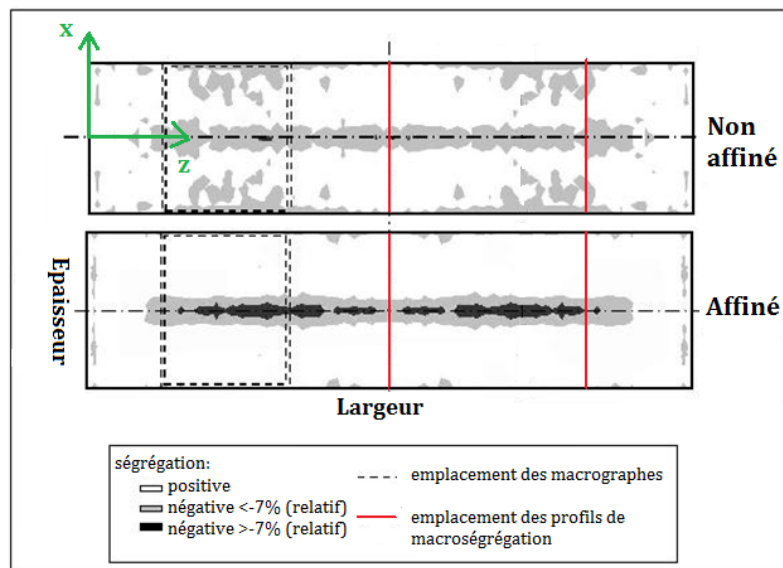


Figure 4- 18 : Mesures de macroségrégation réalisées à deux altitudes dans le lingot, la première dans partie non affinée et la seconde dans la partie affinée du lingot - tiré de (Joly A. 2000).

Un profil moyen de ségrégation en magnésium selon l'épaisseur  $x$  peut alors être obtenu en moyennant les profils obtenus aux différentes valeurs de la largeur (entre  $z=312,5\text{mm}$  et  $z=937,5\text{mm}$ , correspondant aux traits rouges Figure 4- 18). On donne le profil moyen ainsi que les extrema Figure 4- 19 pour la zone affinée (à deux altitudes) et pour la zone non affinée de la ségrégation relative  $\frac{C_m - C_0}{C_m}$  :

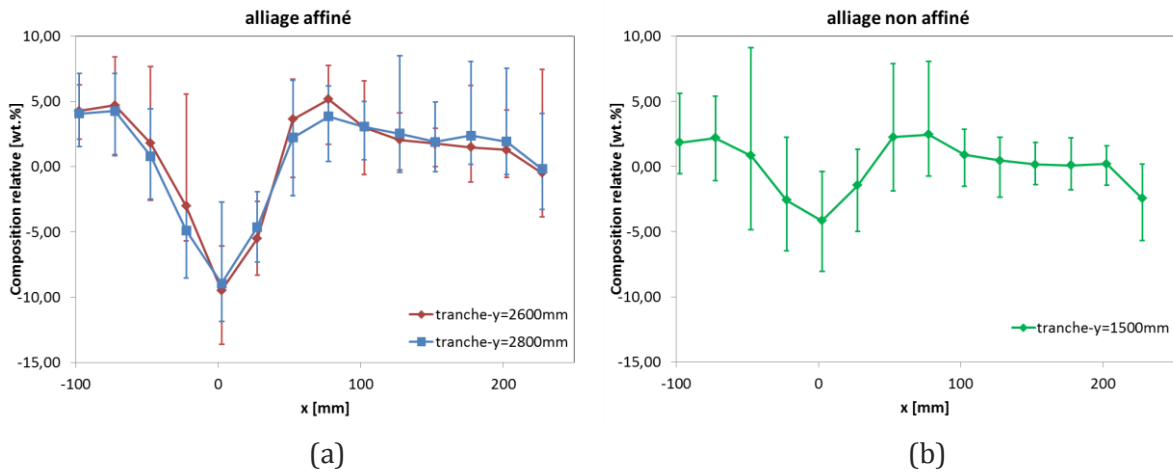


Figure 4- 19 : Profil expérimental de composition relative en magnésium selon l'épaisseur  $x$ , moyenné entre  $z=312,5\text{mm}$  et  $z=937,5\text{mm}$  pour (a)  $y=2600\text{mm}$  et  $y=2800\text{mm}$  (partie affinée) et (b)  $y=1500\text{mm}$  (partie non affinée).

De même, la microstructure est étudiée par microscopie optique à partir d'échantillons prélevés selon l'épaisseur du lingot, comme on peut le voir Figure 4- 20:

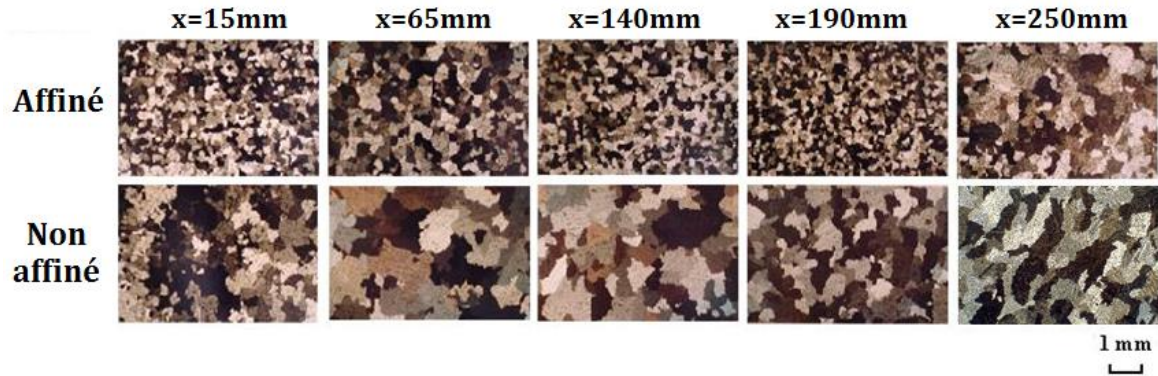


Figure 4- 20 : Microstructure selon la distance au centre, pour les cas affiné et non affiné– tiré de (Joly A. 2000).

La taille des grains est déduite par analyse d'image à  $z=450\text{mm}$ , et donnée Figure 4- 21:

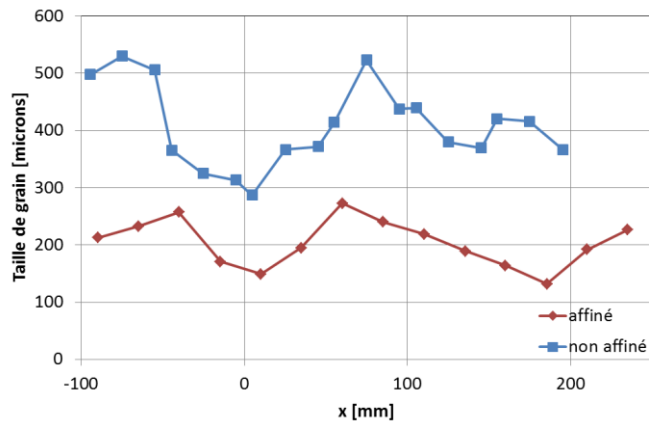


Figure 4- 21 : Profil expérimental de taille finale de grains selon l'épaisseur x à z=450mm dans le cas non affiné et le cas affiné- tiré de (Daloz D. 2002)

Nous allons donc chercher à comparer ces résultats expérimentaux aux profils de taille de grains et de macroségrégation obtenus par le modèle SOLID.

### 3.2.2. Modélisation du cas

L'alliage 5182 est modélisé par un alliage binaire Al-4,06wt.%Mg. Les propriétés du diagramme de phase ainsi que les autres données thermodynamiques utilisées sont tirées de (Jalanti T. 2000) et données en annexe. La particularité du magnésium est qu'il est plus léger que l'aluminium. Ainsi, lorsque le liquide s'enrichit en soluté au cours de la solidification, sa masse volumique diminue, comme on peut le voir Figure 4- 22. La masse volumique de la phase liquide est estimée pour l'alliage binaire par le modèle de Scheil et par le modèle des bras de levier.

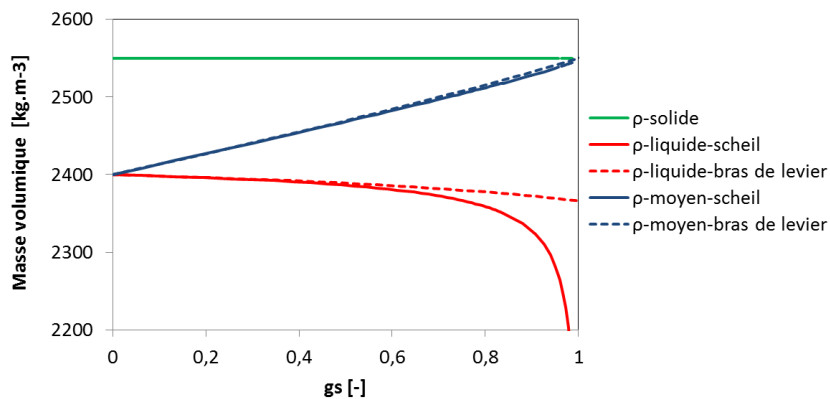


Figure 4- 22 : Evolution de la masse volumique du solide, du liquide et de la moyenne des deux phases avec la fraction solide (le chemin de solidification est calculé par le modèle de Scheil jusqu'à la température eutectique en traits pleins et par le modèle des bras de levier en pointillés).

Comme la largeur du lingot est très grande devant son épaisseur, on suppose le système bidimensionnel. De plus, on suppose qu'il existe une symétrie axiale en x=0 donc le système étudié fait 275 mm de largeur (toujours noté x) et on fixe la hauteur du système à 1000 mm (toujours noté y). La zone modélisée correspond à la zone représentée en rouge

Figure 4- 23-a, et reprise Figure 4- 23-b avec les conditions aux limites thermiques. Un combo-bag étant utilisé dans l'expérience, on suppose également que l'entrée du métal se fait sur toute la largeur. Le métal est injecté à 705°C au centre du lingot dans l'expérience, mais les mesures de température effectuées au cours de la solidification montrent que le métal refroidit très rapidement à la surface du métal liquide : les 5 thermocouples indiquent une température de l'ordre de 670°C à la surface (Drezet J.M. 2000). On considère donc que le métal est à cette température sur toute la surface supérieure du système.

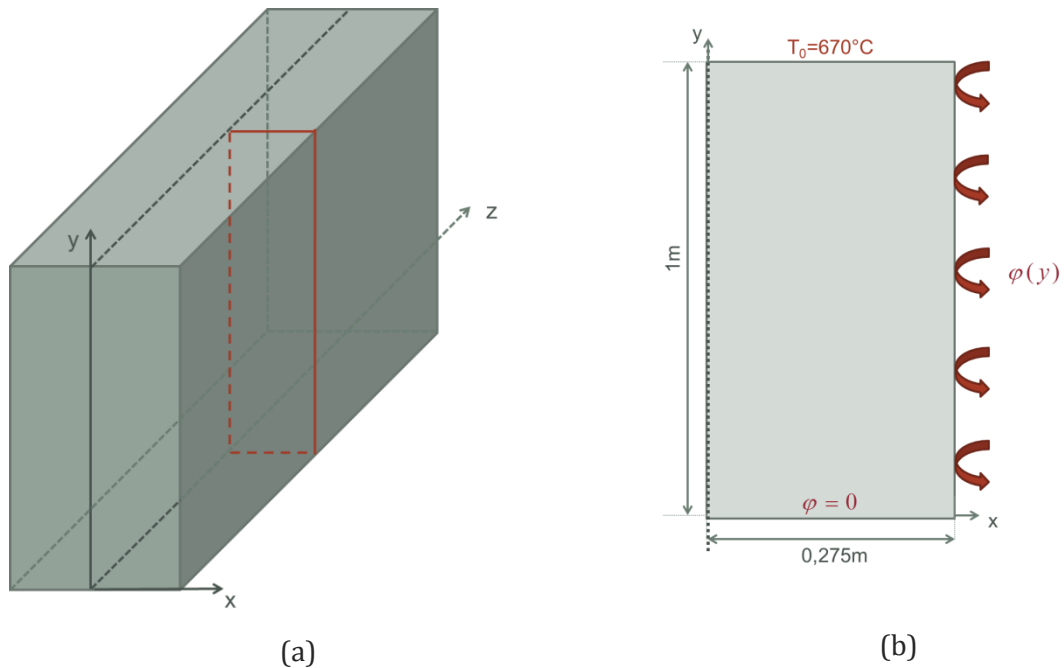


Figure 4- 23 : (a) Schéma 3D de la coulée étudiée. (b) Schéma 2D du système utilisé pour modéliser la coulée.

Ces mesures de température ont également permis, par méthode inverse, de déterminer le flux d'extraction de chaleur latéral fonction de l'altitude  $\varphi(y)$  (Drezet J.M. 2000) . Le flux de chaleur est déterminé par cette méthode jusqu'à 0,3m de la surface du métal liquide. Nous l'avons ensuite extrapolé de façon à obtenir un marais continuant convexe. Il est tracé Figure 4- 24 et les valeurs sont données en annexe. Le flux de chaleur est supposé nul sur les autres frontières du système.

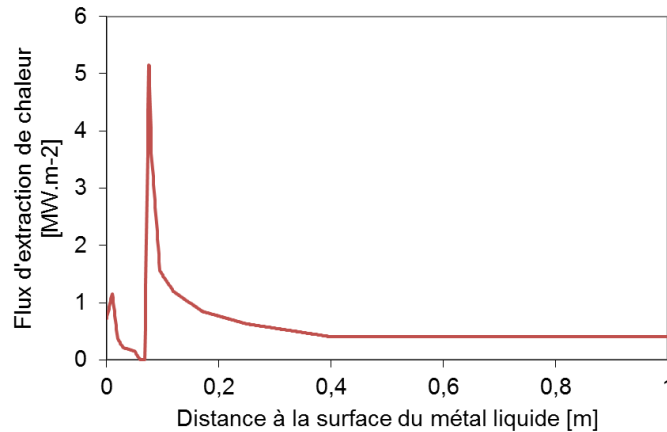


Figure 4- 24 : Flux d'extraction de chaleur à la surface latérale du lingot, obtenu par méthode inverse par J.M.Drezet et al. dans (Drezet J.M. 2000) entre 0 et 0,3m puis extrapolée. La fonction, affine par partie, est décrite en annexe.

Le métal est affiné avec 1kg/t de Al-3Ti-1B, mais nous ne disposons pas des caractéristiques de la distribution en taille des affinants pour cet affinant. Nous avons par contre les informations pour l'affinant Al-5Ti-1B, qui donne des résultats très proches en termes de taille de grains pour des tests de type TP-1 comme nous l'avons vu dans le premier chapitre au paragraphe 1.3.1.2. Nous utilisons donc la loi de distribution en taille de l'affinant Al-5Ti-1B dans nos calculs. A partir des paramètres de cette loi de distribution, issus de (Tronche A. 2000), la discrétisation de la loi de germination utilisée correspond à celle donnée Figure 4- 25 en rouge. Lorsque l'alliage n'est pas affiné, on constate que la taille des grains mesurée expérimentalement est approximativement doublée (Figure 4- 21), comparativement au cas affiné. Cela signifie que la densité de grains est approximativement divisée par 8. Ne pouvant modéliser la solidification sans imposer une loi de germination hétérogène dans SOLID, nous décidons donc d'utiliser une loi de germination 8 fois plus faible, comme donné Figure 4- 25 en bleu.

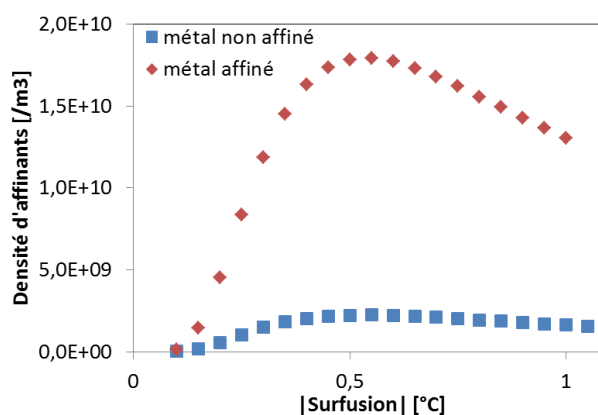


Figure 4- 25 : Classes de germes utilisées dans l'étude, correspondant à 1kg/t d'affinants de type Al-5Ti-1B dans le cas affiné (caractéristiques de la loi de germination tirées de (Tronche A. 2000)) et à 0,125kg/t dans le cas non affiné, soit 8 fois moins de germes.

Le pas de temps de calcul est fixé à  $dt=10^{-3}s$  et le maillage est constitué de 51x200 mailles carrées de 5mm de côté. Ce pas de temps de calcul permet la convergence sans trop



augmenter le temps de calcul (déjà de plusieurs semaines pour le cas du calcul complet). Le marais étant très profond, on a choisi de garder la même taille de maille dans tout le domaine. Le modèle pour le transport de la phase solide est modifié pour prendre en compte l'inertie de la phase solide ainsi que les contraintes internes à la phase, comme proposé par L.Heyvaert et décrit en annexe.

### 3.3. Définition des cas traités

L'objectif est ici de voir dans quelle mesure notre modèle permet de prédire les tendances en termes d'hétérogénéités de composition et de taille de structures en CCV.

Pour cela, nous commençons par ne prendre en compte que le mouvement du liquide et des germes. Le Cas 1 (retrait) et le Cas 2 (convection thermo-solutale) permettent de distinguer l'effet de ces deux phénomènes et de voir l'importance relative de chacun lorsqu'on les combine (Cas 3). On ajoute ensuite le mouvement des grains en les supposant globulaires dans le Cas 4 (en vert). On teste enfin le modèle de croissance en supposant les grains dendritiques et en considérant un modèle de pointe hémisphérique dans le Cas 5 (en orange) puis un modèle de pointe paraboloidale dans le Cas 6 (en rouge). A chaque fois, on teste trois valeurs de la fraction de blocage des grains : a-  $g^{bloc}=0,3$ , b-  $g^{bloc}=0,4$  et c-  $g^{bloc}=0,5$ . Les phénomènes physiques pris en compte dans chaque cas sont rappelés Tableau 4- 2:

Tableau 4- 2 : Définition des cas pour l'étude EMPACT

	Mouvement du liquide		Mouvement des grains	Morphologie dendritique des grains	
	Convection thermo-solutale	retrait		pointe hémisphérique	pointe parabolique
Cas 1	non	<b>oui</b>	non	non	non
Cas 2	<b>oui</b>	non	non	non	non
Cas 3	<b>oui</b>	<b>oui</b>	non	non	non
Cas 4 - a	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,3</math></b>	non	non
Cas 4 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,4</math></b>	non	non
Cas 4 - c	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,5</math></b>	non	non
Cas 5 - a	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,3</math></b>	<b>oui</b>	non
Cas 5 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,4</math></b>	<b>oui</b>	non
Cas 5 - c	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,5</math></b>	<b>oui</b>	non
Cas 6 - a	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,3</math></b>	non	<b>oui</b>
Cas 6 - b	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,4</math></b>	non	<b>oui</b>
Cas 6 - c	<b>oui</b>	<b>oui</b>	<b>oui- <math>g^{bloc}=0,5</math></b>	non	<b>oui</b>

### 3.4. Modélisation sans mouvement des grains

Dans un premier temps, on cherche à voir dans quelle mesure le modèle permet d'estimer les hétérogénéités de composition et de taille de structures lorsque le mouvement des grains est négligé. On prend donc en compte le mouvement du liquide dû à la convection thermo-solutale et au retrait, ainsi que le mouvement des germes avec le liquide. Ceci correspond au Cas 3. Afin de mettre en évidence l'impact des deux phénomènes à l'origine de la convection du liquide sur la formation des hétérogénéités, on décompose les phénomènes : dans le Cas 1, seul le retrait est pris en compte et dans le Cas 2, seule la convection thermo-solutale induit le transport du liquide.

On constate que la physique prise en compte pour le transport de la phase liquide a un effet sur la thermique au centre dans le lingot. On donne Figure 4- 26 (a-b-c) la carte de température autour du liquidus (égale à 636,83°C à la composition nominale) pour les Cas 1 à 3. Les lignes en rouge indiquent la position du liquidus et du solidus (caractérisés respectivement par  $g_s=0$  et  $g_s=1$ ). On constate que le refroidissement est plus important au centre du lingot dans la zone totalement liquide lorsque la convection naturelle est prise en compte. Le liquidus est donc dans ce cas plus haut. La thermique aux fortes fractions solides et dans la phase entièrement solide n'est pas contre pas impactée par le transport de la phase liquide.

On comprend mieux l'effet de la convection naturelle et du retrait sur le refroidissement en regardant l'effet de ces deux phénomènes sur l'écoulement. On donne Figure 4- 26 (d-e-f) la carte et les lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide (relativement à la vitesse de coulée), ainsi que la position du liquidus et du solidus, et ceci pour les Cas 1, Cas 2 et Cas 3.

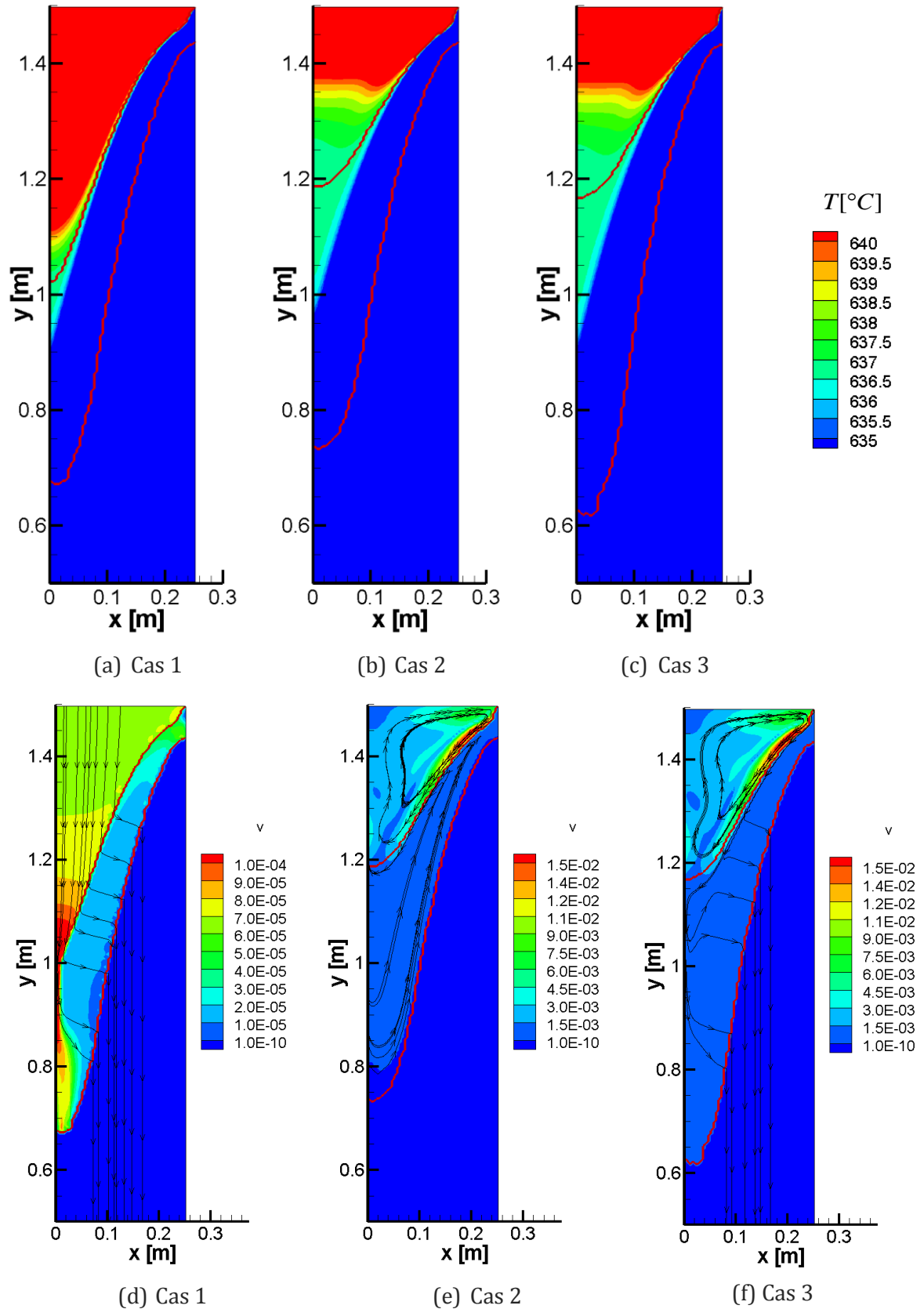


Figure 4- 26 : (a-b-c) Cartes de température autour du liquidus et (c-d-e) Cartes et lignes de courant (en noir) de la vitesse intrinsèque du liquide (relativement à la vitesse de coulée, en m/s) pour les Cas 1, Cas 2 et Cas 3. La position des liquidus et solidus est indiquée par les lignes rouges.

Lorsque seul le retrait est pris en compte (Cas 1), l'écoulement est contrôlé par l'appel du liquide vers les zones de fortes fractions solides. Les lignes de courant sont donc dirigées vers l'extérieur dans la zone pâteuse (Figure 4- 26-d). L'écoulement est approximativement vertical dans la zone totalement liquide mais la vitesse du liquide devient supérieure à la vitesse de coulée de façon à alimenter la zone pâteuse. L'intensité de l'écoulement induit par le retrait reste cependant trop faible pour impacter la thermique dans le lingot (les vitesses intrinsèques de la phase liquide relativement à la vitesse de coulée sont au maximum de l'ordre de  $0,15\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

De plus, l'écoulement n'étant presque pas impacté par le retrait dans la zone liquide, le mouvement des germes ne l'est pas non plus. La densité de chaque classe est égale à sa densité nominale jusqu'à la zone de germination. Le système peut donc être assimilé à un système fermé et la densité finale de grains à une abscisse donnée ne dépend que de la surfusion maximale atteinte à cette abscisse. Celle-ci est donnée Figure 4- 27 pour les trois premiers cas. La taille finale de grains dans le Cas 1 est très proche de celle obtenue sans aucun phénomène de transport (autre que la diffusion thermique), et varie de près de  $700\mu\text{m}$  au centre à  $350\mu\text{m}$  près de la paroi (Figure 4- 28-a).

L'effet de l'écoulement induit par le retrait sur les macroségrégations est plus important et une ségrégation négative apparaît au centre, comme on peut le voir Figure 4- 28-b. En effet, comme le retrait induit un transport du liquide approximativement dirigé vers les fractions solides croissantes, le liquide plus riche que le solide qu'il entoure se déplace vers les parois du lingot : le centre s'appauvrit en soluté. On donne Figure 4- 29 la carte de ségrégation relative en soluté pour les trois premiers cas. On peut donc voir Figure 4- 29-a la zone de formation des ségrégations dans le Cas 1.

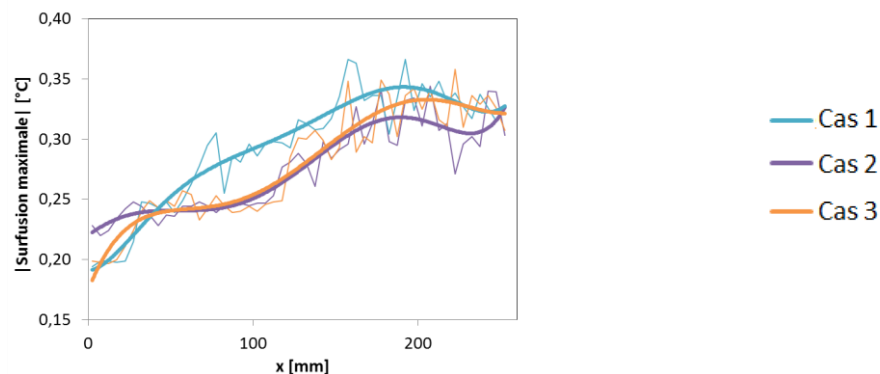


Figure 4- 27 : Profil de surfusion maximale (en valeur absolue) dans les Cas 1, Cas 2 et Cas 3 (en traits fins) et interpolation par un polynôme de degré 6 (en traits épais).

Dans le Cas 2, la convection thermo-solutale induit un écoulement dans le sens horaire dans le système, plus précisément dans la zone totalement liquide (Figure 4- 26-e). Le sens de l'écoulement dans ce cas ne pouvait être estimé a priori. Le métal liquide, en se refroidissant près de la paroi, devient plus dense et descend vers le centre du lingot, ce qui induit bien un écoulement dans le sens horaire. Cependant, dans cette zone, le métal tend également à s'enrichir du fait du rejet de soluté lors de la solidification, ce qui l'allège. L'effet solutal a alors tendance à inverser le sens de l'écoulement. On constate donc que l'effet thermique est

prédominant dans le cas étudié. Dans la zone pâteuse, la vitesse devient faible (inférieure à  $10^{-5}$  m/s dès  $g_s > 0,1$ ).

L'enrichissement en soluté dans le bain liquide est négligeable donc l'écoulement induit par la convection naturelle a un très faible impact sur les macroségrégations, comme on peut le constater Figure 4- 29-b. Le profil final de ségrégation relative est dans ce cas proche de 0 sur toute l'épaisseur (Figure 4- 28-b). L'écoulement induit par la convection naturelle a par contre un impact sur la formation des structures car il modifie le refroidissement. Le métal est rapidement refroidi en haut du lingot puis la température est presque uniforme dans le liquide et dans le haut de la zone pâteuse (Figure 4- 26-b). La vitesse de refroidissement est donc moins importante dans la zone de germination que dans le Cas 1. Ce résultat seul mènerait à la conclusion que la surfusion maximale atteinte est plus faible dans le Cas 2 que dans le Cas 1 sur toute l'épaisseur. Or on constate que ce raisonnement n'est pas vérifié au centre du lingot (Figure 4- 27). Un autre phénomène rentre en jeu : le mouvement des germes. Le brassage dans la zone liquide modifie profondément la densité en germes dans cette zone. Les germes sont en effet entraînés par le liquide vers la paroi, puis sont en partie activés en longeant la zone de germination vers le centre. Au centre du lingot, la distribution en taille des germes est donc totalement modifiée : seuls les germes trop petits pour être activés près de la paroi atteignent le centre. La compétition entre germination et croissance est alors modifiée et on constate que la surfusion augmente (Figure 4- 27). La taille finale de grains reste toutefois supérieure à celle obtenue dans le Cas 1 sur toute l'épaisseur, comme on le Figure 4- 28-a.

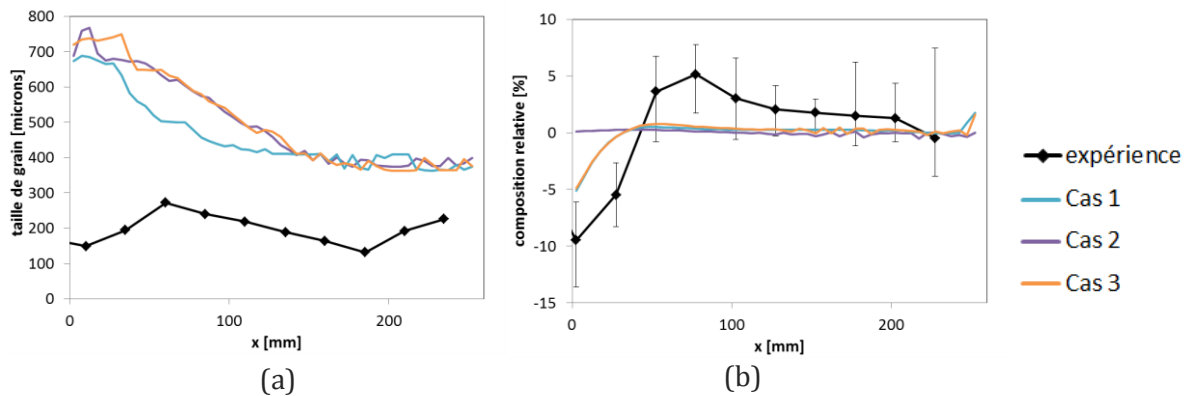


Figure 4- 28 : (a) Profil de diamètre de grain et (b) profil de composition relative en soluté, dans les Cas 1, Cas 2 et Cas 3 ainsi que les résultats expérimentaux.

Enfin, dans le Cas 3, les deux phénomènes induisant la convection de la phase liquide sont pris en compte. On peut alors constater que le retrait est le moteur de la formation des hétérogénéités de composition tandis que c'est la convection naturelle qui explique en grande partie les hétérogénéités de tailles de structures. En effet, la convection naturelle contrôle l'écoulement dans la zone totalement liquide donc elle contrôle le refroidissement et la distribution locale en taille des germes dans la zone de germination. On peut constater Figure 4- 27 que le profil de surfusion maximale obtenu pour le Cas 3 est proche de celui obtenu pour le Cas 2. Il en va de même pour le profil de taille de grains (Figure 4- 28-a). Cependant, nous avons vu que l'écoulement induit par la convection naturelle a un effet très faible sur la

formation des ségrégations. Le retrait, contrôlant l'écoulement dans la zone pâteuse, induit au contraire la formation de macroségrégations. La carte de ségrégation obtenue dans le Cas 3 est donc très proche de celle obtenue dans le Cas 1 (Figure 4- 29), ce qui se retrouve dans les profils de ségrégation finale Figure 4- 28-b.

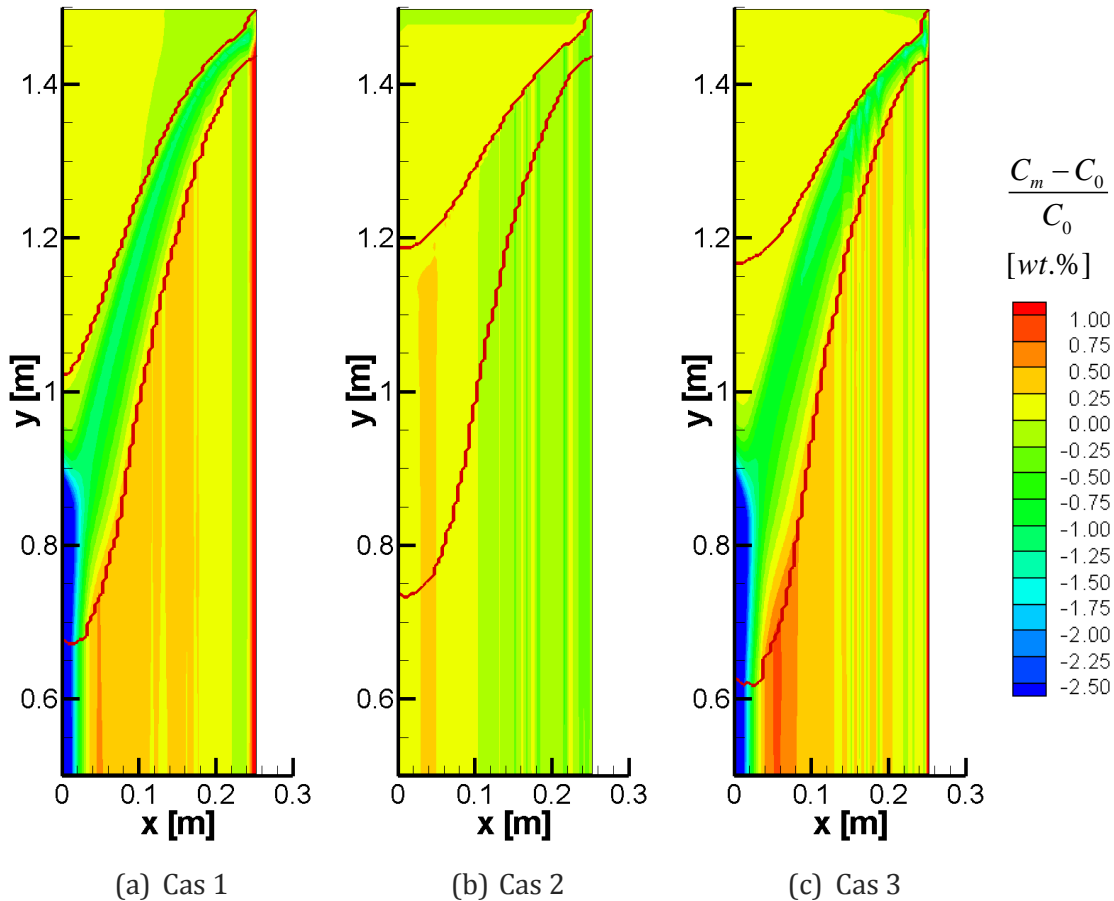


Figure 4- 29 : Carte de composition relative en soluté et position des liquidus et solidus (en rouge) pour (a) Cas 1, (b) Cas 2 et (c) Cas 3.

La Figure 4- 28 permet également de comparer les profils de taille de grains et de composition obtenus par le modèle à ceux obtenus par l'expérience dans le cas de l'alliage affiné. On constate qu'aucun des trois cas présentés ici ne permet de prédire ne serait-ce que qualitativement les résultats expérimentaux. La taille des grains est largement surestimée et l'augmentation de la taille des structures au centre du lingot n'est pas retrouvée par l'expérience. A l'inverse, l'intensité des macroségrégations est sous-estimée, même si la ségrégation centrale négative est retrouvée par le calcul.

### 3.5. Effet du mouvement des grains

Nous avons vu que nous ne parvenons pas à prédire les hétérogénéités de composition et de tailles de structures lorsque le mouvement des grains est négligé. Voyons donc comment les prédictions sont modifiées dans le Cas 4, lorsque leur mouvement est pris en compte.

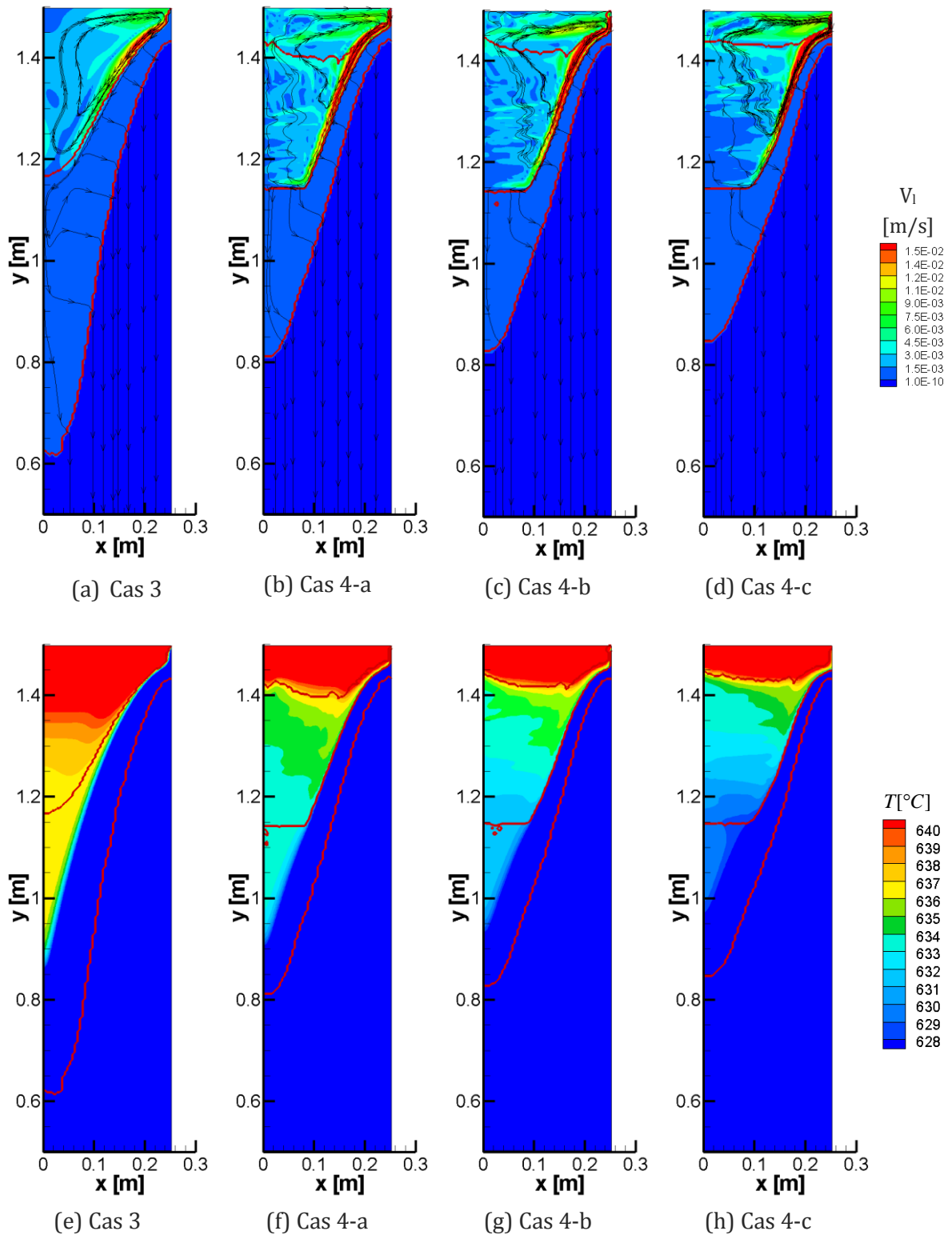


Figure 4- 30 : (a-b-c-d) Carte et lignes de courant (en noir) de la vitesse intrinsèque du liquide, et (e-f-g-h) carte de température, pour le Cas 3 et pour le Cas 4 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains (liquidus ligne de blocage des grains et solidus en rouge).

La morphologie des grains est supposée globulaire et trois fractions de blocage des grains sont étudiées (Cas 4-a :  $g^{\text{bloc}}=0,3$ , Cas 4-b :  $g^{\text{bloc}}=0,4$  et Cas 4-c :  $g^{\text{bloc}}=0,5$ ). L'impact du mouvement des grains sur l'écoulement de la phase liquide et sur le refroidissement est illustré Figure 4- 30.

L'écoulement et la géométrie de la zone pâteuse y sont donnés pour le Cas 3 (sans mouvement des grains) et pour le Cas 4 pour trois fractions de blocage des grains (Figure 4-30-a à Figure 4- 30-d). On peut voir que la zone dans laquelle l'écoulement est contrôlé par le retrait diminue lorsque le mouvement des grains est pris en compte, tandis que la zone où l'écoulement est contrôlé par la convection thermo-solutale et le mouvement des grains augmente. De plus, la prise en compte du mouvement des grains amplifie le mouvement de convection du liquide dans le bain liquide. En effet, les grains plus denses que le liquide sédimentent vers le centre du lingot et entraînent le liquide. On voit donc clairement que l'écoulement est modifié lorsque le mouvement des grains est pris en compte.

De même, le refroidissement est impacté par le mouvement des grains. Les grains se forment principalement près de la paroi et en sédimentant, transportent la chaleur latente vers le centre du lingot. Le refroidissement au centre est d'autant plus important que la fraction de blocage  $g^{\text{bloc}}$  est élevée (Figure 4- 30-e à Figure 4- 30-h).

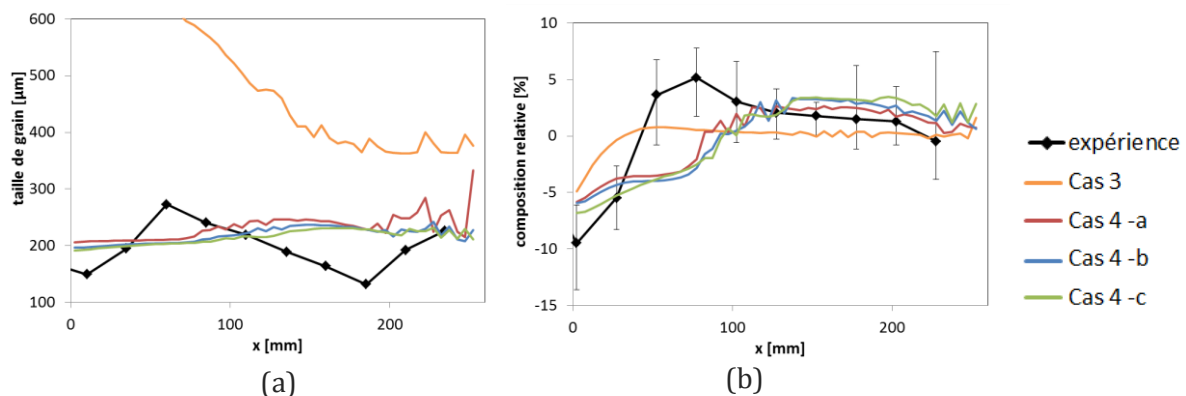


Figure 4- 31 : (a) Profil de diamètre de grain et (b) profil de composition relative en soluté, dans le Cas 3 et le Cas 4 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains, ainsi que les résultats expérimentaux.

Comme attendu, lorsque le mouvement des grains est pris en compte, la taille des grains est plus homogène et en moyenne deux fois plus faible que dans le Cas 3 (Figure 4- 31-a). La taille de grains prédite se rapproche de celle mesurée expérimentalement. La zone de germination, située tout le long du liquidus dans le Cas 3, est désormais localisée près de la paroi le long de l'isoligne de blocage des grains. Comme les grains quittent la zone de germination, la surfusion y est beaucoup plus élevée, comme on le voit Figure 4- 32-a. Le taux de germination, défini à l'équation (4.1), est alors nul au centre du produit et beaucoup plus élevé près de la paroi (Figure 4- 32-b). Même si la zone de germination est moins grande, plus de grains sont donc formés.



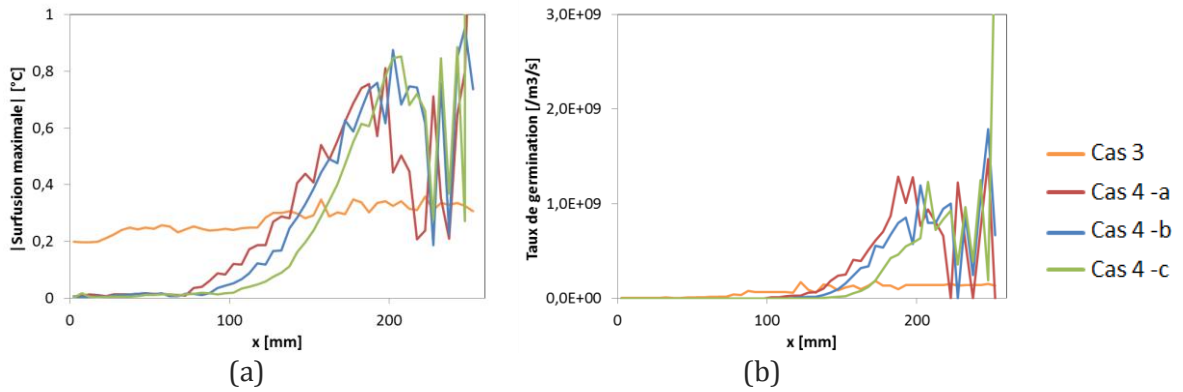


Figure 4- 32 : (a) Profil de surfusion maximale (en valeur absolue) et (b) profil de taux de germination, dans le Cas 3 et le Cas 4 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains.

Le mouvement des grains impacte également la formation des macroségrégations, comme on le voit Figure 4- 31-b. Les grains sédimentent vers le centre du lingot, donc la ségrégation y devient plus négative. La largeur du palier de blocage des grains observé au centre du lingot se traduit par un palier de ségrégation négative. A l'inverse, les grains quittent la zone de germination donc la ségrégation devient plus positive dans la moitié extérieure du lingot.

Plus précisément, on observe une diminution importante de la composition en soluté au niveau du palier de blocage des grains (Figure 4- 33). La variation temporelle de la composition moyenne dans le repère attaché à la lingotière s'exprime comme :

$$\frac{\partial C_m}{\partial t} = -\nabla \left[ g_l \vec{v}_l \langle C_l \rangle^l \right] - \nabla \left[ g_s \vec{v}_s \langle C_s \rangle^s \right] = 0 \quad (4.2)$$

En supposant la diffusion parfaite dans les deux phases (modèle des bras de levier), cette équation devient dans le repère lié au lingot solide (donc se déplaçant à la vitesse  $v_c$  par rapport au repère d'origine):

$$\frac{DC_m}{Dt} = (1-k) \langle C_l \rangle^l \nabla \left[ g_s (\vec{v}_s - \vec{v}_c) \right] - \frac{\nabla T}{m} \left[ kg_s (\vec{v}_s - \vec{v}_c) + g_l (\vec{v}_l - \vec{v}_c) \right] \quad (4.3)$$

Sur le front de blocage, le premier terme de droite est dominant et fortement négatif. On retrouve la diminution de la composition en soluté au niveau du blocage des grains au centre du lingot. Près de la paroi, un tel raisonnement n'est plus possible car la germination se passe précisément le long de l'isoligne de blocage des grains. L'hypothèse des bras de levier n'est donc plus adaptée et la variation de la composition moyenne est plus complexe à exprimer.

Les cartes de ségrégation relative en soluté données Figure 4- 33 permettent également de voir l'effet du retrait : la ségrégation négative induite par le blocage des grains est amplifiée par le retrait dans la zone poreuse au centre. On observe donc en plus du plateau de ségrégation négative (de la largeur du plateau de blocage des grains) un pic de ségrégation plus négative au centre.

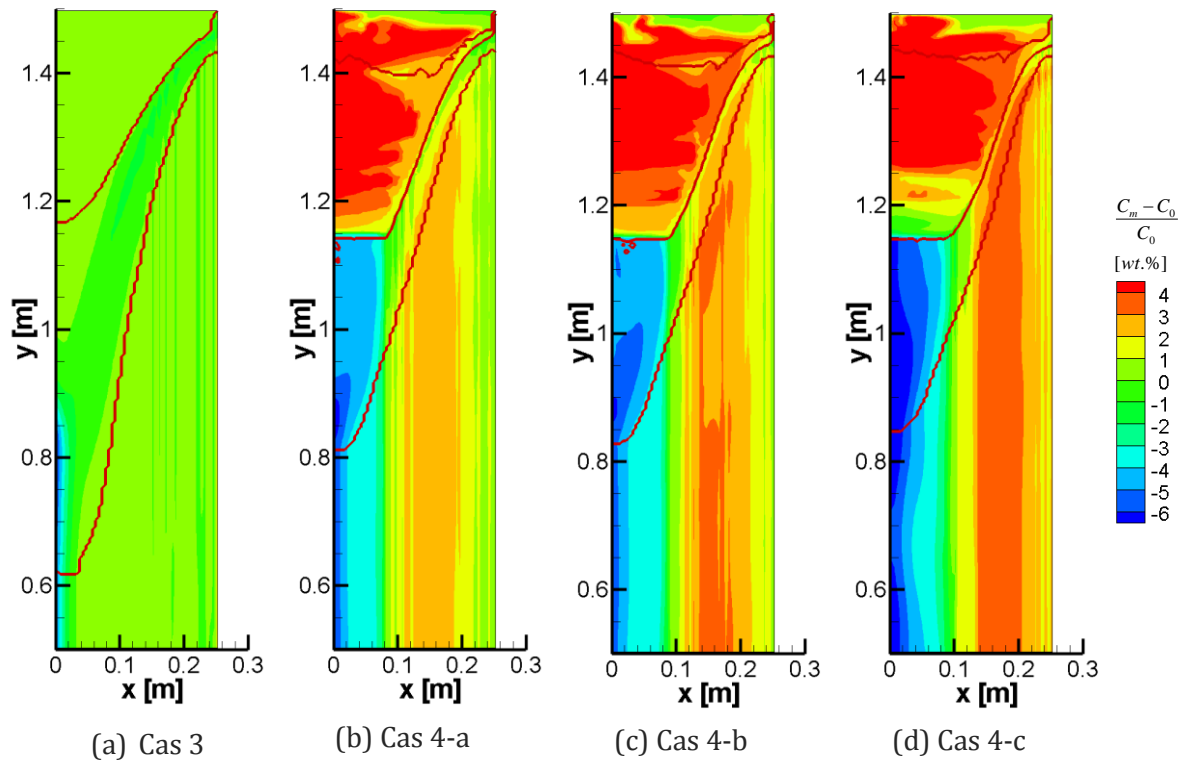


Figure 4- 33 : Carte de composition relative en soluté, liquidus, ligne de blocage des grains et solidus en rouge pour le Cas 3 et pour le Cas 4 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains.

Faire varier la fraction de blocage des grains a un impact relativement faible sur la structure de l'écoulement (Figure 4- 30). On peut constater Figure 4- 34-a que la position de l'isoligne de blocage des grains varie très peu lorsque l'on fait varier  $g^{bloc}$  de 0,3 à 0,5.

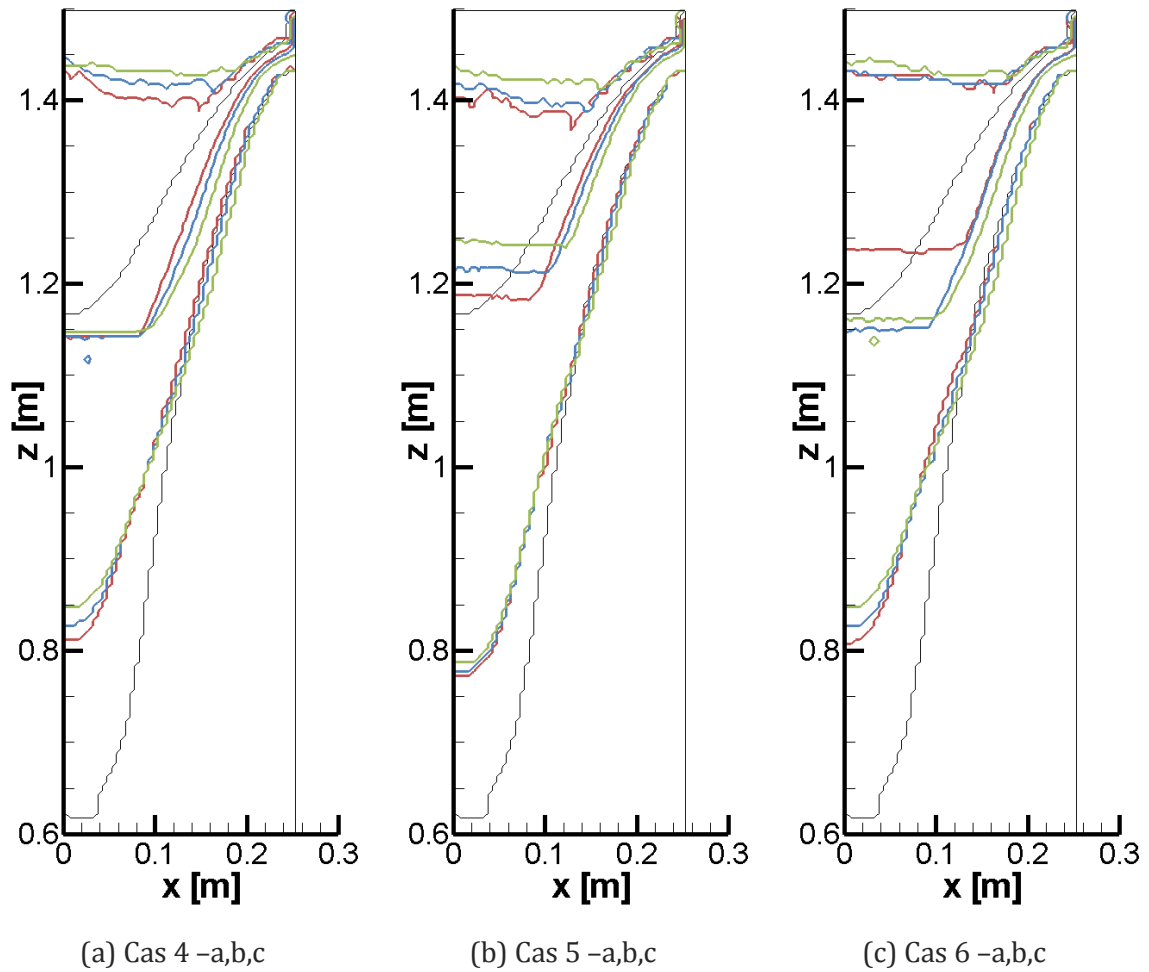


Figure 4- 34 : Effet de la fraction de blocage des grains sur la position des isolignes de liquidus ( $g_s=0$ ), de solidus ( $g_s=1$ ) et de blocage des grains ( $g_{env}=g^{bloc}$ ) pour (a) le Cas 4, (b) le Cas 5 et (c) le Cas 6. ( $g^{bloc}=0,3$  en rouge,  $g^{bloc}=0,4$  en bleu et  $g^{bloc}=0,5$  en vert). Dans chaque carte, la position des liquidus et solidus dans le Cas 3 est rappelée en traits noirs.

Les isolignes de liquidus, de blocage et de solidus sont en effet tracées Figure 4- 34 pour les trois fractions de blocage et comparées à celles obtenues dans le Cas 3 (en noir). Si la position du front de blocage ne change pas avec la valeur de la fraction de blocage choisie, c'est parce que la solidification et le refroidissement sont modifiés par ce paramètre. Lorsque le blocage des grains est plus tardif (Cas 4-c), la densité et le diamètre des grains quittant la zone de germination près de la paroi sont plus élevés, comme on peut le voir Figure 4- 35. On donne Figure 4- 35 la carte de densité de grains dans la zone de mouvement des grains, ainsi que les isolignes de tailles de grains (en blanc) et les vecteurs de la vitesse intrinsèque du solide (dans le repère attaché au moule, en noir), et ce pour les trois fractions de blocage :

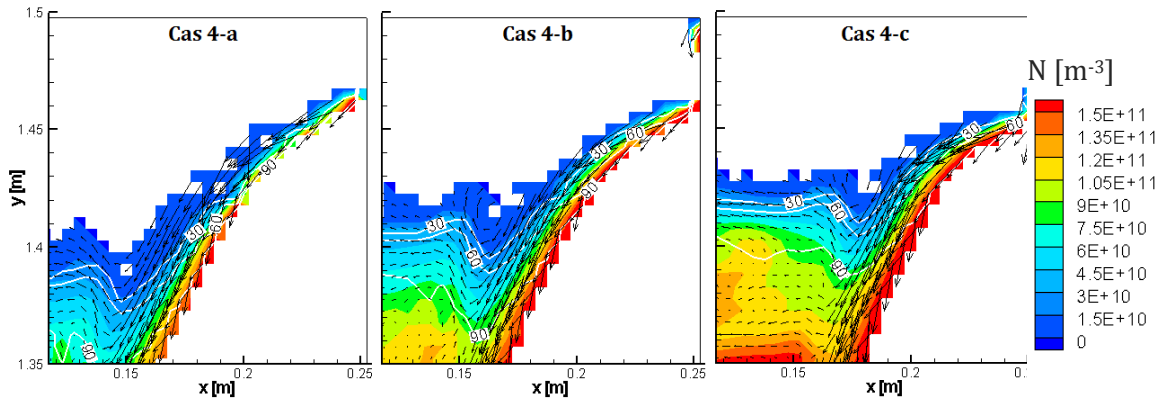


Figure 4- 35 : Effet de la fraction de blocage des grains sur la croissance et le mouvement des grains dans la zone de germination. La densité de grains est donnée en couleur, le diamètre des grains par des isolignes blanches pour 30 60 et 90 $\mu\text{m}$  et leur vitesse intrinsèque (dans le repère attaché au moule) en vecteurs noirs.

Lorsque la fraction de grain de blocage est plus importante, les grains peuvent quitter la zone de germination jusqu'à des fractions plus élevées, donc la zone de mouvement des grains près de la paroi s'élargit, comme on peut le voir Figure 4- 35. De plus, la surfusion et donc le taux de germination  $y$  sont plus élevés (Figure 4- 32-a et Figure 4- 32-b). On voit Figure 4- 35 que la densité et le diamètre moyen des grains dans cette zone sont plus élevés. La vitesse de transport des grains est donc plus élevée et favorise l'écoulement liquide dans le sens horaire. Le refroidissement et la solidification sont alors plus rapides et les grains sont bloqués presque à la même altitude. On peut voir l'impact de la fraction de blocage sur le refroidissement Figure 4- 30.

Au centre du lingot, l'empilement des grains au niveau de la fraction de blocage induit un saut de fraction solide et de densité de grains. Lorsque les grains sont bloqués à une plus grande fraction solide, le gradient de fraction solide est plus élevé dans la zone pâteuse, menant à un blocage des grains à la même altitude. Plus près de la paroi, la zone de mouvement des grains est beaucoup plus réduite mais elle augmente de façon significative lorsque le blocage est retardé, d'où l'effet amplifié du mouvement des grains sur la germination (Figure 4- 32-b). Dans cette zone, on n'observe pas de saut de densité de grain au niveau du blocage des grains, ce qui indique que le blocage ne se fait pas par empilement comme au centre du lingot mais par croissance.

Cependant, quelle que soit la valeur de la fraction de blocage, on ne parvient pas à prédire les tendances observées expérimentalement en termes de macroségrégations (Figure 4- 31-b). La largeur de la zone de ségrégation négative est surestimée et on ne retrouve pas la ségrégation très positive à  $x=80\text{mm}$ . Des tests menés avec des fractions de blocage plus faible ( $g^{\text{bloc}}=0,1$  et  $g^{\text{bloc}}=0,2$ ) mènent à des profils de ségrégations similaires. Seule l'intensité des ségrégations est réduite lorsque la fraction de blocage diminue.

De même, la perméabilité de la zone empilée n'influe pas sur la formation des ségrégations de façon notable. En effet, on a montré au chapitre précédent (en lingot) qu'augmenter la valeur du DAS augmentait la profondeur de la zone poreuse impactée par la convection naturelle. Or la convection naturelle a un impact négligeable sur la formation des

macroségrégations dans notre cas et l'écoulement est contrôlé par le retrait dès la fraction de blocage des grains. La prise en compte des autres éléments d'alliage dans l'estimation de la masse volumique de la phase liquide, qui réduit le coefficient d'expansion volumique solutale d'environ 30%, n'a pas plus d'impact. Les forces motrices principales dans la zone de grains mobiles sont la convection thermique et l'entraînement des grains.

La prise en compte du mouvement des grains permet par contre de prédire l'ordre de grandeur de la taille des structures, qui était largement surestimée lorsque le mouvement des grains était négligé. Ainsi, si le mouvement des grains permet de prédire de façon plus précise la taille des structures, le critère pour leur blocage induit un palier au centre du lingot en termes de ségrégation qui n'est pas observé expérimentalement.

### 3.6. Effet du modèle de croissance

Le modèle de croissance globulaire ne permettant pas d'estimer correctement la formation des macroségrégations, voyons si la prise en compte de la morphologie dendritique des grains permet d'améliorer nos estimations. Pour cela, nous allons étudier les deux modèles de croissance utilisés jusqu'à présent, à savoir le modèle de pointe hémisphérique et le modèle de pointe paraboloidale.

#### 3.6.1. Modèle de pointe hémisphérique

Lorsque la morphologie dendritique des grains est prise en compte avec le modèle de pointe hémisphérique, l'écoulement et la solidification sont impactés. La Figure 4- 36 donne la carte et les lignes de courant de la vitesse intrinsèque du liquide ainsi que la position du liquidus, du blocage des grains et du solidus en rouge pour le Cas 5 (mouvement de grains dendritiques avec le modèle de pointe hémisphérique)  $g^{\text{bloc}}=0,3$ . Les cartes pour le Cas 3 et le Cas 4-a sont également rappelées ici pour aider à la comparaison.

On peut voir Figure 4- 34 que lorsque la morphologie dendritique des grains est prise en compte (avec un modèle de pointe hémisphérique), le solidus descend légèrement et surtout, l'isoligne de blocage des grains est plus haute. Le blocage des grains intervient plus tôt car il a lieu non plus à  $g_s=g^{\text{bloc}}$  mais à  $g_{\text{env}}=g^{\text{bloc}}$ . Plus les grains sont dendritiques, plus ils sont bloqués rapidement. L'écoulement dans la zone poreuse reste lui comparable au cas globulaire, aussi bien en termes de direction que de vitesse (moins de  $0,15 \text{ mm.s}^{-1}$ ).

L'atténuation du mouvement des grains dans le Cas 5 impacte le refroidissement, à travers le transport de la chaleur latente. On peut comparer les cartes de température dans le Cas 3 (grains fixes, Figure 4- 36-d), dans le Cas 4-a (grains globulaires, Figure 4- 36-e) et le Cas 5-a (grains dendritiques, Figure 4- 36-f) pour une fraction de blocage fixée à  $g^{\text{bloc}}=0,3$ . Le refroidissement dans le Cas 5 reste plus important que dans le Cas 3 mais il est plus faible que dans le Cas 4.

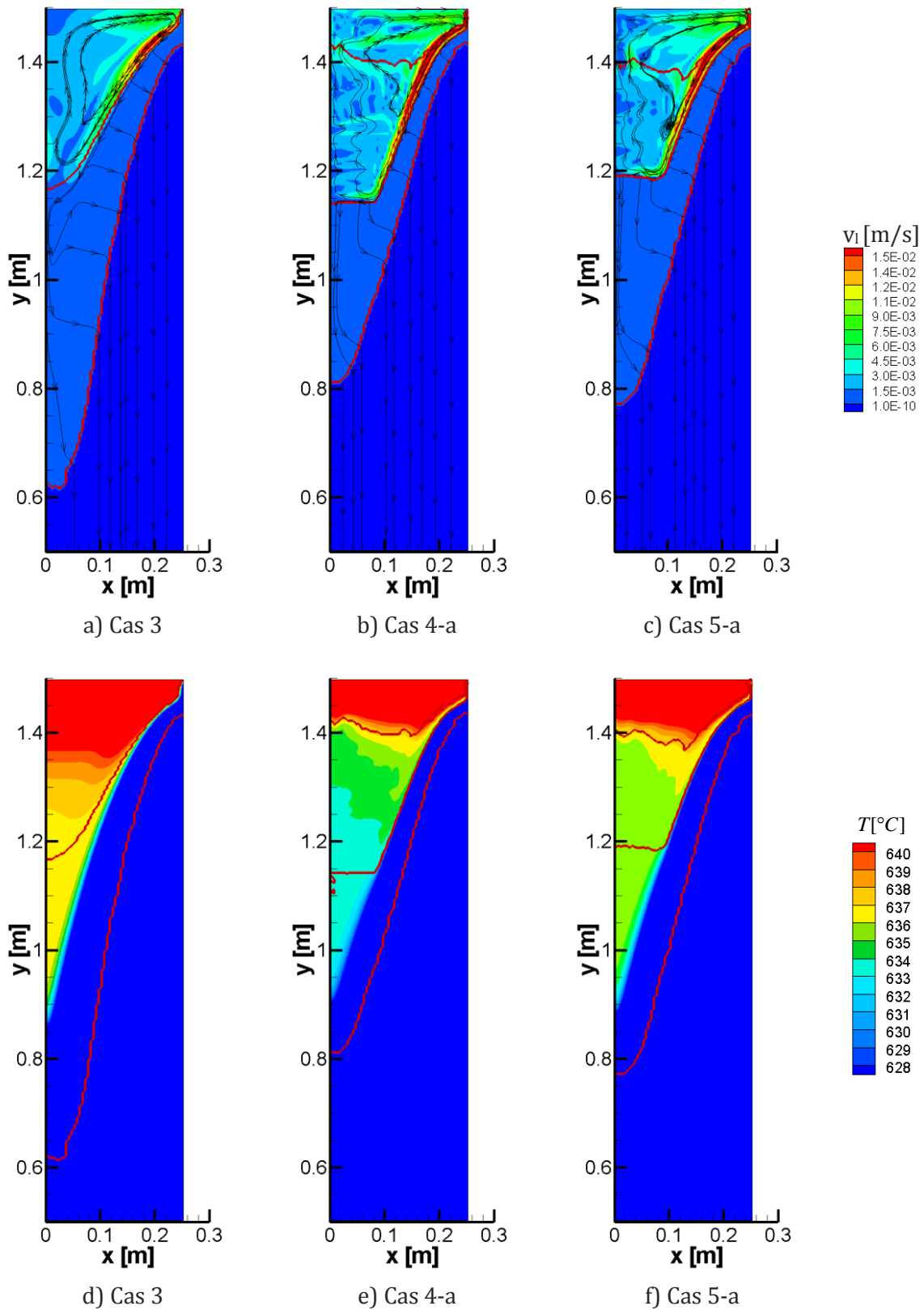


Figure 4- 36 : (a-b-c) Carte et lignes de courant (en noir) de la vitesse intrinsèque du liquide, et (d-e-f) carte de température, pour le Cas 3, le Cas 4-a et le Cas 5-a (liquidus, ligne de blocage des grains et solidus en rouge).

Comme dans l'étude précédente, lorsque la morphologie dendritique des grains est prise en compte, le flux de grains à quitter la zone de germination est plus faible car les grains sont bloqués plus rapidement. La surfusion atteinte dans cette zone est donc plus faible (Figure 4- 37-c) et le taux de germination est réduit (Figure 4- 37-d). La localisation de la zone de germination est très peu modifiée mais moins de grains sont formés. Le flux de grains à quitter la zone de germination étant réduit, on comprend pourquoi l'effet du mouvement des grains sur la formation des macroségrégations est atténué. La distribution en taille des grains reste très uniforme dans le lingot comme dans le Cas 4 (excepté dans la zone de germination près de la paroi où les grains sont plus dendritiques et sont bloqués à de faibles fractions solides) mais la taille moyenne de grains est de l'ordre de 300 $\mu\text{m}$  dans le Cas 5 contre environ 200 $\mu\text{m}$  dans le Cas 4 (Figure 4- 37-a). La microstructure devient donc plus grossière lorsque leur morphologie dendritique est prise en compte avec ce modèle.

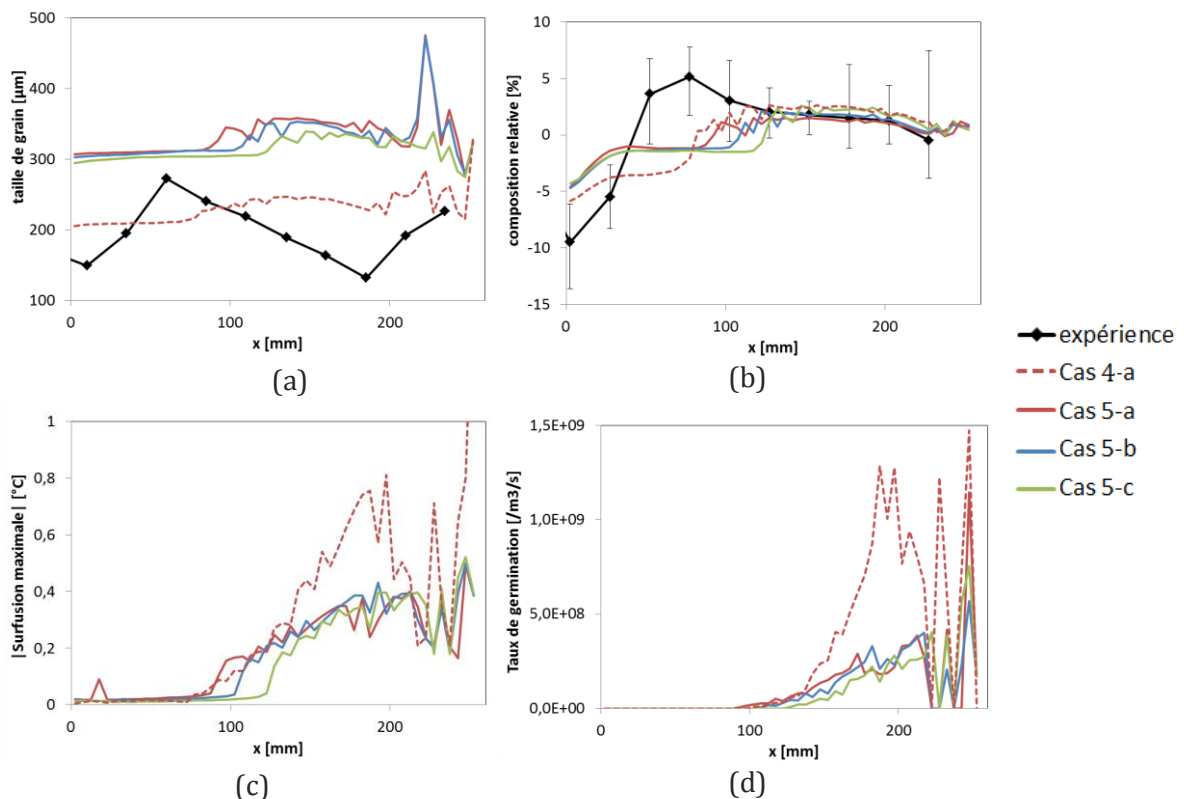


Figure 4- 37 : (a) Profil de diamètre de grain, (b) profil de composition relative en soluté, (c) profil de surfusion maximale (en valeur absolue) et (d) profil de taux de germination, dans le Cas 4 et dans le Cas 5 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains, ainsi que les résultats expérimentaux.

Le transport du solide vers le centre étant atténué, l'effet du mouvement des grains sur la formation des macroségrégations est réduit, comme on peut le voir Figure 4- 38-a et Figure 4- 38-b. Le saut de composition au niveau du plateau de blocage des grains est beaucoup moins important. De plus, le palier de blocage étant situé plus haut, il est plus large donc le plateau de ségrégation négative est plus large également (Figure 4- 37-b). On s'éloigne encore du profil obtenu par l'expérience au centre du lingot, mais l'estimation près de la paroi devient plus proche du profil expérimental.

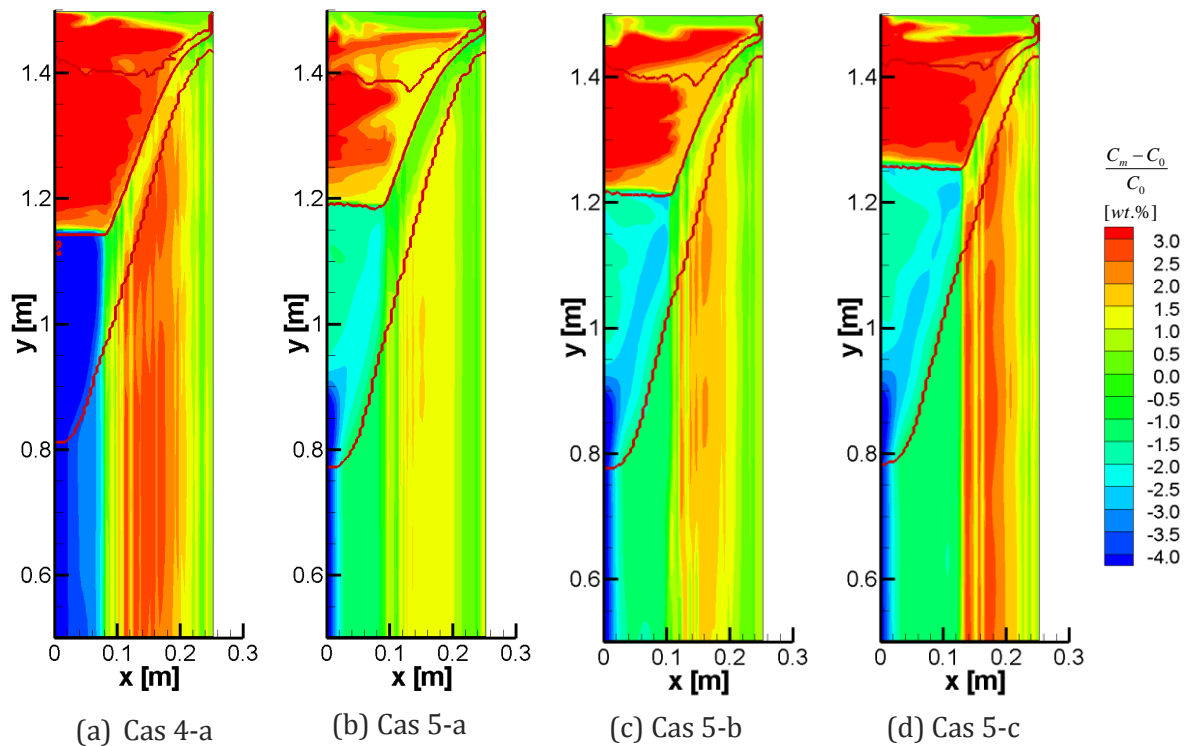


Figure 4- 38 : Carte de composition relative en soluté, liquidus, ligne de blocage des grains et solidus en rouge pour le Cas 4 ( $g^{bloc}=0,3$ ) et le Cas 5 (mouvement de grains dendritiques avec le modèle de pointe hémisphérique) pour  $g^{bloc}=0,3$ ,  $g^{bloc}=0,4$  et  $g^{bloc}=0,5$

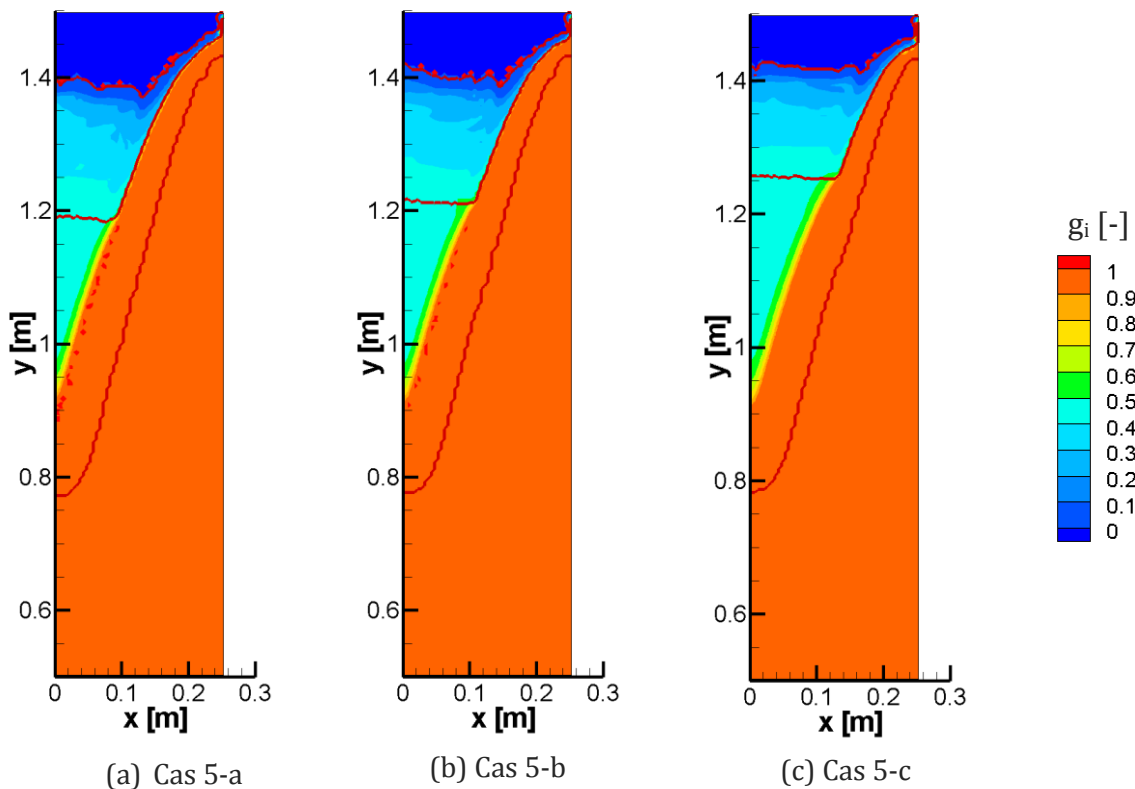


Figure 4- 39 : Carte de la fraction interne, liquidus, ligne de blocage des grains et solidus (en rouge) pour le Cas 5 (mouvement de grains dendritiques avec le modèle de pointe hémisphérique) pour (a)  $g_{envp}=0,3$ , (b)  $g_{envp}=0,4$  et (c)  $g_{envp}=0,5$ .



On peut étudier l'évolution de la morphologie des grains au cours de la solidification à partir des cartes de fraction interne ( $g_i = g_s / g_{env}$ ) données Figure 4- 39 pour trois fractions de blocage des grains. On voit que les grains sont très dendritiques au début de la solidification (c'est-à-dire aux faibles valeurs de  $g_s$ ) puis ils se globularisent au cours de la solidification. Ils restent néanmoins très dendritiques au moment de leur blocage au centre du lingot, comme on peut le voir Figure 4- 40 où on donne le profil de  $g_i$  au moment du blocage des grains. Leur morphologie semble rester plus globulaire près des parois, mais il est à noter qu'il est complexe de déterminer la fraction interne au moment du blocage près des parois, car dans cette zone la fraction interne varie extrêmement rapidement. La fraction interne passe par exemple en  $x=197,5\text{mm}$  de  $g_i=0,23$  (pour  $g_{env}=0,25$ , juste avant le blocage des grains) à  $g_i=0,83$  (pour  $g_{env}=0,57$ , juste après le blocage des grains) en 5mm seulement !

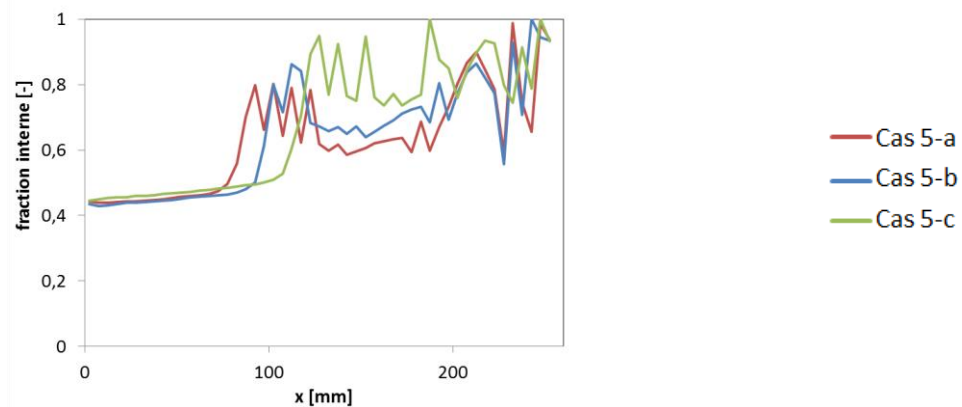


Figure 4- 40 : Profil de fraction interne au moment du blocage des grains dans le Cas 5 pour trois valeurs de la fraction de blocage des grains.

Comme dans le Cas 4, trois fractions de blocage ont été étudiées pour le Cas 5. Cette fois-ci, non seulement le blocage des grains n'arrive pas plus bas dans le lingot mais il remonte même lorsque la fraction de blocage augmente. On peut le voir clairement Figure 4- 34-b.

La morphologie est d'après ce modèle plutôt globulaire près des parois et dendritique au centre du lingot. Or les observations expérimentales ont permis de mettre en évidence des structures globulaires sur toute l'épaisseur du lingot dans le cas affiné (Daloz D. 2002). Le modèle semble donc surestimer la dendritisation des grains dans ce cas. De plus, l'estimation de la ségrégation finale s'éloigne du profil obtenu expérimentalement. La dendritisation des grains équiaxes telle qu'elle est prédite par le modèle de pointe hémisphérique ne permet pas d'expliquer la macroségrégation dans cette plaque.

### 3.6.2. Modèle de pointe parabolique

Lorsque l'on prend en compte la morphologie dendritique des grains avec un modèle de pointe paraboloidale, les résultats sont totalement différents. On compare Figure 4- 41 la carte de ségrégation pour une fraction de blocage fixée à  $g^{loc}=0,3$  pour les trois modèles : le modèle globulaire et le modèle dendritique avec les deux modèles de pointe. On constate que si dans notre étude le modèle de pointe hémisphérique estompe les ségrégations, le modèle

de pointe paraboloidale les amplifie. On peut également voir Figure 4- 42 la carte de fraction interne pour les deux cas dendritiques, ainsi que le zoom de ces cartes dans la zone de germination. On observe que dans le Cas 5, la morphologie est dendritique (surtout au centre) alors que dans le Cas 6, la morphologie est très rapidement globulaire, et ce sur toute l'épaisseur du produit. Le modèle de pointe a donc un effet considérable à la fois sur la morphologie finale des grains et sur la formation des hétérogénéités de composition.

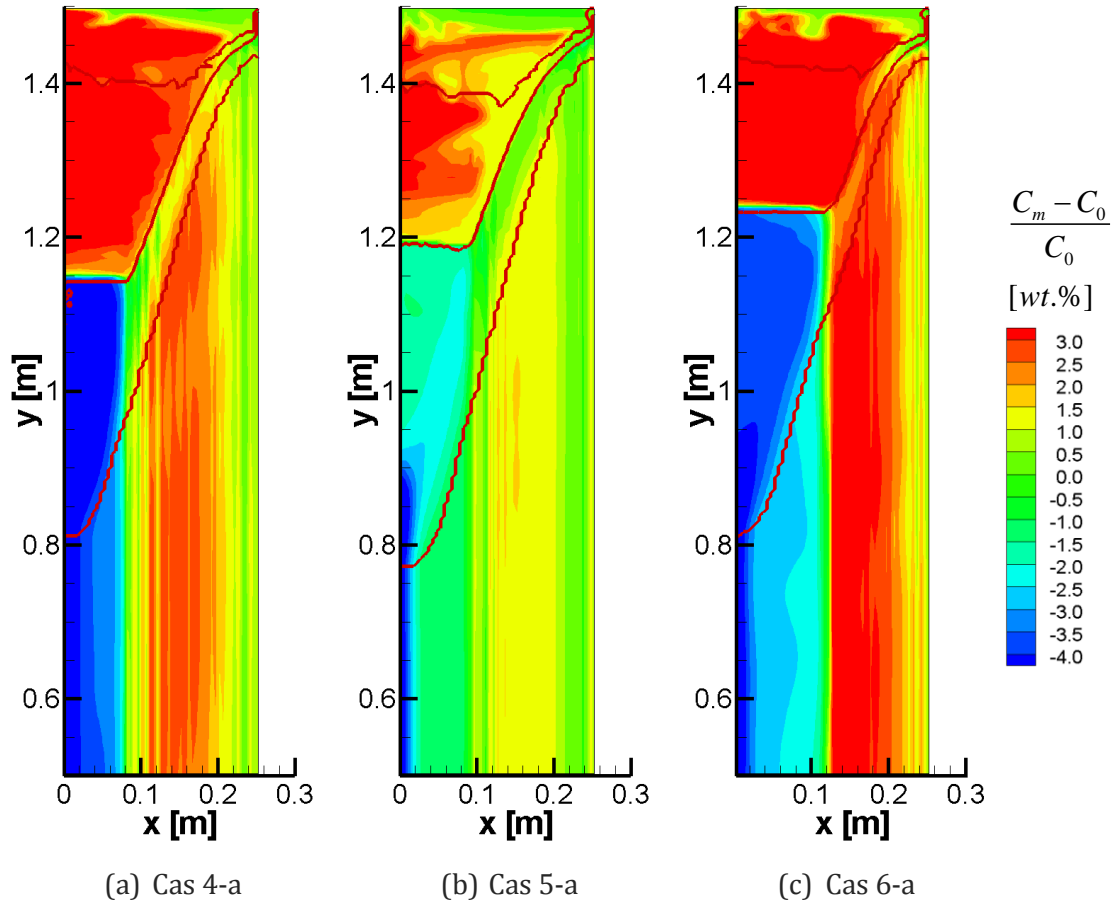


Figure 4- 41 : Carte de composition relative en soluté et position des liquidus et solidus (en rouge) pour (a) Cas 4-a, (b) Cas 5-a et (c) Cas 6-a ( $g^{bloc}=0,3$ ).

Les différences observées entre le Cas 4 et le Cas 6 peuvent avoir deux origines. Dans le modèle dendritique, la géométrie des grains est supposée octaédrique, même lorsque les grains sont globulaires, comme on l'a vu dans le chapitre II. A volume égal, la surface spécifique d'échange entre les phases solide et liquide est alors près de 20% supérieure dans le modèle dendritique, favorisant ainsi la solidification. Mais surtout, dans le Cas 6-a, si les grains sont globulaires au moment du blocage des grains, ils sont dendritiques aux faibles fractions solides. Cela peut globalement changer l'hydrodynamique dans la zone pâteuse mobile.

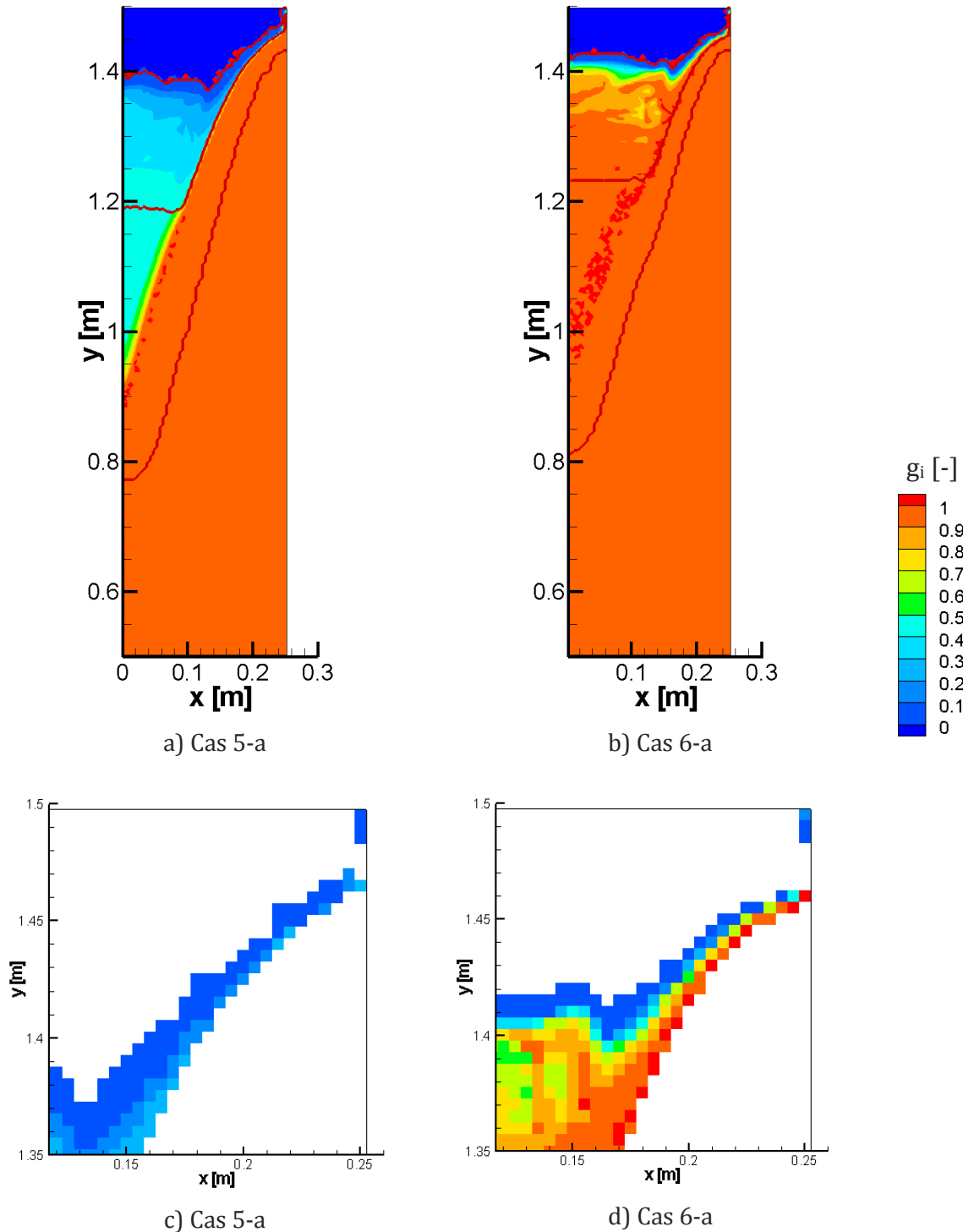


Figure 4- 42 : (a-b) Carte de fraction interne dans le Cas 5-a et le Cas 6-a, ainsi que les isolignes de liquidus, de blocage des grains et de solidus en rouge et (c-d) zoom de ces cartes dans la zone de germination.

Plus précisément, voyons l'impact du modèle de croissance sur la germination, près de la paroi. On a vu que lorsque le modèle de pointe est supposé hémisphérique, la dendritisation est très rapide (Figure 4- 42-c). Les grains sont donc bloqués plus tôt après leur germination, réduisant le flux de grains quittant la zone de germination. C'est pourquoi le taux de germination est beaucoup plus faible que dans le cas globulaire (Figure 4- 37-d).

Les vitesses du solide sont légèrement plus faibles (Figure 4- 43-a et Figure 4- 43-a-b), tandis que les fractions de solide dans la zone mobile sont moins élevées (on le voit près de la paroi Figure 4- 43-d et Figure 4- 43-e). Le transport de la phase solide est donc réduit par rapport au cas globulaire. Cette atténuation du flux de grains à quitter la zone de germination a plusieurs effets : non seulement la taille de grains finale moyenne est plus élevée (Figure 4- 37-a) mais les macroségrégations sont atténuées par rapport au cas globulaire (Figure 4- 37-b).

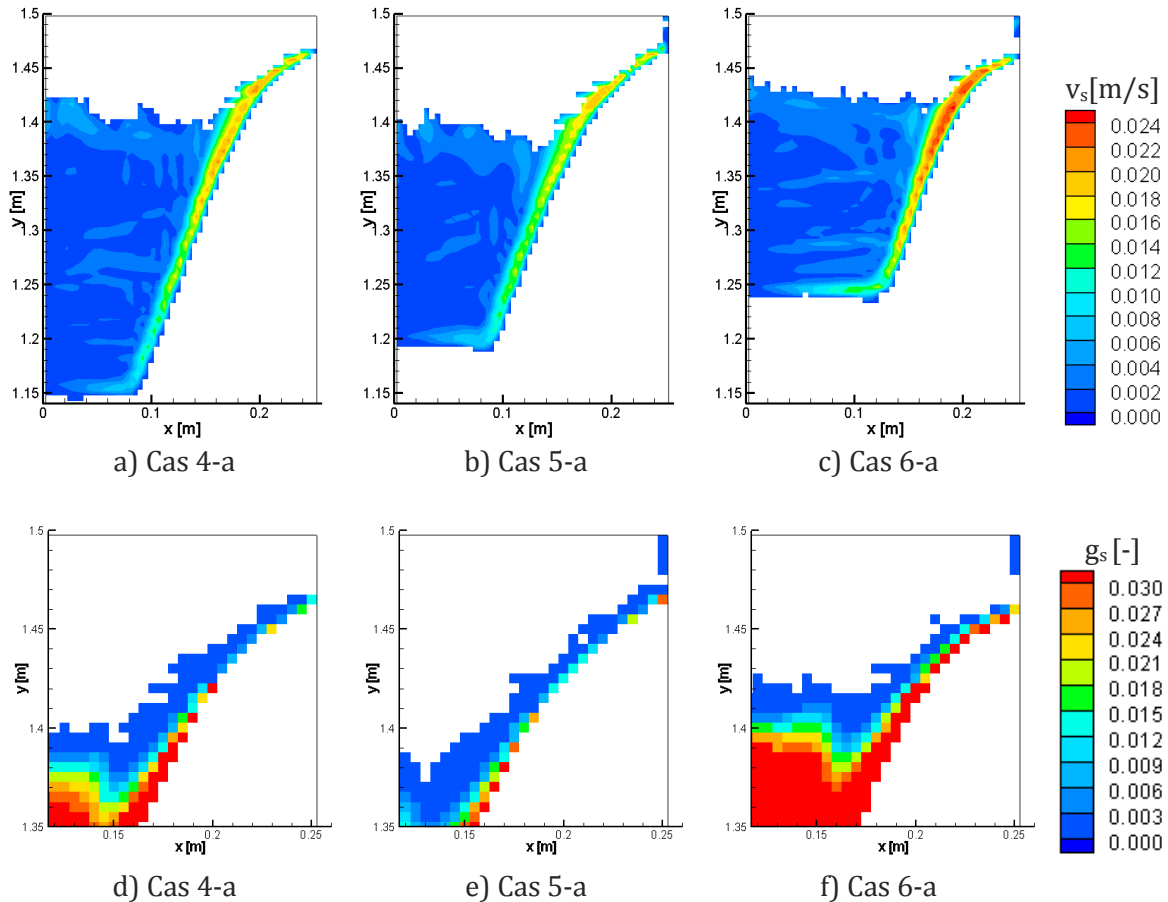


Figure 4- 43 : (a-b-c) Carte de la vitesse intrinsèque du solide, et (d-e-f) carte de fraction solide près de la paroi, pour le Cas 4-a, le Cas 5-a et le Cas 6-a ( $g_{\text{bloc}}=0,3$ ).

Dans le cas du modèle de pointe paraboloidale, la dendritisation est plus faible dans la zone de germination, comme on peut le voir Figure 4- 42-c et Figure 4- 42-d. Ce résultat est cohérent avec l'étude faite au chapitre II : on avait alors montré que ce second modèle favorisait moins la dendritisation. L'effet de la dendritisation sur le flux de grains à quitter la zone de germination est dans ce cas faible : le taux de germination reste du même ordre de grandeur que dans le cas globulaire (Figure 4- 44-d). La taille finale des grains est donc très similaire à celle observée dans le cas globulaire, comme on peut le voir Figure 4- 44-a.

La dendritisation n'est pour autant pas négligeable dans tout le lingot. Dans la zone pâteuse, les grains dendritisent (Figure 4- 42-e), ce qui favorise la croissance de la phase solide (par rapport au modèle globulaire), comme on l'a vu au chapitre II (on le voit près de la paroi Figure 4- 43-d et Figure 4- 43-f). Le blocage des grains intervient alors à une altitude

plus élevée (Figure 4- 34) et la taille des grains augmente plus rapidement dans le marais que dans le cas globulaire. C'est pourquoi les vitesses de la phase solide sont plus élevées (Figure 4- 43). Ainsi, contrairement au modèle de pointe hémisphérique, le modèle de pointe paraboloidale amplifie le phénomène de mouvement des grains !

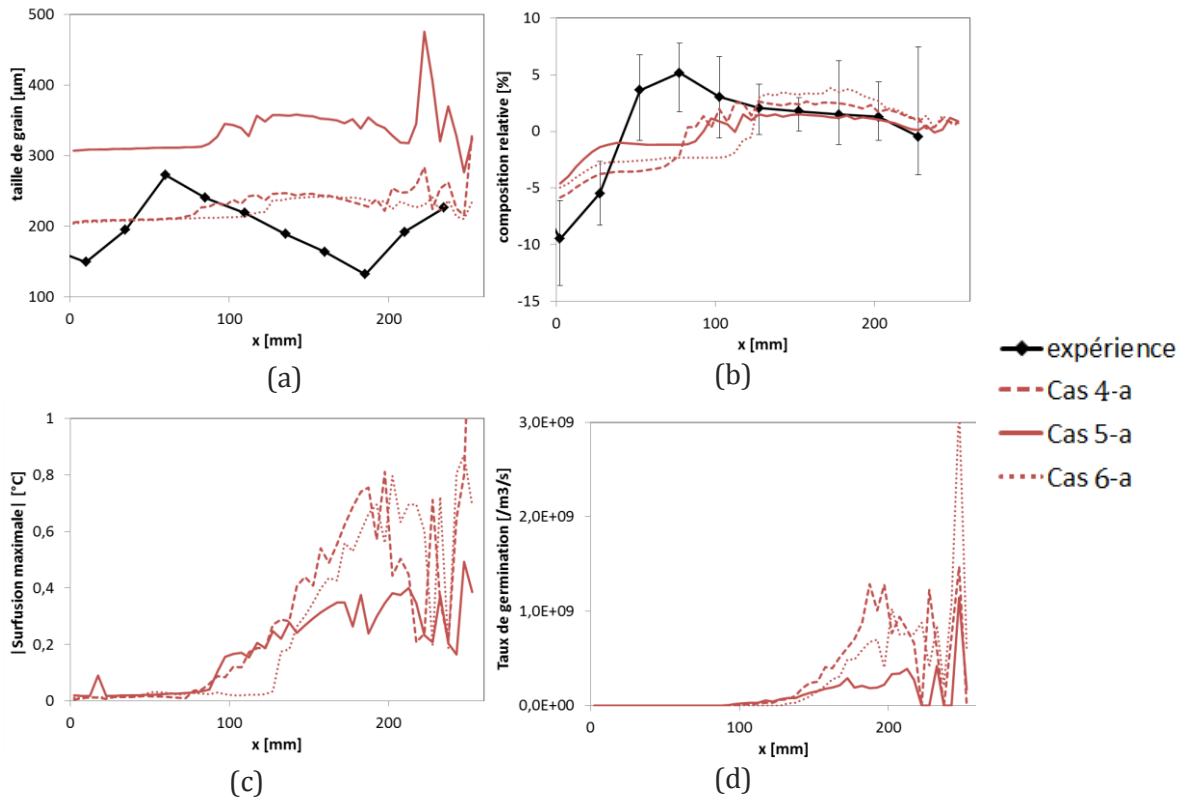


Figure 4- 44 : (a) Profil de diamètre de grain, (b) profil de composition relative en soluté, (c) profil de surfusion maximale (en valeur absolue) et (d) profil de taux de germination, pour le Cas 4-a, le Cas 5-a et le Cas 6-a ( $g^{\text{bloc}}=0,3$ ), ainsi que les résultats expérimentaux.

On constate donc que si la prise en compte de la morphologie des grains avec un modèle de pointe paraboloidale ne modifie pas la prédiction de la morphologie et de la taille des structures dans le lingot, elle peut modifier l'estimation des macroségrégations.

Une étude similaire réalisée pour deux autres fractions de blocage des grains montre que l'impact du modèle de pointe sur les macroségrégations varie avec la fraction de blocage. On donne Figure 4- 45 le profil de ségrégation pour  $g^{\text{bloc}}=0,4$  (Figure 4- 45-a) et  $g^{\text{bloc}}=0,5$  (Figure 4- 45-b). Pour ces deux fractions de blocage, l'écart entre le modèle globulaire (Cas 4) et le modèle dendritique qui prédit une morphologie globulaire (Cas 6) est faible. On voit donc que l'impact de la dendritisation des grains est complexe à analyser car il concerne à la fois la germination et la croissance des grains mais également toute l'hydrodynamique de la zone pâteuse.

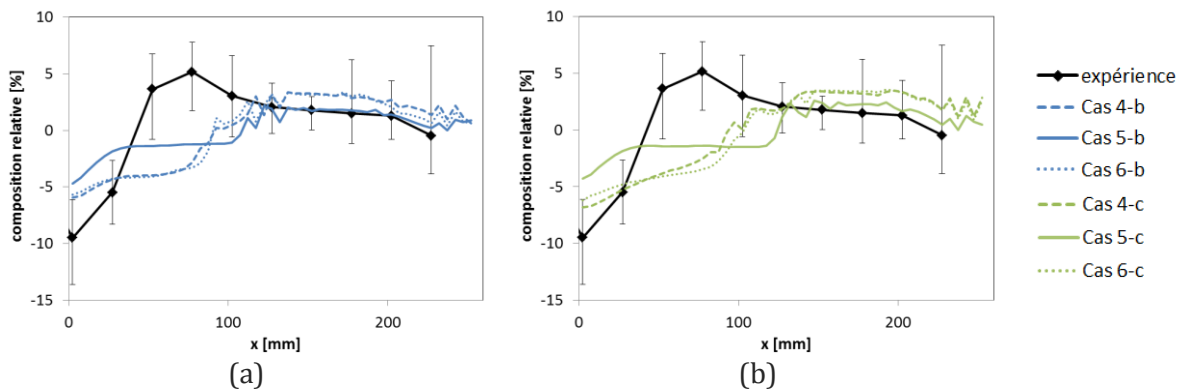


Figure 4- 45 : (a) Profil de composition relative en soluté pour le Cas 4, le Cas 5 et le Cas 6 pour (a)  $g^{bloc}=0,4$  et (b)  $g^{bloc}=0,5$ , ainsi que les résultats expérimentaux.

Ainsi, on constate que pour toutes les hypothèses testées, on ne parvient pas à retrouver le profil de macroségrégation observé expérimentalement. Le mouvement des grains est le phénomène de transport qui a le plus d'impact sur la formation des hétérogénéités de composition dans cette étude. Nous avons donc testé plusieurs fractions de blocage des grains, ainsi que trois modèles de croissance des grains, mais on obtient dans tous les cas un plateau de ségrégation négative au centre qui n'est pas observé dans l'expérience.

De plus, le retrait supposé constant varie en réalité au cours de la solidification, comme on peut le voir Figure 4- 22. On a choisi de prendre sa valeur au liquidus donc il est possible que l'on sous-estime l'appel du liquide vers les fortes fractions solides dans la zone poreuse. Cependant, la prise en compte des autres éléments d'alliage dans l'estimation de la masse volumique de la phase liquide a été testée et n'a pas modifié les résultats. Une estimation du chemin de solidification (par le modèle de Scheil) réalisée avec le logiciel Thermo-Calc pour l'alliage multiconstitué a permis de constater qu'une troisième phase se forme :  $Mg_2Si$ . Si la densité de cette phase est élevée ( $3600\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ ), elle n'apparaît que sous  $550^\circ\text{C}$  où la fraction liquide est inférieure à 0,02 et sa fraction massique reste très faible. La densité de la phase solide varie donc très peu jusqu'en toute fin de solidification.

### 3.6.3. Comparaison de la thermique à l'expérience

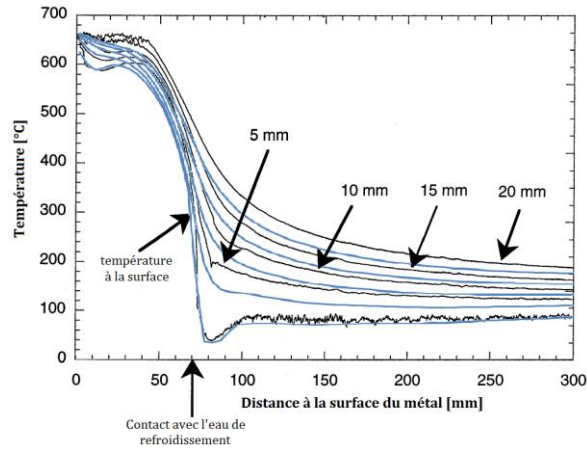
Des profils verticaux de température ont été obtenus par l'expérience le long de la paroi ainsi qu'à 5 10 15 et 20 mm de la paroi (Drezet J.M. 2000). On compare ces profils à ceux obtenus par le modèle pour différentes hypothèses de calcul Figure 4- 46. Dans les calculs, les mailles étant de 5mm de côté, la température est estimée à 2,5 mm de la paroi, puis 7,5 mm 12,5 mm... Afin de comparer les profils à ceux obtenus par la mesure, on suppose donc que la température évolue linéairement entre deux mailles pour obtenir les profils de température à 5 mm 10 mm 15 mm et 20 mm de la paroi. L'estimation de la température à la paroi est obtenue à partir de la température dans la première maille  $T_{2,5\text{mm}}$  par la relation suivante :

$$T_{paroi}(y) = T_{2,5mm}(y) - \frac{\Delta x}{2\lambda} \varphi(y) \quad (4.4)$$

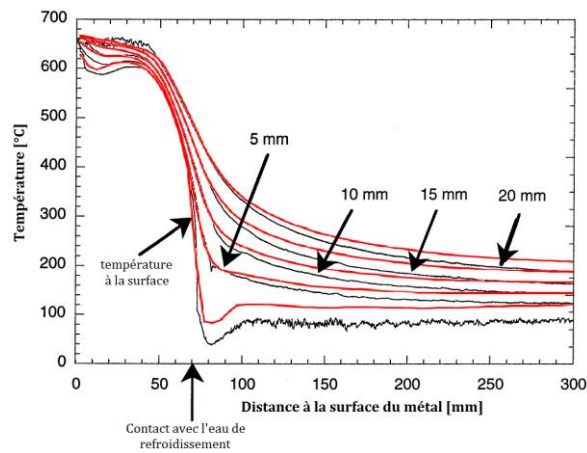
Avec  $\Delta x$  la largeur de la maille et  $\varphi(y)$  le flux d'extraction de chaleur latéral fonction de l'altitude. On peut constater que l'estimation de la température dans le modèle dépend de la physique prise en compte, pour une même extraction de chaleur.

Dans le cas (a) de la Figure 4- 46, le métal est simplement advecté, ce qui correspond à l'hypothèse utilisée dans (Drezet J.M. 2000) pour déterminer le flux d'extraction de chaleur à partir de la température. On devrait donc retrouver exactement les mêmes profils. Les différences observées signifient que les propriétés thermodynamiques que nous utilisons (tirées de (Jalanti T. 2000)) sont différentes de celles utilisées pour la détermination du flux dans (Drezet J.M. 2000). Si la conductivité thermique est semblable d'après les deux sources, la capacité thermique utilisée dans (Drezet J.M. 2000) n'est pas précisée. On constate donc que même en utilisant les mêmes hypothèses de calculs, le choix des propriétés thermodynamiques modifie de façon notable la thermique dans le métal et donc la solidification. Lorsque le transport de la phase liquide est pris en compte (Figure 4- 46-b), puis lorsque le mouvement des grains est ajouté (Figure 4- 46-c), la thermique est modifiée : le transport tend à homogénéiser la température donc le refroidissement près de la paroi est ralenti. On constate que si l'estimation de la température au niveau du refroidissement primaire est proche des mesures expérimentales, le refroidissement semble ensuite sous-estimé. Ces différences peuvent impacter la thermique au centre du lingot, où le métal n'est pas totalement solidifié à cette altitude, et donc modifier la solidification dans cette zone.

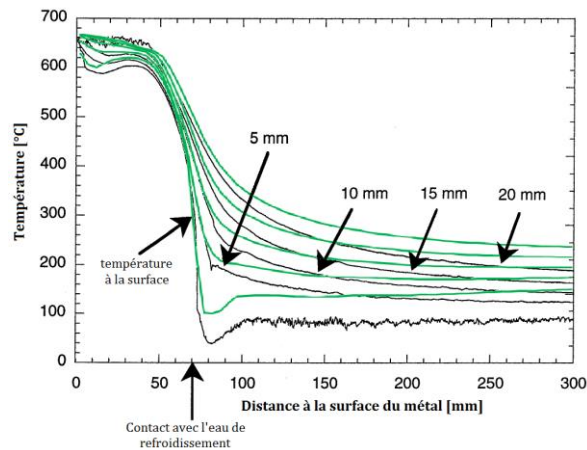
Des mesures expérimentales de la température ont également été effectuées dans (Buchholz A. 2000) dans la largeur de la plaque à mi-épaisseur. La comparaison de ce champ thermique mesuré dans la largeur du lingot (dans (Buchholz A. 2000)) à celui obtenu par le calcul dans l'épaisseur du lingot est donnée Figure 4- 47, pour le calcul sans mouvement des grains et avec. La température n'est pas donnée depuis la surface du métal dans le profil expérimental donc les deux cartes sont décalées afin de comparer la température à la même distance de la surface du métal. Malgré une injection du liquide très simplifiée (sur toute l'épaisseur, à température uniforme), on retrouve la tendance observée expérimentalement lorsque le mouvement des grains est pris en compte : le gradient de température est approximativement vertical, fort près de la surface supérieure du lingot puis presque nul dans la zone pâteuse (Figure 4- 47). La température dans le marais est alors très homogène, et comprise entre 630°C et 635°C. Il est toutefois difficile de comparer la position du marais estimée expérimentalement à une iso-fraction solide dans le calcul.



(a) Advection pure



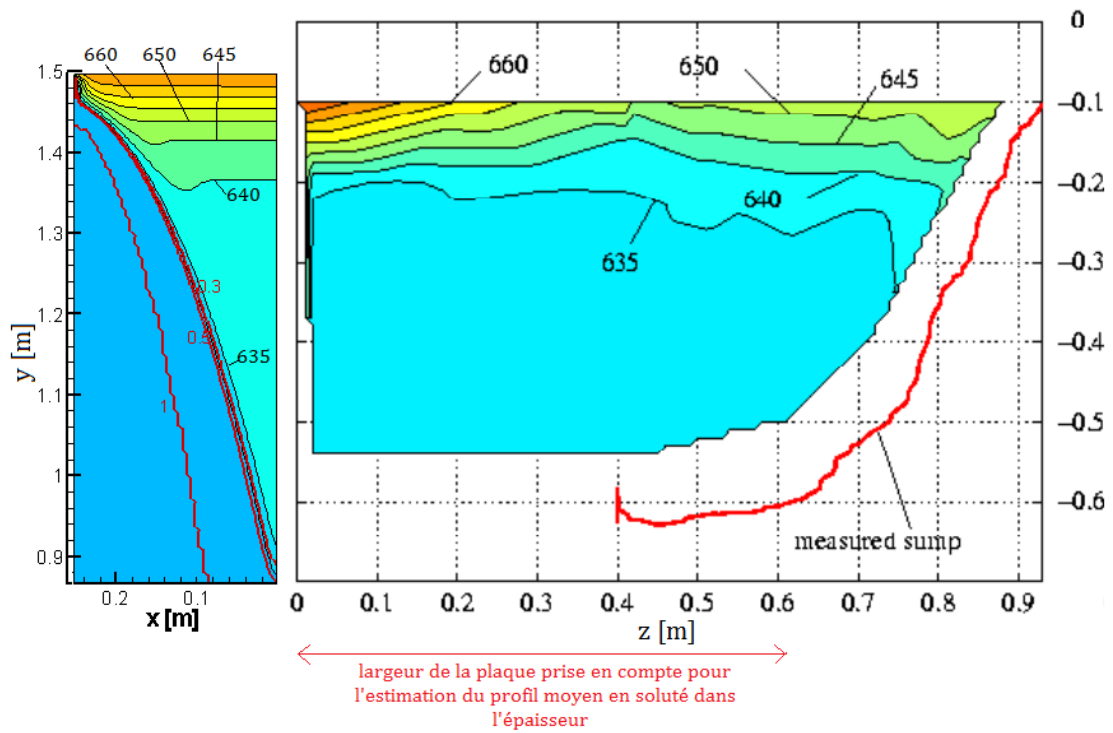
(b) mouvement du liquide (Cas 3)



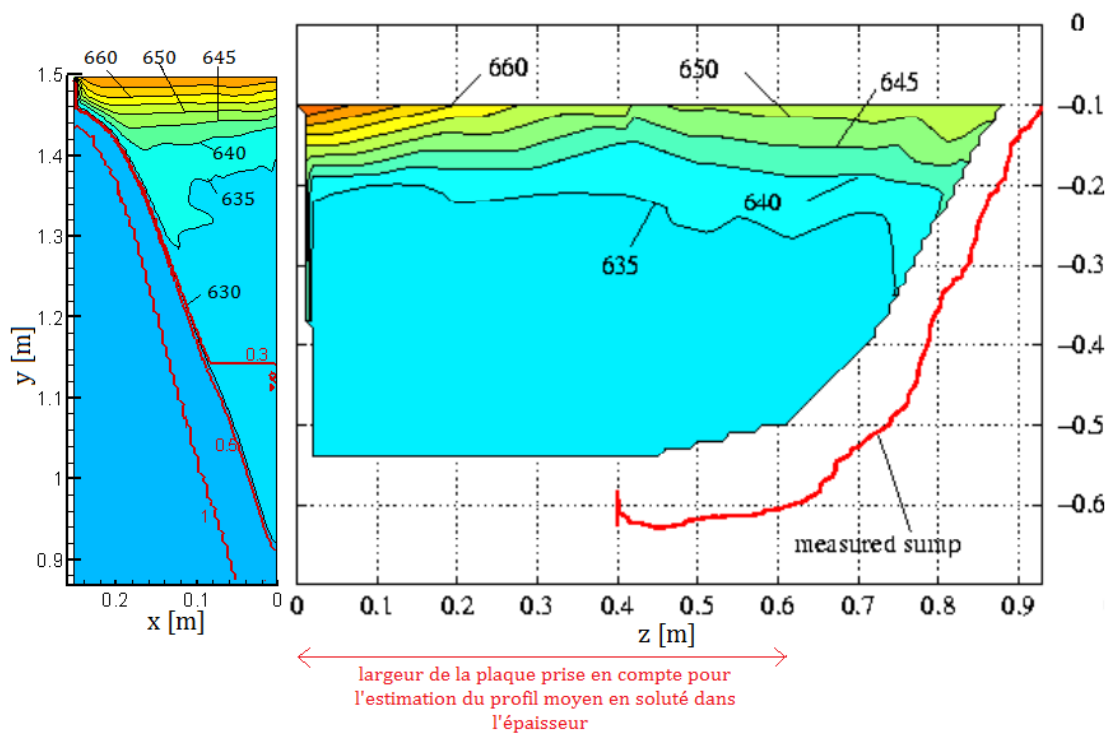
(c) mouvement du liquide et du solide (Cas 4-a)

Figure 4- 46 : profils verticaux de température le long de la paroi et à 5, 10, 15 et 20mm de la paroi, obtenus par l'expérience (Drezet J.M. 2000) et par le modèle pour trois hypothèses de calcul (a) advection pure, (b) convection naturelle et retrait et (c) convection naturelle, retrait et mouvement des grains.





(a) Cas 3



(b) Cas 4-a

Figure 4- 47 : Comparaison de la carte de température dans le marais, obtenue par l'expérience dans la largeur de la plaque (à droite) (tiré de (Buchholz A. 2000)) et par le modèle dans l'épaisseur de la plaque (à gauche), (a) sans mouvement des grains (Cas 3) et (b) avec mouvement des grains (Cas 4-

a). Les isothermes sont données tous les 5°C. La position du marais déterminée expérimentalement est donnée en rouge sur le profil expérimental et les iso-fractions solide 0,3 0,5 et 1 sont données dans en rouge sur le profil modélisé.

Ces deux comparaisons aux résultats expérimentaux montrent que l'estimation de la température est relativement bonne, mais il est possible que l'extraction de chaleur par l'eau de ruissèlement soit sous-estimée dans le bas du lingot dans le modèle. Il serait intéressant pour aller plus loin d'effectuer la même étude mais avec une thermique déterminée par le modèle de Weckman et Niessen (Weckman D.C. 1982). De plus, avec ce modèle, l'extraction de chaleur dépend de la température de paroi. Il est donc impossible d'atteindre des températures négatives et le domaine d'étude pourrait être allongé.

### 3.7. Alliage non affiné

Notre modèle de germination est adapté au cas des coulées affinées. La loi de germination est directement obtenue à partir de la loi de distribution en taille des particules affinantes. La question de la modélisation des coulées non affinées se pose donc. Sachant que la taille finale moyenne des grains est deux fois plus élevée dans l'expérience lorsque l'alliage n'est pas affiné (Figure 4- 48) (ce qui signifie que la densité moyenne de grains est environ 8 fois plus faible), on propose d'adapter la loi de germination en considérant 8 fois moins de germes dans chaque classe (Figure 4- 25-a). D'après les résultats expérimentaux, la ségrégation est atténuée lorsque le métal n'est pas affiné, comme on peut le voir Figure 4- 48-c. De plus, la morphologie, globulaire dans le cas affiné, devient dendritique près des parois dans le cas non affiné (Daloz D. 2002).

On compare Figure 4- 48 les profils de ségrégations et de taille de grain obtenus par l'expérience avec et sans affinant et par le modèle pour les deux lois de germination. Les deux modèles de pointe sont testés : le modèle de pointe hémisphérique (Cas 5) à gauche et le modèle de pointe paraboloidale (Cas 6) à droite. On constate qu'une fois encore, le modèle de pointe hémisphérique amène à une surestimation de taille de grains, mais l'estimation des ségrégations est du même ordre de grandeur que dans le profil expérimental. Au contraire, le modèle de pointe paraboloidale permet de prédire correctement la taille moyenne finale des grains mais la ségrégation est surestimée.

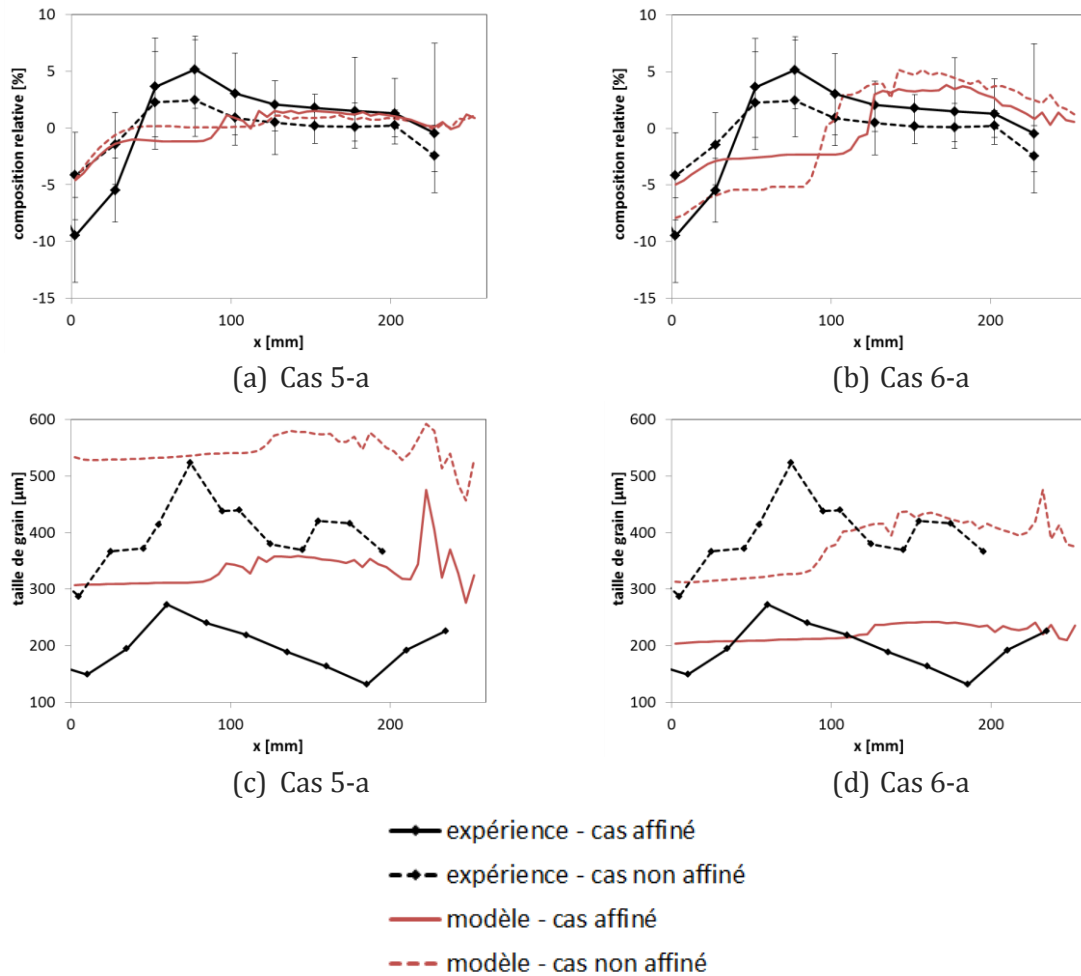


Figure 4- 48 : (a et b) Profil de composition relative en soluté et (c et d) profil de diamètre de grain, (a et c) pour le modèle de pointe hémisphérique (Cas 5-a) et (b et d) pour le modèle de pointe paraboloidale (Cas 6-a), ainsi que les résultats expérimentaux dans les cas affiné et non affiné.

Lorsqu'on diminue la densité de germes pour simuler l'absence d'affinage avec le modèle de pointe hémisphérique, la morphologie des grains devient plus dendritique dans la zone pâteuse (Figure 4- 52) et au moment du blocage des grains (Figure 4- 49-e). La compétition entre germination et croissance dans la zone de germination est modifiée. Moins de grains sont formés (Figure 4- 49-c) que dans le cas affiné et ils dendritisent plus rapidement. Le flux de grains à quitter la zone de germination est donc plus faible. De plus, la dendritisation des premiers grains formés favorise leur croissance, donc si la taille des grains est plus élevée dans la zone de germination, la fraction solide est peu modifiée par rapport au cas affiné. C'est pourquoi le profil de surfusion maximale n'est que peu modifié par la diminution de la densité de germes (Figure 4- 49-a). De plus, si le rayon équivalent de la phase solide est plus grand dans le cas non affiné, le rayon d'enveloppe est environ deux fois supérieur (Figure 4- 50-a et Figure 4- 50-c) ; la force de trainée est donc plus importante mais la force d'Archimède est également plus élevée, et on observe que la vitesse de sédimentation des grains est peu modifiée (Figure 4- 51-a et Figure 4- 51-c). On donne en effet Figure 4- 50 la longueur de bras primaire des dendrites en couleurs et le rayon équivalent de la phase solide par les isolignes pour les deux modèles de pointe, pour le cas affiné et le cas non affiné.

De plus, la forte dendritisation des grains induit une remontée de l'isoligne de blocage des grains, donc l'impact du mouvement des grains sur l'écoulement dans la zone pâteuse est légèrement réduit. Le profil de ségrégation est alors plus plat (Figure 4- 48-a). De plus, la germination étant réduite, la taille de grains finale moyenne est presque doublée (Figure 4- 48-c).

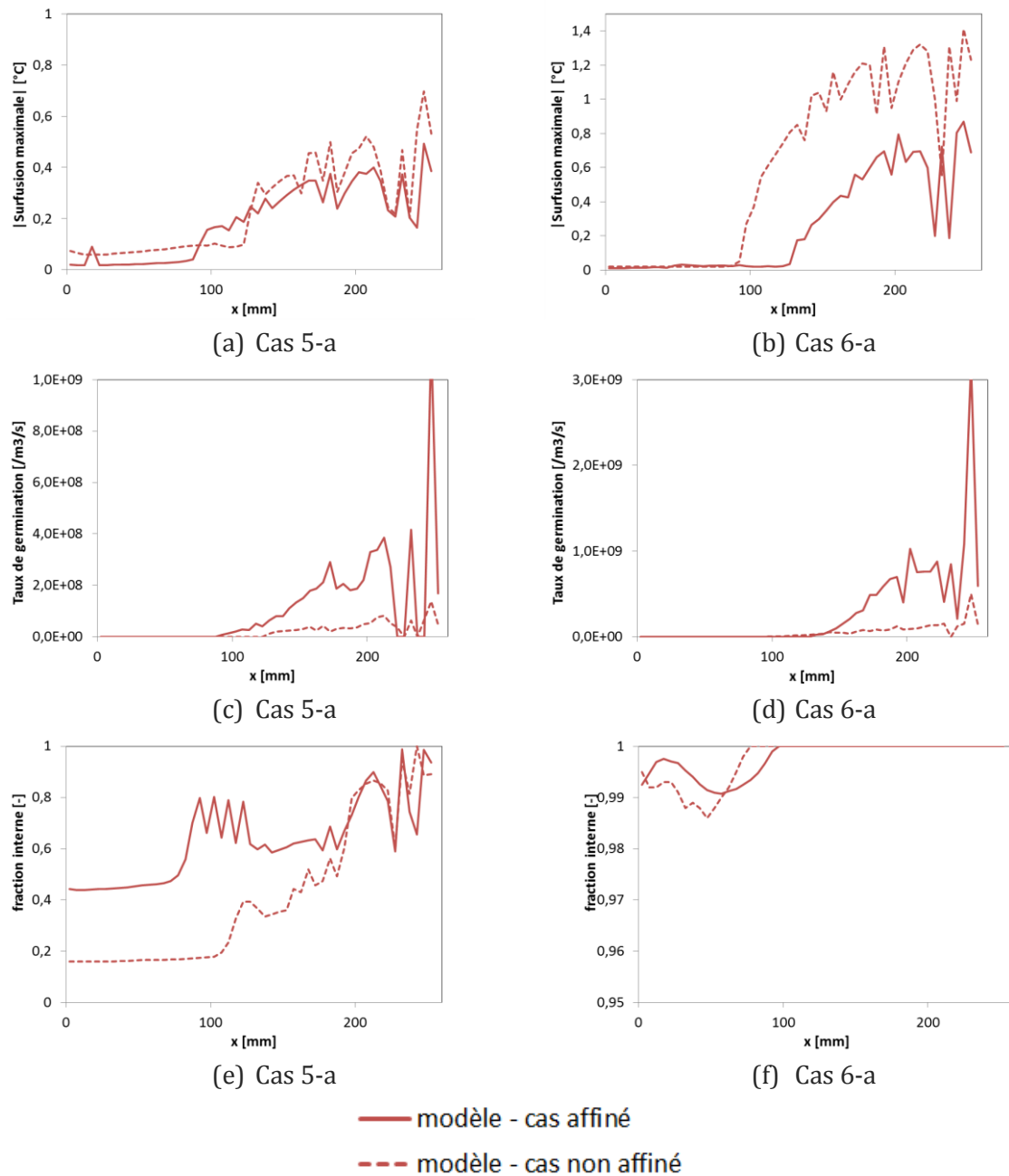


Figure 4- 49 : (a et b) Profil de surfusion maximale, (c et d) profil de taux de germination et (e et f) profil de fraction interne au moment du blocage des grains, dans le Cas 5-a (a, c et d) et le Cas 6-a (b, d et f) pour les cas affiné et non affiné (données Figure 4- 25).

Avec le modèle de pointe paraboloidale, réduire la densité de germes a un impact différent. Même si les grains sont plus dendritiques dans la zone de germination, ils globularisent avant d'être bloqués (Figure 4- 49-f) donc la dendritisation ne prévient pas le

départ des grains de la zone de germination comme le prédit le modèle hémisphérique. La surfusion atteinte dans la zone de germination augmente fortement en absence d'affinage, en comparaison avec le cas affiné (Figure 4- 49-b). Néanmoins, même avec l'augmentation du taux de germination ainsi induite, celui-ci reste toujours bien plus faible que dans le cas affiné (Figure 4- 49-d). La tendance est donc celle attendue pour ce deuxième modèle de pointe également : la réduction de l'affinage a pour effet d'augmenter la taille finale des grains (Figure 4- 48-d).

La réduction de l'affinage a cependant l'effet contraire sur l'hydrodynamique de la zone pâteuse par rapport au modèle de pointe hémisphérique. Si la taille des grains devient plus élevée que dans le cas affiné, leur dendritisation n'est pas suffisante pour induire une augmentation importante de la trainée. Autrement dit, la taille des enveloppes augmente dans une moindre proportion que le rayon équivalent de la phase solide (Figure 4- 50-b et Figure 4- 50-d). La vitesse de sédimentation des grains augmente alors par rapport au cas affiné, comme on peut le voir Figure 4- 51-b et Figure 4- 51-d. Les macroségrégations sont donc amplifiées, comme on le voit Figure 4- 48-b.

Si la morphologie des grains est plus dendritique dans la zone pâteuse dans le cas non affiné, elle reste très globulaire au moment du blocage des grains. On ne retrouve donc pas la morphologie dendritique observée expérimentalement dans le cas non affiné.

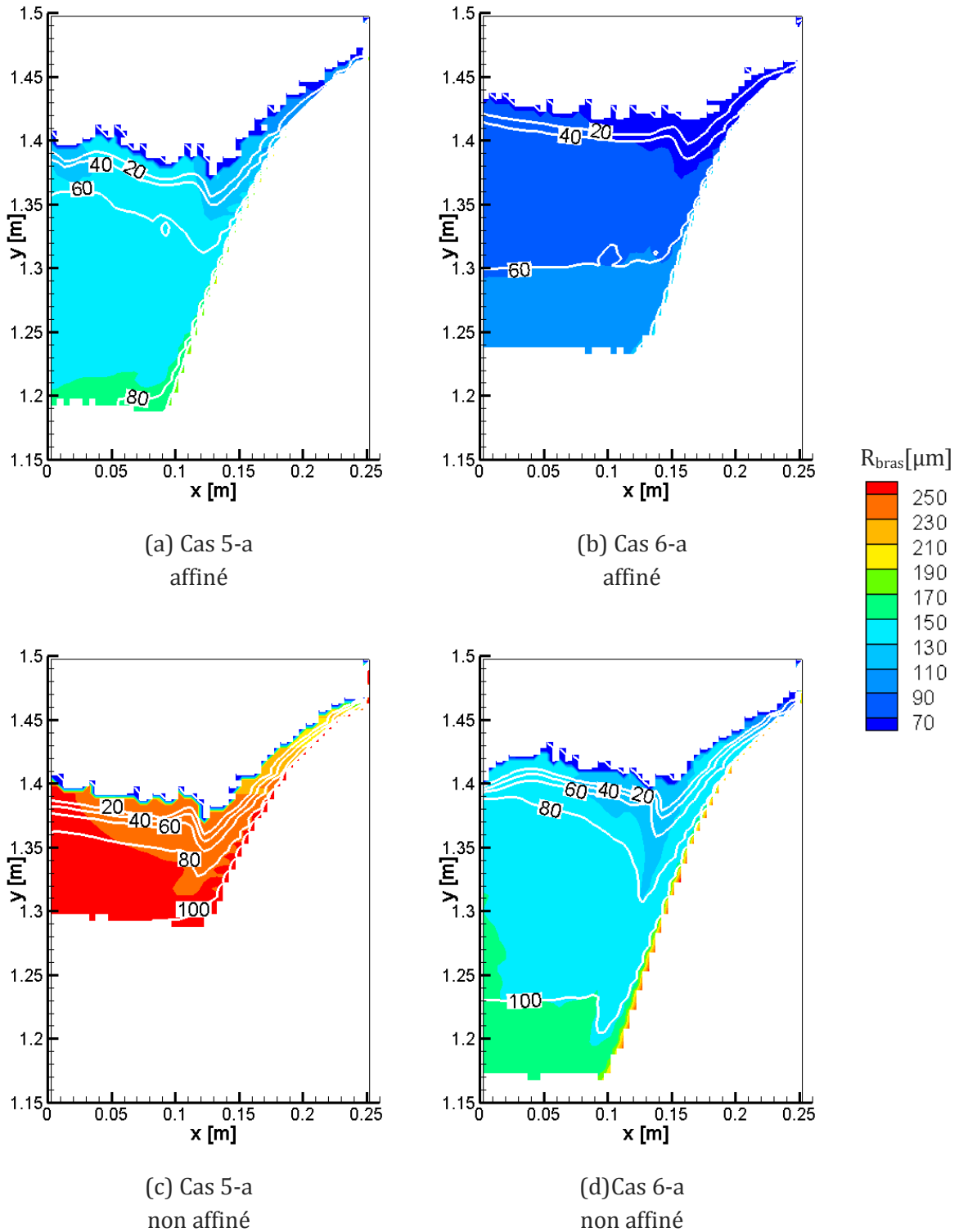


Figure 4- 50 : Carte de longueur de bras primaire de dendrite et isolignes de rayon de la phase solide en micromètres (a-b) pour le cas affiné et (c-d) pour le cas non affiné, pour le modèle de pointe hémisphérique (Cas 5) et le modèle de pointe paraboloidale (Cas 6) dans la zone de mouvement des grains.

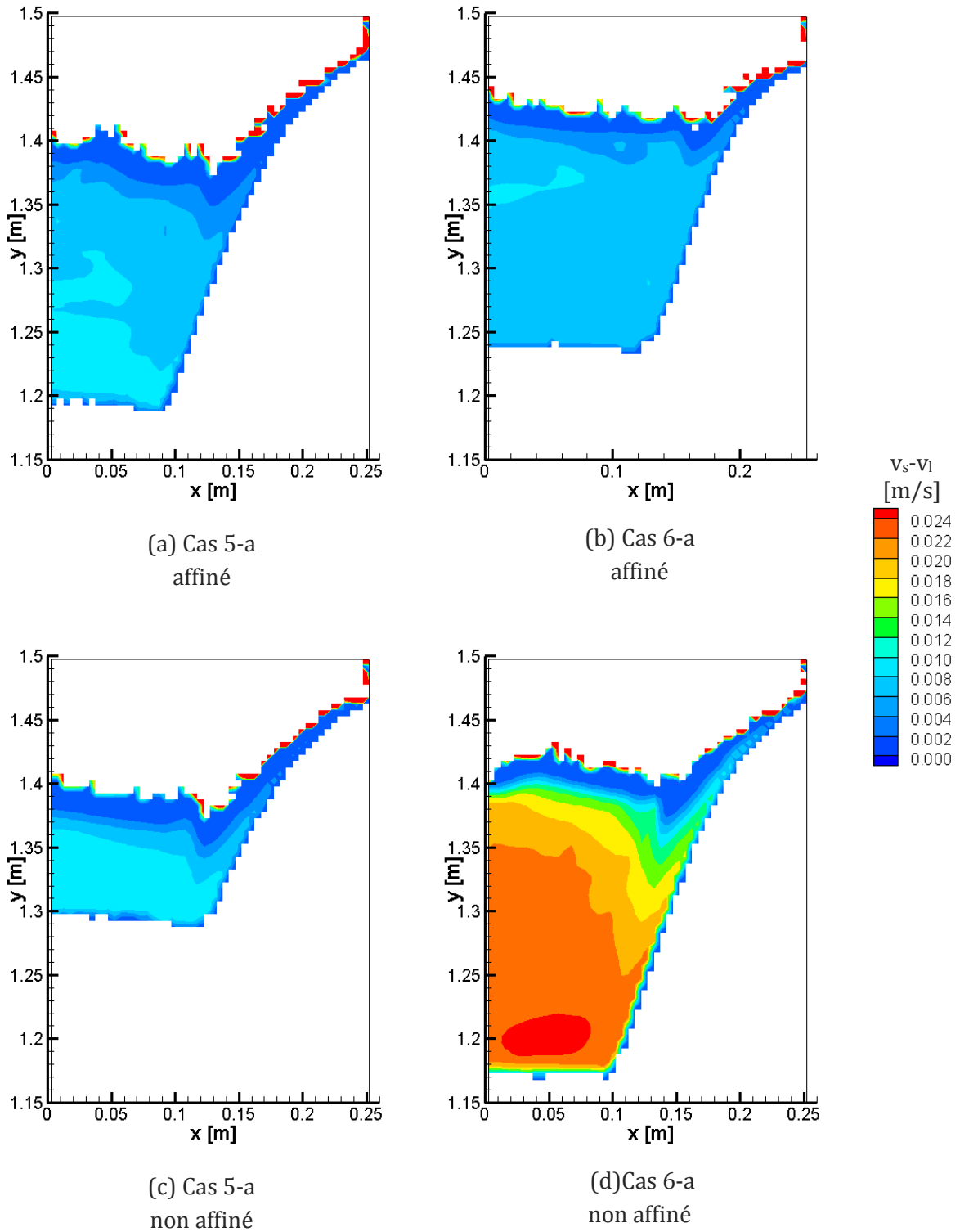


Figure 4- 51 : Carte vitesses de sédimentation de la phase solide (a-b) pour le cas affiné et (c-d) pour le cas non affiné, pour le modèle de pointe hémisphérique (Cas 5) et le modèle de pointe paraboloidale (Cas 6) dans la zone de mouvement des grains.

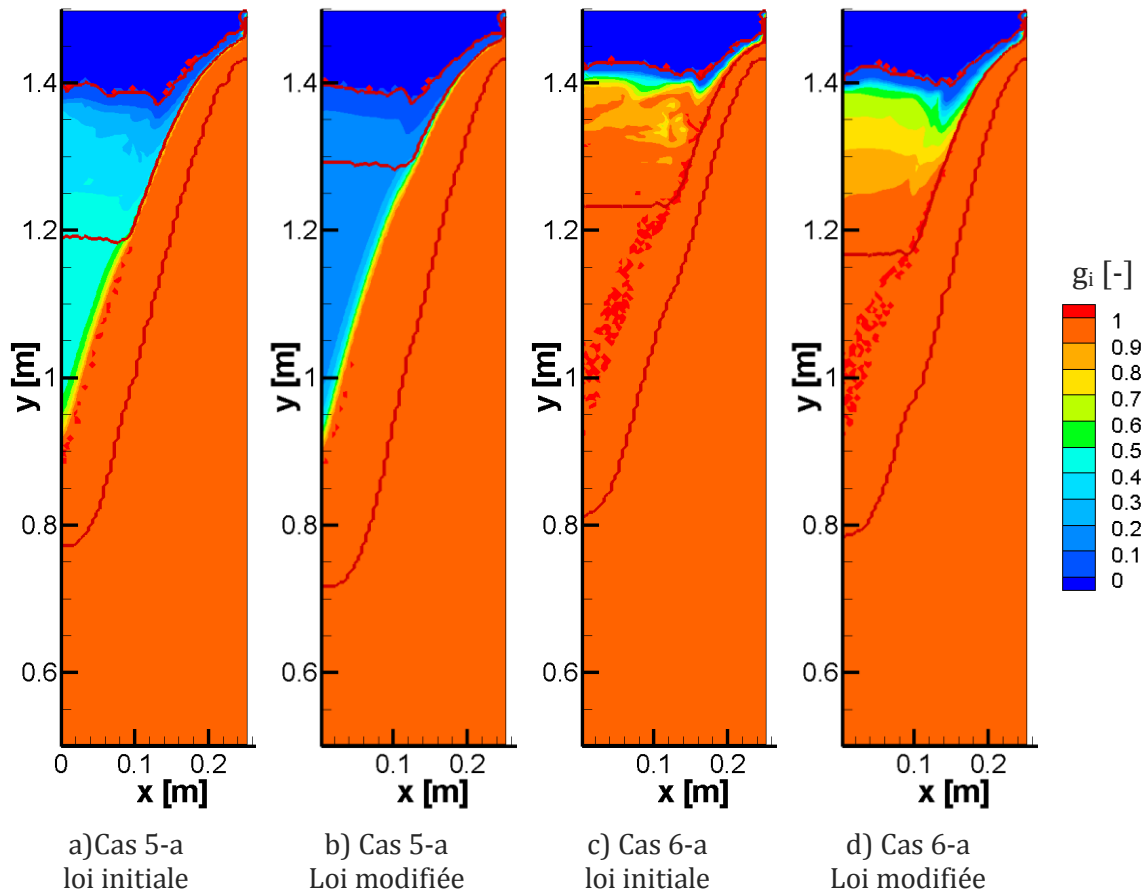


Figure 4- 52 : Carte de fraction interne dans le Cas 5-a (a et b) et le Cas 6-a (c et d), ainsi que les isolignes de liquidus, de blocage des grains et de solidus en rouge pour la loi de germination initiale (a et c) et pour la loi 8 fois plus faible (b et d).

La comparaison aux résultats expérimentaux permet de mettre en évidence les points forts de chaque modèle. La compétition entre germination et croissance en présence de transport des grains et des germes semble être bien prise en compte par le modèle de pointe paraboloidale : la taille finale moyenne des grains est bien estimée. L'écoulement dans la zone pâteuse semble par contre surestimé. Le modèle de pointe hémisphérique, s'il surestime la dendritisation des grains et prédit une taille de grains trop élevée, permet d'atténuer l'effet du transport des grains sur la macroségrégation. Le degré de ségrégation est mieux estimé avec ce second modèle.

#### 4. Conclusion

Malgré des différences notables entre les résultats obtenus par le modèle et par l'expérience dans cette étude EMPACT, celle-ci a permis de mettre en évidence plusieurs résultats importants :

- La prise en compte du mouvement des grains est indispensable pour estimer correctement la taille finale des structures. En prenant en compte une loi de



germination adaptée au type et au taux d'affinant utilisé et le mouvement des grains, on parvient à retrouver la taille finale moyenne des grains dans le lingot.

- Le choix de la fraction de blocage des grains dans une gamme pertinente (0,3-0,5) modifie peu l'estimation des profils de taille de grains et de composition. Le critère pour le blocage des grains n'est donc pas un paramètre primordial dans notre étude.
- Le modèle dendritique avec pointe hémisphérique ne semble pas adapté pour modéliser des morphologies peu dendritiques. Il surestime la dendritisation des grains. Il permet cependant dans le cas non affiné, de prédire un profil de ségrégation proche du profil expérimental.
- Le modèle dendritique avec pointe paraboloidale permet de retrouver la morphologie globulaire en fin de solidification, mais la prise en compte de la dendritisation des grains au cours de la solidification modifie de façon importante l'estimation des macroségrégations. Il est donc important de prendre en compte l'évolution morphologique des grains au cours de la solidification même lorsque leur morphologie finale est globulaire.



# Conclusions et perspectives

## 1. Résumé et conclusions

Ce travail a porté sur l'étude de la formation des hétérogénéités de composition et de taille de structures au cours de la solidification des alliages d'aluminium, par le procédé de coulée semi-continue, notée CCV. Il s'est appuyé sur un code de calcul développé depuis les années 1990 au sein de l'équipe 302 de l'Institut Jean Lamour, qui modélise l'étape de solidification des alliages. Nous avons donc cherché à améliorer ce modèle afin d'avancer dans la compréhension des mécanismes à l'origine de ces hétérogénéités.

Ces hétérogénéités apparaissent d'abord à l'échelle microscopique. Lors de la croissance d'un grain, la diffusion solutale limitée induit une surfusion. Or la surfusion devant le grain est le paramètre clé pour la germination de nouveaux grains. La compétition entre ces deux phénomènes de germination et de croissance à l'échelle microscopique impacte donc localement la microstructure. De plus, la diffusion solutale limitée ajoutée à une différence de solubilité des éléments d'alliage dans les phase solide et liquide mène à une ségrégation solutale à l'échelle du grain. Malgré l'importance fondamentale de ce couplage dans la formation des hétérogénéités, la germination et la cinétique de croissance sont généralement prises en compte de façon très simplifiée dans les modèles macroscopiques de solidification.

Nous avons donc travaillé sur la modélisation du couplage germination-croissance. Nous avons tout d'abord cherché à estimer plus précisément le profil en soluté devant le grain, qui impacte directement la croissance du grain et la surfusion. Pour cela, nous avons déterminé une nouvelle expression pour la longueur de diffusion solutale dans le liquide entourant le grain, qui prend en compte à la fois la croissance du grain et la convection de la phase liquide. Une application de notre modèle à un cas de coulée fixe a d'ailleurs permis de mettre en évidence l'impact de la cinétique de croissance sur la macroségrégation. Toujours dans le but d'améliorer la modélisation du couplage germination-croissance, nous avons amélioré le modèle de croissance globulaire utilisé jusqu'ici afin de décrire les transitions morphologiques globulaire-dendritique. Le modèle de croissance dendritique dissocie le liquide extragranulaire (donc extérieur à l'enveloppe des grains) du liquide intragranulaire (donc présent entre les bras primaires et secondaires des grains). Ceci doit permettre d'estimer de façon plus précise la croissance des grains mais également la surfusion dans le liquide extragranulaire. Ce modèle a été testé à l'échelle microscopique et comparé à des résultats expérimentaux pour un système de faible dimension. On a montré qu'il donnait une meilleure estimation de la température et donc de la cinétique de croissance que le modèle globulaire initial. Les résultats ont montré une sensibilité importante au modèle de pointe choisi, et les deux modèles testés semblent plus ou moins adaptés selon les conditions de solidification.

Une fois le modèle de cinétique de croissance amélioré, nous l'avons couplé au modèle de germination (supposée hétérogène et athermique) et nous l'avons appliqué à un système de dimension suffisamment faible pour que les phénomènes de transport macroscopiques

soient négligeables. Une comparaison à l'expérience a montré que notre modèle permet d'estimer correctement la compétition germination-croissance à l'échelle microscopique.

Des phénomènes macroscopiques de transport expliquent que les hétérogénéités formées à l'échelle microscopique soient ensuite retrouvées à l'échelle du produit. Le mouvement relatif des phases solide et liquide entraîne la formation des macroségrégations mais le couplage germination-croissance est également impacté par les phénomènes de transport. Ainsi, les populations de germes et de grains ne sont pas homogènes à l'échelle macroscopique, il est donc primordial de prendre en compte leur transport. Or si le mouvement des grains est pris en compte dans certains modèles macroscopiques de solidification, le mouvement des germes n'a jamais été considéré jusqu'à présent.

Nous avons donc cherché à appliquer notre modèle à des cas de coulée, où les phénomènes macroscopiques de transport ne peuvent plus être négligés. Afin d'analyser l'impact de chacun des phénomènes de transport sur la formation des hétérogénéités de composition et de taille de structures, nous les avons ajoutés successivement dans le cas d'une coulée fixe puis dans le cas d'une coulée en CCV. Ces études ont permis de mettre en évidence l'impact du mouvement des germes sur la microstructure : il réduit la taille moyenne des grains et amplifie les hétérogénéités de tailles de grains. Ces conclusions ont été élargies à une gamme de paramètres de coulée. Ceci montre qu'il est indispensable de prendre en compte le mouvement des germes, alors qu'il a toujours été négligé jusqu'ici. De plus, ces études ont montré que la modélisation de la pointe de dendrite primaire impacte à la fois la croissance, le mouvement et le blocage des grains. Elle impacte donc la macroségrégation et la distribution de la microstructure dans la pièce coulée.

Dans le cas de la coulée statique, si le modèle a permis de retrouver la carte de ségrégation mesurée expérimentalement (dans (Kumar A. 2008)), les hétérogénéités de tailles de structure ont été prédites de façon moins précise. Cette difficulté peut être liée tout d'abord à un manque de connaissance des paramètres de coulée : sans information plus précise, la thermique a été modélisée de façon simplifiée et la distribution de germes a été fixée comme étant la distribution type pour les affinants de type Al-Ti-B définie dans (Tronche A. 2000). De plus, les effets tridimensionnels peuvent avoir un impact important sur l'écoulement, comme cela a déjà été montré dans (De Felice V. 2013). Des résultats expérimentaux plus détaillés seraient nécessaires pour pouvoir faire une comparaison quantitative. Mais nous pouvons également nous interroger sur les limites de notre modèle. La séparation des échelles est supposée satisfaite pour que la méthode de prise de moyenne utilisée dans SOLID soit valable. Or lorsque les phénomènes décrits induisent des variations spatiales très rapides, cette hypothèse peut être remise en question. C'est le cas pour la surfusion, qui varie de façon importante à l'échelle du grain. Nous atteignons ici les limites de la méthode de prise de moyenne.

L'objectif de la thèse restant l'étude de la formation des hétérogénéités en coulée semi-continue, la dernière étape de notre travail a porté sur l'étude de ce procédé. Afin de voir dans quelle mesure notre modèle permet de prédire les hétérogénéités en CCV, nous avons étudié un cas pour lequel de nombreuses mesures expérimentales ont été réalisées, dans le cadre du projet EMPACT. Là encore, des différences subsistent entre les profils obtenus par le

modèle et par l'expérience, mais plusieurs résultats ont pu être mis en évidence. La prise en compte du mouvement des grains permet d'estimer correctement la taille finale moyenne des structures. Les transitions morphologiques globulaire-dendritique-globulaire modifient non seulement la compétition germination-croissance à l'échelle microscopique mais également l'hydrodynamique dans toute la zone pâteuse. Mais des questions restent en suspens, car on ne parvient pas à retrouver les tendances observées expérimentalement en termes de macroségrégation, alors que le modèle permet de reproduire fidèlement le profil de ségrégation dans d'autres cas de CCV ( (Bedel M. 2010)).

## 2. Perspectives

On a vu que la formation des hétérogénéités de composition et de taille de structures est induite par l'interaction de nombreux phénomènes, et ce à plusieurs échelles. Beaucoup de travail reste à accomplir pour comprendre et maîtriser totalement ce mécanisme. Dans cette perspective, plusieurs pistes sont proposées:

-D'un point de vue numérique, la parallélisation du code de calcul SOLID permettrait de réduire considérablement les temps de calcul. Il serait alors possible d'utiliser des maillages plus fins et des pas de temps de calcul plus faibles. Des études paramétriques seraient également plus simples à réaliser. Un travail sur les schémas de discrétisation serait également souhaitable. En effet, le schéma upwind de premier ordre utilisé actuellement dans le code pour les équations de transport entraîne une diffusion numérique importante, et les éventuelles oscillations spatiales sont rapidement aplanies. Plus précisément, en coulée continue, même si la surfusion dans la zone de germination oscille dans le temps, la densité de grains formée est rapidement moyennée lors de son advection à la vitesse de coulée. Mais le travail majeur concerne la prise en compte de la troisième dimension, qui nous semble préalable à toute autre amélioration de la physique modélisée.

- Le modèle physique pris en compte dans SOLID peut également être amélioré. Pour l'instant, le liquide intragranulaire est supposé se déplacer avec le liquide extragranulaire. Modéliser une troisième phase à l'échelle macroscopique permettrait de prendre en compte l'effet du transport de la phase solide sur le transport du liquide intragranulaire. Une seconde piste d'amélioration du modèle concerne l'écoulement liquide dans le milieu poreux. La longueur caractéristique pour cet écoulement est actuellement imposée et constante. Or on sait que la fraction de grain ainsi que leur morphologie impactent cet écoulement. Maintenant que la morphologie des grains est prise en compte, il serait intéressant de travailler sur une estimation plus précise de cette longueur caractéristique.

-L'amélioration du modèle ne peut se faire sans confrontation à l'expérience. Pour cela, il est nécessaire de disposer de résultats expérimentaux fiables et précis. En effet, la pertinence de la validation du modèle par comparaison aux résultats expérimentaux dépend beaucoup de la qualité et de la maîtrise des expériences. Il faudrait, au cours d'une même expérience, non seulement mesurer précisément les hétérogénéités retrouvées dans le produit final mais également maîtriser les paramètres de solidification et déterminer les propriétés thermodynamiques de l'alliage ainsi que la distribution en taille de l'affinant. Ainsi,

toutes les données à fournir au modèle seraient maîtrisées. Des expériences in situ pourraient également permettre d'obtenir des informations plus précises au cours de la solidification que par une analyse post-mortem. Le mouvement des germes avec la phase liquide pourrait ainsi être confirmé, et l'évolution de la forme des pointes primaires de dendrites étudiée selon les conditions de solidification.

# Annexes

## A. Description du modèle SOLID

Le code de calcul SOLID est basé sur un modèle diphasique de type Euler-Euler, couplant des phénomènes à deux échelles, qui sont supposées séparables. Pour la résolution du système d'équations, deux étapes sont définies : une étape macroscopique avec la résolution des équations de conservation de la masse, de la chaleur, du soluté, des grains, des germes et de la quantité de mouvement, et une étape microscopique qui décrit la germination et la croissance des grains et du solide (différents lorsque les grains sont dendritiques). Le modèle est décrit en détail dans (C. H. Založnik M. 2010) lorsque la morphologie des grains est supposé globulaire et la germination totale à une surfusion fixée. La description donnée ici est plus succincte mais prend en compte les améliorations apportées depuis en termes de modèle de croissance globulaire et dendritique, de modèle de germination et de transport de la phase solide.

### ○ *Equations de conservation moyennées*

A l'échelle macroscopique, le modèle prend en compte le transport de chaleur, de masse et de soluté couplé à l'écoulement induit par le retrait et la convection thermo-solutale. L'approximation de Boussinesq est utilisée pour modéliser les variations de densité de la phase liquide et le retrait (lié à la différence de masse volumique des phases liquide et solide) est supposé constant. Sa valeur est généralement choisie au liquidus

$$\left( c_{\text{retrait}} = \frac{\rho_s(T_L^0) - \rho_l(T_L^0)}{\rho_s(T_L^0)} \right).$$

Les équations macroscopiques de transport sont dérivées des équations locales de continuité par la méthode de prise de moyenne. Deux phases, le liquide et le solide, sont prises en compte séparément et chaque phase est décrite par une approche eulérienne.

Tableau A- 1 : Equations de transport moyennées résolues dans SOLID

Conservation de la masse totale	$\frac{\partial(\rho_s g_s + \rho_l g_l)}{\partial t} + \nabla(\rho_s g_s \vec{v}_s + \rho_l g_l \vec{v}_l) = 0 \quad (A.1)$
Bilan de masse pour la phase solide	$\frac{\partial(\rho_s g_s)}{\partial t} + \nabla(\rho_s g_s \vec{v}_s) = \Gamma_s + \Phi_s \quad (A.2)$
Bilan d'énergie	$\frac{\partial(\rho_s g_s h_s + \rho_l g_l h_l)}{\partial t} + \nabla(\rho_s g_s h_s \vec{v}_s + \rho_l g_l h_l \vec{v}_l) = \nabla(\lambda \nabla(T)) \quad (A.3)$
Bilan de la masse de soluté dans la phase liquide	$\frac{\partial(\rho_l g_l C_l)}{\partial t} + \nabla(\rho_l g_l C_l \vec{v}_l) = \Gamma_l C_l^* + \frac{S_v \rho_l D_l}{\delta_l} (C_l^* - C_l) - \Phi_s k C_l \quad (A.4)$
Bilan de la masse de soluté dans la phase solide	$\frac{\partial(\rho_s g_s C_s)}{\partial t} + \nabla(\rho_s g_s C_s \vec{v}_s) = \Gamma_s C_s^* + \frac{S_v \rho_s D_s}{\delta_s} (C_s^* - C_s) + \Phi_s k C_l \quad (A.5)$
Bilan pour la densité de grains	$\frac{\partial N}{\partial t} + \nabla(N \vec{v}_s) = \sum_{i=1}^n \Phi^i \quad (A.6)$
Bilan pour la densité de germes	$\frac{\partial N_{nuc}^i}{\partial t} + \nabla(N_{nuc}^i \vec{v}_l) = -\Phi^i \quad (A.7)$
Bilan pour la fraction d'enveloppe	$\frac{\partial g_{env}}{\partial t} + \nabla(g_{env} \vec{v}_s) = \Gamma_{env} + \Phi_s \quad (A.8)$

Deux régimes sont distingués selon le comportement de la phase solide. Lorsque la fraction d'enveloppe dépasse une valeur limite notée  $g^{bloc}$ , les grains sont supposés bloqués et l'écoulement du liquide dans ce milieu poreux est décrit par une équation de conservation de la quantité de mouvement incluant un terme de Darcy afin de modéliser les interactions liquide-solide. La perméabilité du milieu poreux est modélisée par la loi de Kozeny-Carman, fonction d'une dimension caractéristique de la microstructure, notée  $DAS$ . Lorsque la fraction d'enveloppe est plus faible que cette valeur limite, les grains sont supposés libres de se déplacer dans le liquide. Le comportement de la population de grains est décrit par le comportement d'un grain moyen.

Dans la zone pâteuse ( $g_{env} < g^{bloc}$ ) : bilan total de quantité de mouvement :

$$\frac{\partial(\rho_l g_l \vec{v}_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \vec{v}_l \vec{v}_l) = \nabla \cdot (\mu_l \nabla (g_l \vec{v}_l)) - \nabla(p) + \rho_m^b \vec{g} \quad (A.9)$$

où  $\rho_m^b = \rho_s^b g_s + \rho_l^b (1 - g_s)$ ,  $\rho_l^b = \rho_0 (1 - \beta_T (T - T_{ref}) - \beta_C (C_l - C_{ref}))$ ,  $\rho_s^b = \frac{\rho_0}{1 - c_{retrait}}$

Avec  $\vec{v}_s = \vec{v}_l + \frac{4d_g^2(1 - g_{env})}{3C_d \mu_l Re} (-\nabla(p) + \rho_g \vec{g})$  et  $\rho_g = \rho_s g_s + \rho_l (1 - g_s)$  la masse volumique du grain.

$$Re = \frac{\rho_l d_g (1 - g_{env}) |\vec{v}_s - \vec{v}_l|}{\mu_l}; C_d = \frac{48C_{ke} (1 - g_l)}{Re} + C_{ie} \quad (A.10)$$



$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Si } g_{env} \leq 0,5 : C_{ke} = \frac{25}{6} \text{ et } C_{ie} = \frac{7}{3} \\ \text{Si } g_{env} > 0,5 : C_{ke} = \frac{1}{2} \frac{(1-g_{env})^3}{g_{env}} \frac{1+4.7g_{env}}{1+1.83g_{env}} \text{ et } C_{ie} = \frac{24(10^E-1)}{Re \left[ 1-0.9(0.75-g_{env})^{1/3} g_{env}^{2/3} \right]^3} \end{array} \right.$$

$$\text{Et } E = 0.261Re^{0.369} - 0.105Re^{0.431} - \frac{0.124}{1+(\log_{10} Re)^2}$$

Dans la zone poreuse ( $g_{env} \geq g^{bloc}$ ) : bilan de quantité de mouvement de la phase liquide :

$$\frac{\partial(\rho_l g_l \vec{v}_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \vec{v}_l \vec{v}_l) = \nabla \left( \mu_l \nabla (g_l \vec{v}_l) \right) - g_l \nabla (p) - \frac{g_l^2 \mu_l}{K} \vec{v}_l + \rho_l g_l^b \vec{g} \quad (\text{A.11})$$

$$\text{Avec la perméabilité } K = \frac{SDAS^2}{20\pi^2} \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2}$$

Afin de modéliser plus précisément le mouvement des grains, L.Heyvart propose un nouveau modèle pour le transport de la phase solide. Les bilans de quantité de mouvement des phases solide et liquide ne sont plus ajoutés mais sont résolus séparément. L'inertie de la phase solide et les contraintes internes à cette phase sont désormais prises en compte. Un modèle pseudo fluide est ainsi utilisé pour décrire le mouvement de la phase solide à travers une loi de viscosité solide  $\mu_s^*$  développée dans (B. C. Wang C.Y. 1996) et le bilan de quantité de mouvement devient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial(\rho_l g_l \vec{v}_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \vec{v}_l \vec{v}_l) &= \nabla \left( \mu_l \nabla (g_l \vec{v}_l) \right) - \nabla (g_l p) + g_l \rho_l^b \vec{g} + \vec{M}_l \\ \frac{\partial(\rho_s g_s \vec{v}_s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_s g_s \vec{v}_s \vec{v}_s) &= \nabla \left( \mu_s^* \nabla (g_s \vec{v}_s) \right) - \nabla (g_s p) + g_s \rho_s \vec{g} - \vec{M}_l \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

Sans autre précision, le modèle initial est utilisé. Le modèle modifié est utilisé seulement dans la dernière étude présentée au chapitre IV.

#### ○ *Modèle microscopique*

La germination et la croissance des grains sont traitées localement, c'est-à-dire à l'échelle du volume élémentaire de référence (VER) pour la prise de moyenne. A cette échelle, la température est supposée uniforme.

La germination est modélisée par une loi de germination instantanée. La distribution en taille des germes (obtenue expérimentalement) est discrétisée en  $n$  classes. Chaque classe  $i$  est caractérisée par une densité volumique de population  $N_{nuc,0}^i$  activée à une surfusion critique  $\Delta T_c^i$ . Ces classes sont définies en découpant la fonction de densité de distribution, de la plus petite à la plus grande taille de germe mesurée, en  $n$  intervalles.  $N_{nuc,0}^i$  est donc l'intégrale de la fonction de densité de distribution dans le  $i^{\text{ème}}$  intervalle et  $\Delta T_c^i$  est la moyenne arithmétique des deux surfusions délimitant le  $i^{\text{ème}}$  intervalle.

La densité de germes de la classe  $i$ , initialement égale à  $N_{nuc,0}^i$ , peut évoluer du fait du transport et de la germination, et est notée  $N_{nuc}^i$ . En effet, lorsque la surfusion locale devient inférieure à la surfusion d'activation  $\Delta T_c^i$  de la classe  $i$ , la densité locale de germes associée  $N_{nuc}^i$  est instantanément ajoutée à la densité locale de grains  $N$  et  $N_{nuc}^i$  devient localement 0.  $\Phi^i$  représente donc le transfert de densité de population depuis les germes vers les grains lors de la germination.

$$\begin{cases} \Phi^i = N_{nuc}^i & \text{si } \Delta T = T - T_{liq} = T - (T_f + m_L C_l) < \Delta T_c^i \\ \Phi^i = 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{A.13})$$

$\Phi_s$  correspond à la masse de solide ajouté au moment de l'activation d'un nouveau groupe de germes :  $\Phi_s = \rho_s V_0 \sum_{i=1}^n \Phi^i$ , en supposant que les grains occupent initialement un volume  $V_0$ .

La croissance de la phase solide et des enveloppes est également traitée à l'échelle microscopique. L'équilibre thermique et l'équilibre thermodynamique sont supposés atteints à l'interface solide-liquide, ce qui se traduit par :

$$\begin{aligned} C_s^* &= k C_l^* \\ T &= T_f + m C_l^* \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

Le modèle de croissance (globulaire et dendritique) est détaillé dans le chapitre II donc il n'est pas développé ici. Lorsque les grains sont supposés dendritiques, les enveloppes des grains sont supposées octaédriques, et la croissance de ces enveloppes est caractérisée par la vitesse de croissance de leurs pointes primaires (supposée égale à la vitesse de croissance des pointes secondaires). Le liquide intragranulaire (présent dans les enveloppes des grains) et le liquide extragranulaire sont traités comme une seule et même phase à l'échelle macroscopique mais les deux phases sont différenciées dans le modèle de diffusion du soluté. La diffusion solutale est parfaite dans le liquide intragranulaire et finie dans le liquide extragranulaire. Le gradient solutal à l'interface grain/liquide est approché par une expression analytique de la longueur de diffusion. La fraction interne  $g_i$  correspond au rapport de la fraction solide sur la fraction d'enveloppe, et est utilisée pour caractériser la morphologie des grains.

Il est également possible de supposer la morphologie des grains purement globulaire. Les enveloppes des grains sont alors sphériques et le modèle de diffusion de soluté est simplifié à deux phases : le solide et le liquide.

## B. Données thermodynamiques

Tableau A- 2 : Données thermo-physiques pour l'alliage Al-6wt.%Si (chapitre II)

Propriété	Unité	Valeur
Densité, $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2387,0
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	1000,0
Conductivité thermique, solide, $\lambda_s$	W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	150,0
Conductivité thermique, liquide, $\lambda_l$	W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	70,0
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	1,74.10 <sup>-12</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	2,33.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente Al pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,98.10 <sup>5</sup>
Viscosité dynamique liquide, $\mu_l$	Pa s	1,15.10 <sup>-3</sup>
Coefficient de dilatation thermique, $\beta_T$	K <sup>-1</sup>	1,0.10 <sup>-4</sup>
Coefficient de dilatation solutal, $\beta_C$	wt.% <sup>-1</sup>	-4,0.10 <sup>-4</sup>
Dimension caractéristique dans Kozeny-Carman, $DAS$	m	100. 10 <sup>-6</sup>
Température de fusion Al pur, $T_f$	°C	660,0
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	617,4
Température eutectique Al-Si, $T_{eut}$	°C	577,0
Pente de liquidus, $m$	°C wt.% <sup>-1</sup>	-7,1
Coefficient de partage, $k$	-	0,14

Tableau A- 3 : Données thermodynamiques pour l'alliage Al-5wt.%Si (chapitre II)

Propriété	Unité	Valeur
Densité, $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2500,0
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	940,0
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	1,0.10 <sup>-15</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	3,0.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,8.10 <sup>5</sup>
Viscosité dynamique du liquide, $\mu_l$	Pa s	1,2.10 <sup>-3</sup>
Conductivité thermique $\lambda$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	50,0
Dimension caractéristique dans Kozeny-Carman, $DAS$	m	100. 10 <sup>-6</sup>
Température de fusion de l'aluminium pur, $T_f$	°C	660,0
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	621,5
Température eutectique Al-Si, $T_{eut}$	°C	577,1
Pente du liquidus, $m$	°C wt.% <sup>-1</sup>	-7,7
Coefficient de partage, $k$	-	0,117

Tableau A- 4 : Données thermodynamiques pour l'alliage Al-6wt.%Cu (chapitre III)

Propriété	Unité	Valeur
Densité, $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2461,76
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	1100,0
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	1,1.10 <sup>-12</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	5,0.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,92.10 <sup>5</sup>
Température de fusion de l'aluminium pur $T_f$	°C	660,0
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	639,45
Température eutectique Al-Cu, $T_{eut}$	°C	548,0
Pente du liquidus, $m$	°C wt.% <sup>-1</sup>	-3,425
Coefficient de partage, $k$	-	0,173

Tableau A- 5 : Données thermodynamiques pour l'alliage Al-1wt.%Ti (chapitre III) – tiré de (Tronche A. 2000)

Propriété	Unité	Valeur
Chaleur spécifique, $C_p$	J m <sup>-3</sup> . K <sup>-1</sup>	2,58.10 <sup>6</sup>
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	1,00.10 <sup>-12</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	2,52.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J m <sup>-3</sup>	9,5.10 <sup>8</sup>
Coefficient de Gibbs-Thompson $\Gamma_{gb}$	K.m	1,42.10 <sup>-7</sup>
Température de fusion de l'aluminium pur $T_f$	°C	660,4
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	686,0
Pente du liquidus, $m$	°C wt.% <sup>-1</sup>	25,6
Coefficient de partage, $k$	-	7,0

Tableau A- 6 : Données thermodynamiques pour l'alliage Al-22wt.%Cu (chapitre III)

Propriété	Unité	Valeur
Densité liquide de référence (à $T_0$ ), $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2800,00
Densité solide, $\rho_s$	kg m <sup>-3</sup>	2609,45
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	1100,0
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	4,2.10 <sup>-13</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	3,8.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,92.10 <sup>5</sup>
Viscosité dynamique du liquide, $\mu_l$	Pa s	1,2.10 <sup>-3</sup>
Conductivité thermique $\lambda$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	120,7
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	K <sup>-1</sup>	1,17.10 <sup>-4</sup>
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$	wt.‰ <sup>-1</sup>	-7,3.10 <sup>-3</sup>
Dimension caractéristique dans Kozeny-Carman, $DAS$	m	50.10 <sup>-6</sup>
Pseudo température de fusion de l'aluminium pur $T_f$	°C	703,86
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	599,01
Température eutectique Al-Cu, $T_{eut}$	°C	548,0
Pente du liquidus, $m$	°C wt.‰ <sup>-1</sup>	-4,766
Coefficient de partage, $k$	-	0,173

Tableau A- 7 : Données thermodynamiques pour l'alliage pseudo-binaire équivalent à l'alliage 7449 (chapitre IV) -tiré de (K. A. Založnik M. 2011)

Propriété	Unité	Valeur
Densité liquide de référence, $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2519,0
Retrait $(\rho_s - \rho_{l,ref}) / \rho_s$	-	0,057
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	1300,0
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	5,6.10 <sup>-13</sup>
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	5,66.10 <sup>-9</sup>
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,63.10 <sup>5</sup>
Viscosité dynamique du liquide, $\mu_l$	Pa s	1,28.10 <sup>-3</sup>
Conductivité thermique liquide $\lambda_l$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	75,0
Conductivité thermique solide $\lambda_s$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	185,0
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	K <sup>-1</sup>	1,5.10 <sup>-4</sup>
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$	wt.‰ <sup>-1</sup>	-1,23.10 <sup>-2</sup>
Dimension caractéristique dans Kozeny-Carman, $DAS$	m	100. 10 <sup>-6</sup>
Fraction de grain de blocage, $g^{bloc}$	-	0,3
Pseudo température de fusion de l'aluminium pur, $T_f$	°C	677,8
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	627,13
Température eutectique, $T_{eut}$	°C	477,55
Pente du liquidus, $m$	°C wt.‰ <sup>-1</sup>	-6,05
Coefficient de partage, $k$	-	0,257
Composition nominale en soluté, $C_0$	wt.‰	8,375
Vitesse de coulée, $v_c$	m.s <sup>-1</sup>	5.10 <sup>-4</sup>
Température de coulée, $T_0$	°C	684,0

Tableau A- 8 : Données thermodynamiques pour l'alliage binaire Al-4.06wt.%Mg et paramètres de la coulée (chapitre IV)

Propriété	Unité	Valeur	Référence
Densité liquide de référence, $\rho_0$	kg m <sup>-3</sup>	2400,0	(Jalanti T. 2000)
Retrait $(\rho_s - \rho_{l,ref}) / \rho_s$	-	0,0588	(Jalanti T. 2000)
Chaleur spécifique, $C_p$	J kg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>	1107,0	(Jalanti T. 2000)
Coefficient de diffusion, solide, $D_s$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	1,8.10 <sup>-12</sup>	(Du Y. 2013)
Coefficient de diffusion, liquide, $D_l$	m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>	7,7.10 <sup>-9</sup>	(Du Y. 2013)
Chaleur latente de l'aluminium pur, $L_f$	J kg <sup>-1</sup>	3,7255.10 <sup>5</sup>	(Jalanti T. 2000)
Viscosité dynamique du liquide, $\mu_l$	Pa s	1,2.10 <sup>-3</sup>	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique liquide $\lambda_l$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	100,0	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique solide $\lambda_s$ , à 0°C	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	109,0	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique solide $\lambda_s$ , à 100°C	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	123,0	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique solide $\lambda_s$ , à 200°C	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	133,0	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique solide $\lambda_s$ , à 300°C	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	139,0	(Jalanti T. 2000)
Conductivité thermique solide $\lambda_s$ , à 400°C	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	144,0	(Jalanti T. 2000)
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	K <sup>-1</sup>	1,245.10 <sup>-4</sup>	(Jalanti T. 2000)
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$	wt.‰ <sup>-1</sup>	4,0.10 <sup>-3</sup>	(Jalanti T. 2000)
Dimension caractéristique dans Kozeny-Carman, $DAS$	m	40.10 <sup>-6</sup>	(Jalanti T. 2000)
Température de fusion de l'aluminium pur, $T_f$	°C	660,5	(Jalanti T. 2000)
Température de liquidus, $T_{liq}^0$	°C	636,83	(Jalanti T. 2000)
Température eutectique Al-Mn, $T_{eut}$	°C	450,0	(Jalanti T. 2000)
Pente du liquidus, $m$	°C wt.‰ <sup>-1</sup>	-5,831	(Jalanti T. 2000)
Coefficient de partage, $k$	-	0,485	(Jalanti T. 2000)
Composition nominale en soluté, $C_0$	wt.‰	4,06	(Jalanti T. 2000)
Vitesse de coulée, $v_c$	m.s <sup>-1</sup>	0,001	(Joly A. 2000)
Température de coulée, $T_0$	°C	670,0	(Drezet J.M. 2000)

## C. Flux d'extraction de chaleur – coulée EMPACT

Tableau A- 9 : Valeur du flux d'extraction de chaleur fonction de la distance à la surface du métal utilisée pour la coulée EMPACT (chapitre IV)

Distance à la surface du métal [m]	Flux [MW.m <sup>-2</sup> ]
0,000	0,727
0,010	1,160
0,020	0,364
0,030	0,215
0,050	0,155
0,060	0,000
0,068	0,000
0,075	5,150
0,080	3,600
0,095	1,553
0,120	1,191
0,170	0,849
0,250	0,630
0,400	0,405
1,000	0,405





## Bibliographie

- Agarwal P.K., O'Neill B.K., «Transport phenomena in multi-particle systems-I. pressure drop and friction factors: unifying the hydraulic-radius and submerged-object approaches.» *Chemical Engineering Science* 43, n° 9 (1988): 2487-2499.
- Ananth R., Gill W.N., «Self-consistent theory of dendritic growth with convection.» *Journal of Crystal Growth* 108 (1991): 173-189.
- Appolaire B. *Prise en compte du mouvement des cristaux équiaxes dans la modélisation de la solidification des lingots d'acier coulées en fonderie.* 1999.
- Appolaire B., Combeau H., Lesoult G. «Modeling of equiaxed growth in multicomponent alloys accounting for convection and for the globular/dendritic morphological transition.» *Materials Science and Engineering A* 487 (2008): 33-45.
- Association Française de l'Aluminium. 2013.  
<http://www.aluminium.fr/aluminium/proprietes-aluminium> (accès le novembre 19, 2013).
- Association, European Aluminium. *EAA-European Aluminium Association.* 2013.  
<http://www.alueurope.eu/about-aluminium/properties/> (accès le 11 27, 2013).
- Bedel M. «Modélisation des ségrégations en coulée semi-continue.» rapport de stage de fin d'étude, 2010.
- Brandes E.A. *Smithells metals reference book.* 1992.
- Buchholz A., Commet B., Grün G.U., Mortensen D. *Numerical mass and heat flow predictions in aluminium dc casting: a comparison of simulations with melt pool measurements.* K.Ehrke and W.Schneider, 2000.
- Bunn A.M., Schumacher P., Kearns M.A., Boothroyd C.B., Greer A.L. «Grain refinement by Al-Ti-B alloys in Aluminium mets: a study of the mechanisms of poisoning by zirconium.» *Materials Science and Technology* 15 (1999): 1115-1123.
- Burton J.A., Prim R.C., Slichter W.P., «The distribution of solute in crystals grown from the melt. Part I: theoretical.» *The Journal of Chemical Physics* 21, n° 11 (1953).
- Cibula A. «The mechanism of grain refinement in Aluminium.» *J. Inst. Metals* 76 (1949): 321-360.
- Combeau H., Založnik M., Hans S., Richy P.E., «Prediction of macrosegregation in steel ingots: influence of the motion and the morphology of equiaxes grains.» *Metallurgical and Materials Transactions B* 40 (2009): 289-304.
- Daloz D., Combeau H., Joly A., Lesoult G., Grün G.U., Jarry P., Commet B. «Etude sur l'origine de la macroségrégation centrale dans la coulée semi-continue d'Aluminium.» 2002.
- Dantzig J.A., Rappaz M. *Solidification.* EPFL Press, 2009.

- De Felice V., Tveito K.O., Zaloznik M., Combeau H., M'Hamdi M., «Three-dimensional study of macro- and mesosegregation formation in a rectangular cavity cooled from one vertical side.» *IOP Conferences: Materials Science and Engineering* 33 (2013).
- Dong J., Cui J.Z., Le Q.C., Lu G.M. «Liquidus semi-continuous casting, reheating and thixoforming of a wrought aluminium alloy 7075.» *Materials Science and Engineering A* 345 (2003): 234-242.
- Drezet J.M., Rappaz M., Grün G.U., Gremaud M., «Determination of thermophysical properties and boundary conditions of direct chill-cast aluminium alloys using inverse methods.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 31 (2000): 1627-1634.
- Du Q., Eskin D.G., Katgerman L. «Modeling Macroseggregation during Direct-Chill Casting of Multicomponent Aluminum Alloys.» *Metallurgical and Materials Transactions* 38 (2007): 180-189.
- DU Q., Eskin D.G., Katgerman L. «Modelling macroseggregation during dc casting of a binary aluminium alloy.» *TMS*. 2006.
- Du Y., Chang Y.A., Huang B.Y. et al. «Diffusion coefficients of some solutes in fcc and liquid Al: critical evaluation and correlation.» *Material Science and Engineering A* 363, n° 1-2 (2013): 140-151.
- Easton M., St John D., «Grain refinement of Aluminium alloys: Part I. The nucleant and solute paradigms - a review of the literature.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 30 (1999): 1613-1623.
- Eskin D.G. *Physical Metallurgy of Direct Chill Casting of aluminium Alloys*. New York: CRC Press, 2008.
- Eskin D.G., Du Q., Katgerman L. «Scale rules for macroseggregation during direct-chill casting of aluminium alloys.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 39 (2008): 1206-1212.
- Eskin D.G., Jafari A., Katgerman L. «Contribution of forced centreline convection during direct-chill casting of round billets to macroseggregation and structure of binary Al-Cu aluminium alloy.» *Materials Science and Technology* 27 (2011): 890-896.
- Eskin D.G., Savran V.I., Katgerman L. «Effects of melt temperature and casting speed on the structure and defect formation during direct-chill casting of an Al-Cu alloy.» *Metallurgical and Material Transactions* 36A (2005): 1965-1976.
- Eskin D.G., Zuidema J., Savran V.I., Katgerman L. «Structure formation and macroseggregation under different process conditions during DC casting.» *Materials Science and Engineering A* 384 (2004): 232-244.
- Fan Z. «An epitaxial model for heterogeneous nucleation on potent substrates.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 44 (2013): 1409-1418.

- Finn T.L., Chu G., Bennon W.D., «The influence of mushy region microstructure on macrosegregation in direct chill cast aluminium-copper round ingots.» *Micro/Macro Scale Phenomena in Solidification*, 1992: 17-26.
- Flemings, M. C., Nereo, G. E., «Macrosegregation. PT. 1. AIME.» *Met Soc Trans* 239, n° 9 (1967): 1449-1461.
- Gandin Ch.A. «Modeling of solidification: grain structures and segregations in metallic alloys.» *Comptes Rendus Physique* 11 (2010): 216-225.
- Gandin Ch.A., Desbiolles J.L., Rappaz M., Thevoz Ph., «A three-dimensional cellular automaton - finite element model for the prediction of solidification grain structures.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 30 (1999): 3153-3165.
- Gandin Ch-A. «Boundary layer correlation for dendrite tip growth with fluid flow.» *Material Science and Engineering* 342 (2003): 44-50.
- Greer A.L. «Grain refinement of Aluminium alloys - current academic studies.» MEBSB subgroup 1 - report 2, 2000.
- Greer A.L., „ «Grain refinement of alloys by inoculation of melts.» *Philosophical Transactions of the Royal Society* 361 (2003): 479-495.
- Greer A.L., Bunn A.M. , Tronche A. , Evans P.V. , Bristow D.J. «Modelling of inoculation of metallic melts: application to grain refinement of aluminium by Al-Ti-B.» *Acta Materialia* 48 (2000): 2823-2853.
- Hunt J.D. «Steady state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectic.» *Material Science and Engineering* 65 (1984).
- Jacot A., Rappaz M. «A pseudo-front tracking technique for the modelling of solidification microstructures in multi-component alloys.» *Acta Materialia* 50, n° 8 (2002): 1909-1926.
- Jalanti T., „ «Etude et modélisation de la macroségrégation dans la coulée semi-continue des alliages d'Aluminium.» *PhD thesis*, 2000.
- Joly A., grün G.U., Daloz D., Combeau H., Lesoult G. «Effect of grain refinement on macrosegregation in direct chill semi-continuous casting of aluminium sheet ingot.» *Materials Science Forum - Solidification and Gravity*, 2000: 111-120.
- Jones G.P., Pearson J. «Factors affecting the grain-refinement of Aluminium using titanium and boron additives.» *Metallurgical Transactions B* 7 (1976): 223-234.
- Karma A., Rappel W.J. «Quantitative phase-field modeling of dendritic growth in two and three dimensions.» *Physical Reviews* 57, n° 4 (1998): 4323-4349.
- Kim W.T., Cantor B., «An adsorption model of the heterogeneous nucleation of solidification.» *Acta metallurgica et materialia* 42 (1994): 3115-3127.

- Kumar A. «Role of solid phase movement and remelting on macrosegregation and microstructure formation in solidification processing.» *PhD thesis* (thèse), 2008.
- Kumar A., Walker M.J., Sundarraj S. et al. «Grain Flootation During Equiaxed Solidification of an Al-Cu Alloy in a Side-Cooled Cavity: Part I-Experimental Studies.» *Metallurgical and Materials Transactions B* 42, n° 4 (2011): 825-836.
- Kurz W., Fisher D.J. *Fundamentals of solidification*. trans tech publications, 1986.
- Lesoult G. *Thermodynamique des matériaux*. EPFL Press, 2010.
- Lesoult G., Albert V., Appolaire B., Combeau H., Daloz D., Joly A., Stomp C., Grün G.U., Jarry P. «Equiaxed growth and related segregations in cast metallic alloys.» *Science and Technology of Advanced Materials*, 2001: 285-291.
- Li J., Wu M., Hao J., Kharicha A., Ludwig A. «Simulation of channel segregation using a two-phase columnar solidification model - Part II: Mechanism and parameter study.» *Computational Material Science* 55 (2012): 419-429.
- Lipton J., Glicksman M.E., Kurz W., «Dendritic growth into undercooled alloy melts.» *Materials Science and Engineering* 65 (1984): 57-63.
- Livanov V.A., Gabidullin R.M., Shipilov V.S. *Continuous Casting of Aluminium Alloys*. moscow: Metallurgiya, 1977.
- Maxwell I., Hellawell A., «A simple model for grain refinement during solidification.» *Acta Metallurgica* 23 (1975): 229-237.
- McCartney D.G. «Grain refining of Aluminium and its alloys using inoculants.» *International Materials Reviews* 34 (1989): 247-260.
- Mullins W.W., Sekerka R.F., «Morphological stability of a particle growing by diffusion of heat flow.» *Journal of Applied Physics* 34, n° 2 (1963): 323-329.
- Nadella R., Eskin D.G., Du Q., Katgerman L. «Macrosegregation in direct-chill casting of Aluminium alloys.» *Progress in Materials Science* 53 (2008): 421-480.
- Nadella R., Eskin D.G., Katgerman L. «Effect of grain refinement on structure evolution, "floating" grains, and centerline macrosegregation in direct-chill cast aa2024 alloy billets.» *Metallurgical and Materials Transactions* 39A (2008): 450-461.
- Ni J., Beckermann C., «Modeling of globulitic alloy solidification with convection.» *Journal of Materials Processing and Manufacturing Science* 2 (1993): p.217-231.
- Nielsen O., Appolaire B., Combeau H., Mo A. «Measurement and modeling of the microstructural morphology during equiaxed solidification of Al-Cu alloys.» *Metallurgical and Materials Transactions* 32 (2001): 2049-2060.
- Oldfield W. «A quantitative approach to casting solidification - freezing of cast iron.» (Trans ASM) 59, n° 4 (1966).

- Papapetrou A. «Untersuchungen über dendritisches Wachstum von Kristallen.» *Zeitschrift für kristallographie* 92 (1935).
- Perepezko J.H., Uttormark M.J. «Nucleation-controlled solidification kinetics.» *Metallurgical and Materials Transactions* 27A (1996): 533-547.
- Quested T.E., Greer A.L. «The effect of the size distribution of inoculant particles on as-cast grain size in aluminium alloys.» *Acta Materialia* 52 (2004): 3859-3868.
- Quested T.E., Greer A.L., «Grain refinement of Al alloys: mechanisms determining as-cast grain size in directional solidification.» *Acta Materialia* 53 (2005): 4643-4653.
- Ramirez J.C., Beckermann C., Karma A., Diepers H.J., «Phase-field modeling of binary alloy solidification with coupled heat and solute diffusion.» *Physical Review E* 69, n° 5 (2004).
- Rappaz M., Thevoz P., Jie Z., Gabathuler J.P., Lindscheid H., «Micro/Macro modelling of equiaxed solidification.» *Computer Simulation of Solidification*, 1986: 277-284.
- Rappaz M., Thevoz Ph. «Solute diffusion model of equiaxed dendritic growth: analytical solution.» *Acta Metallurgica* 35, n° 12 (1987): 1919-1933.
- Rappaz M., Thevoz Ph., «Solute diffusion model for equiaxed dendritic growth.» *acta metallurgica* 35, n° 7 (1987): 1487-1497.
- Reddy A.V., Beckermann C., «Simulation of the effects of thermosolutal convection, shrinkage induced flow and solid transport on macrosegregation and equiaxed grain size distribution in a dc continuous cast Al-Cu round.» *Materials Processing in the Computer Age II*. las vegas: voller VR, Marsh SP, Elkaddah N, 1994. 89-102.
- Rowe P.N., Claxton K.T. «Heat and mass transfer from a single sphere to fluid flowing through an array.» *Transactions - Institution of Chemical Engineers* 43 (1965): 321-331.
- Sato T., Kurz W., Ikawa K. «Experiments on dendrite branch detachment in the succinonitrile-camphor alloy.» *Transactions on the Japan Institute of Metals* 28 (1987): 1012-1021.
- Schneider W.A., Quested T.E., Greer A.L., Cooper P.S., «A comparison of the family of AlTiB refiners and their ability to achieve a fully equiaxed grain structure in DC casting.» *Light Metals -Warrendale*, 2003: 953-960.
- Schumacher P., Greer A.L. «High resolution transmission electron microscopy of grain-refining particles in amorphous aluminium alloys.» *Light Metals-Warrendale*, 1996: 745-753.
- Schumacher P., Greer A.L., Worth J., Evans P.V., Kearns M.A., Fisher P., Green A.H. «New studies of nucleation mechanisms in aluminium alloys: implications for grain refinement practice.» *Materials Science and Technology* 14 (1998): 394-404.
- Spittle J.A., Sadli S., «Effect of alloy variables on grain refinement of binary aluminium alloys with Al-Ti-B.» *Materials Science and Technology* 11 (1995): 533-537.

- St John D.H., Qian M., Easton M.A., Cao P. «The interdependence theory: the relationship between grain formation and nucleant selection.» *Acta Materialia* 59 (2011): 4907-4921.
- Suyitno, Eskin D.G., Savran V.I., Katgerman L., «Effects of alloy composition and casting speed on structure formation and hot tearing during direct-chill casting of Al-Cu alloys.» *Metallurgical and Materials Transactions A* 35 (2004): 3551-3561.
- The Aluminium Association. *Standard test procedure for Aluminum alloy grain refiners : TP-1*. Washington: The Aluminium Association, 1987.
- Thevoz Ph., Desbiolles J.L., Rappaz M., «Modeling of equiaxed microstructure formation in casting.» *Metallurgical Transactions A* 20 (1989): 311-322.
- Thuinet L., Combeau H. «A new model of microsegregation for macrosegregation computation in multicomponent steels. Part I.» *Computational Materials Science* 45 (2009): 294-304.
- TP-1 tests. *Standard test procedure for Aluminum alloy grain refiners : TP-1*. Washington: The Aluminium Association, 1987.
- Tronche A. «Investigation and Modelling of Inoculation of Aluminium by TiC.» *PhD thesis*, 2000.
- Tronche A., Vandyoussefi M., Greer A.L., «Instability of TiC particles in aluminium melts inoculated with an Al-Ti-C grain refiner.» *Materials science and technology* (Material Science and technology) 18, n° 10 (2002): 1072-1078.
- Turnbull D. «Formation of crystal nuclei in liquid metals.» *Journal of Applied Physics* 21 (1950): 1022-1028.
- Tveito K., M'Hamdi M., Combeau H., Zaloznik M., «Application of an equiaxed dendritic model to a dc casting experiment.» *en cours* (en cours), 2013.
- Vinod Kumar G.S., Murty B.S., Chakraborty M. «Effect of TiAl<sub>3</sub> particles size and distribution on their settling and dissolution behaviour in Aluminium.» *Material Science* 45 (2010): 2921-2929.
- Vogel A., Cantor B., «Stability of a spherical particle growing from a stirred melt.» *Journal of Crystal Growth* 37 (1977): 309-316.
- Vreeman C.J., Schloz J.D., Krane M.J.M., «Direct Chill Casting of Aluminum Alloys: Modeling and Experiments on Industrial Scale Ingots.» *Journal of Heat Transfer* 124 (2002): 947-953.
- Wang C.Y., Ahuja S., Beckermann C., de Groth H.C. «Multiparticle interfacial drag in equiaxed solidification.» *Metallurgical and Materials Transactions B* 26, n° 1 (1995): 111-119.
- Wang C.Y., Beckermann C., «A multiphase solute diffusion model for dendritic alloy solidification.» *Metallurgical Transactions A* 24 (1993): 2787-2802.

- Wang C.Y., Beckermann C. «Equiaxed dendritic solidification with convection: part I: multiscale/multiphase modeling.» *Metallurgical and Materials Transactions* 27A (1996): 2754-2764.
- Wang C.Y., Beckermann C., «A unified diffusion model for columnar and equiaxed dendritic alloy solidification.» *Materials Science and Engineering* 171 (1993): 199-211.
- Weckman D.C., Niessen P. «A numerical simulation of the D.C. continuous casting process including nucleate boiling heat transfer.» *Metallurgical Transactions B* 13 (1982): 593-602.
- Willers B., Eckert S., Nikrityuk P.A. et al. «Efficient melt stirring using pulse sequences of a rotating magnetic field: Part II. Application to solidification of Al-Si alloys.» *Metallurgical and Materials Transactions B* 39, n° 2 (2008): 304-316.
- Wu M., Ludwig A. «Modeling equiaxed solidification with melt convection and grain sedimentation-I: model description.» *Acta Materialia* 57 (2009): 5621-5631.
- Wu M., Ludwig A., «Modeling equiaxed solidification with melt convection and grain sedimentation—II. Model verification.» *Acta Materialia* 57 (2009): 5632-5644.
- Založnik M. «Modeling of Macrosegregation in Direct Chill Casting.» *PhD Thesis*, 2006.
- Založnik M., Combeau H. «an operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: part I - model and solution scheme.» *Computational Materials Science* 48 (2010): 1-10.
- Založnik M., Combeau H., «The influence of the morphology evolution of free-floating grains on the macrosegregation in a 3,3 ton steel ingot.» *Modeling of casting, welding and advanced solidification processes XII*, 2009: 165-172.
- Založnik M., Combeau H., «Effects of solidification kinetics and liquid density in modeling of macrosegregation in castings.» Warrendale, Pennsylvania, USA, 2009.
- Založnik M., Kumar A., Combeau H., «Influence of Transport Mechanisms on Macrosegregation Formation in Direct Chill Cast Industrial Scale Aluminum Alloy Ingots.» *Advanced Engineering Materials* 13, n° 7 (2011): 570-580.
- Zhang L., Eskin D.G., Miroux A., Subroto T., Katgerman L. «Effect of inlet geometry on macrosegregation during the direct chill casting of 7050 alloy billets: experiments and computer modelling.» *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 33 (2012).

## **Étude de la formation des structures de solidification et des macroségrégations en coulée semi-continue d'aluminium**

### **Résumé**

Lors de la solidification d'un alliage métallique, des hétérogénéités de composition en éléments d'alliage et des hétérogénéités de taille des structures apparaissent. La modélisation est un outil précieux dans la maîtrise de la formation de ces hétérogénéités, qui sont incompatibles avec les exigences industrielles. Au niveau international, le code de calcul SOLID est l'unique code de solidification permettant la prise en compte simultanée de la germination, de la croissance et du transport des grains, de la convection naturelle et du retrait à la solidification à l'échelle industrielle. Le travail de thèse a pour but d'améliorer la description du couplage de la germination et de la croissance des grains dans ce modèle. La diffusion solutale, qui contrôle la croissance des grains, est ainsi modélisée par une longueur de diffusion prenant en compte à la fois l'avancée de l'interface grain-liquide et la convection de la phase liquide. A l'échelle microscopique, une troisième phase est également ajoutée afin d'améliorer la prédiction de la croissance des grains, notamment du développement de leur morphologie. Le modèle permet de prédire quantitativement la compétition entre germination et croissance à l'échelle microscopique. Le modèle est ensuite appliqué à des cas de coulée en lingot fixe et de coulée semi-continue afin d'étudier le couplage entre germination et croissance à l'échelle macroscopique, en présence de transport à la fois des grains, des germes et du soluté. Les prédictions du modèle sont comparées à des mesures expérimentales et permettent de mettre en évidence l'importance du transport, non seulement des grains mais également des germes, dans la formation des hétérogénéités. La prise en compte de la dendritisation des grains au cours de la solidification modifie également de façon importante les prédictions, même lorsque leur morphologie finale est globulaire.

**Mots-clés :** solidification, modélisation, microstructures, macroségrégations, germination, croissance.

### **Study of the formation of solidification structures and of macrosegregation in direct chill casting of aluminium**

#### **Abstract**

During solidification of metallic alloy, heterogeneities of solute composition and microstructure size appear. Mathematical models are valuable tools in the understanding and the control of the formation of these heterogeneities, which are incompatible with industrial requirements. Worldwide, SOLID is the only solidification model that simultaneously accounts for inoculation, the growth and motion of grains, natural convection and solidification shrinkage. The aim of this thesis is to improve the modelling of the coupling of nucleation and grain growth in this model. The solute diffusion, which controls the grain growth, is modelled by a diffusion length that takes into account both the motion of the solid-liquid interface and the convection of the liquid. At the microscopic scale, a third phase is added in order to improve the prediction of the growth of grains, particularly of the development of their morphology. The model can quantitatively predict the competition between the nucleation on inoculant particles and the grain growth at the microscopic scale. The model is applied to solidification of a static ingot and to direct chill casting in order to study the inoculation-growth coupling at the macroscopic scale. At this scale, the transport of the grains, of inoculant particles and of solute are all considered and are fully coupled. Comparisons of the model predictions to experimental measurements show the fundamental role of the transport of inoculants and of grains in the formation of the heterogeneities. The consideration of the development of dendritic grain morphologies considerably influences the predictions, even when their final morphology is globular.

**Keywords:** solidification, modelling, microstructures, macrosegregations, nucleation, growth.