



**HAL**  
open science

# Modélisation de la formation des structures et des microporosités durant la solidification d'alliages d'aluminium

Laurent Heyvaert

► **To cite this version:**

Laurent Heyvaert. Modélisation de la formation des structures et des microporosités durant la solidification d'alliages d'aluminium. Autre. Université de Lorraine, 2015. Français. NNT : 2015LORR0265 . tel-01754552

**HAL Id: tel-01754552**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01754552v1>**

Submitted on 30 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 :

**Laurent Heyvaert**

---

## **Modélisation de la formation des structures et des microporosités durant la solidification d'alliages d'aluminium**

---

Thèse soutenue publiquement le 12 Novembre 2015 à Nancy devant le jury composé de :

Dr. Nathalie Mangelinck-Noël	Chargée de recherche CNRS IMN2P, Marseille, France	Rapporteur
Pr. Mohammed M'Hamdi	Directeur de recherche SINTEF, Oslo, Norvège	Rapporteur
Dr. Jacques Lacaze	Directeur de recherche CNRS CIRIMAT, Toulouse, France	Examineur
Dr. Emmanuel Waz	Ingénieur R&D Constellium, Voreppe, France	Invité
Pr. Hervé Combeau	Professeur des universités IJL, Nancy, France	Directeur de thèse
Dr. Miha Založnik	Chargé de recherche CNRS IJL, Nancy, France	Examineur

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

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



---

## Table des matières

Introduction.....	1
1.Objectif de la thèse.....	1
2.Le procédé de coulée semi-continue d'aluminium.....	2
Chapitre 1 : Bibliographie.....	5
1.La porosité dans les alliages d'aluminium.....	5
1.1.Origine de la porosité.....	5
1.2.La solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium et ses alliages.....	10
1.3.Interactions entre la porosité et les microstructures de solidification.....	18
1.4.Germination des pores.....	21
1.5.Modèles de courbure.....	27
1.6.Croissance des pores.....	29
1.7.Modélisation de la porosité dans les procédés de coulée.....	32
1.8.Étude sur l'influence du lithium.....	37
1.9.Conclusion sur l'étude bibliographique sur la porosité dans alliages d'aluminium.....	38
2.La macroségrégation et la microstructure en coulée semi-continue d'aluminium.....	39
2.1.Transfert de chaleur et écoulement multiphasique dans la coulée semi-continue	39
2.2.Microstructure en coulée semi-continu d'aluminium.....	45
2.3.La macroségrégation.....	47
2.4.Effet des paramètres de coulée sur la macroségrégation.....	53
2.5.Modélisation de la macroségrégation dans la coulée semi-continue d'aluminium.....	58
2.6.Conclusion sur la mise en place des structures de solidification.....	61
Chapitre 2 : Modèles : modification et création.....	63
1.Mouvement de la phase solide.....	63
1.1.Modèle précédemment implémenté dans SOLID.....	63
1.2.Modification du modèle.....	66
1.3.Résolution des équations de transport de quantité de mouvement pour les phases liquide et solide.....	71
1.4.Application en mécanique des fluides.....	75
2.Modèle de prédiction de la porosité en DCC.....	78
2.1.Création du modèle de prédiction de la porosité.....	78
2.2.Application à un cas 0D.....	85
2.3.Bilan modèle de porosité.....	88
Chapitre 3 : Prédiction de la macroségrégation et de la microstructure.....	89

---

1. Dynamique du mouvement des grains équiaxes dans la zone pâteuse.....	89
1.1. Description du cas d'étude.....	90
1.2. Analyse de l'écoulement diphasique dans la zone pâteuse.....	93
1.3. Influence du mouvement de la phase solide sur l'établissement de la macroségrégation.....	100
1.4. Conclusion sur le mouvement des grains.....	108
2. Rôle de la morphologie des grains équiaxes dans la mise en place de la macroségrégation.....	109
2.1. Présentation des résultats de l'étude originelle.....	109
2.2. Modélisation et paramètres.....	112
2.3. Formation de la macroségrégation dans le cas affiné.....	116
2.4. La billette non-affinée : influence de la microstructure sur la macroségrégation .....	127
2.5. Conclusions de l'étude sur l'influence de la morphologie des grains.....	132
3. Conclusions du chapitre.....	133
<b>Chapitre 4 : La porosité dans les alliages d'aluminium.....</b>	<b>134</b>
1. La porosité dans l'alliage Al-Mg-Mn.....	134
1.1. Présentation des résultats expérimentaux.....	134
1.2. Simulation de la solidification.....	137
1.3. Simulation de la porosité.....	141
1.4. Conclusion sur la validation du modèle.....	148
2. Étude numérique de la formation de la porosité.....	149
2.1. Étude paramétrique.....	149
3. Conclusions sur le développement de la porosité dans les alliages en coulée semi-continue.....	168
<b>Conclusions et perspectives.....</b>	<b>169</b>
<b>Annexes.....</b>	<b>171</b>
Annexe A : Moyenne volumique des équations de conservation.....	171
Annexe B : Implémentation du modèle de porosité dans Solid.....	180
<b>Références.....</b>	<b>186</b>

---

# Notations

## Notation latines

$a_H^m$	Coefficient d'activité de l'hydrogène dissout
$C_H^0$	Composition initiale en hydrogène dissout
$C_H^l$	Composition en hydrogène dissout du liquide
$C_H^s$	Composition en hydrogène dissout du solide
$C_D$	Coefficient de traînée
$DAS$	Dendrite Arm Spacing, Espacement entre bras de dendrite
$D_{contact}$	Diamètre des pores lors du contact avec le solide
$D_{equi}$	Diamètre équivalent sphérique des pores
$D_H$	Diffusion de l'hydrogène
$D_H^l$	Diffusion de l'hydrogène dans le liquide
$f_k$	Fraction massique de la phase k
$f_H^{l0}$	Coefficient d'activité de l'hydrogène dans l'Al liquide pur
$f_H^l$	Coefficient d'activité de l'hydrogène dans l'Al liquide
$Fo$	Nombre de Fourier
$g^r$	Exposant signifiant la valeur au transport
$g_{ep}$	Fraction volumique de blocage de la phase solide
$g_k$	Fraction volumique de la phase k
$G_{H_2}^m$	Énergie libre de Gibbs
$H$	Hydrogène dissout
$J_H^{H_2}$	Taux de changement de phase de l'hydrogène
$K$	Perméabilité
$K_H$	Constante de dissociation de l'hydrogène dans l'Al
$k_H$	Coefficient de partage de l'hydrogène
$l$	Indice de la phase liquide
$l_d$	Longueur de diffusion
$\vec{n}_k$	Normal au domaine k

$N_A$	Nombre d'Avogadro
$N_k$	Densité volumique de la phase k
$N_{grm}$	Densité de germe
$N^{src}$	Densité de germe activée
$p$	Indice de la phase pore
$P_0$	Pression de référence
$P_e$	Nombre de Péclet
$P_l$	Pression du liquide
$P_g$	Pression du gaz à l'intérieur du pore
$Q^{eau}$	Débit d'eau pour la condition limite de Weckman & Niesen
$\mathfrak{R}$	Constante des gaz parfaits
$Re_p$	Nombre de Reynolds particulaire
$r_{courb}$	Rayon de courbure du pore
$r_{critq}$	Rayon critique de germination
$r_{equi}^{sph}$	Rayon équivalent sphérique des pores
$r_{gmr}$	Rayon des germes
$r_p$	Rayon du pore
$s$	Indice de la phase solide
$S_p^{ech}$	Surface d'échange entre le pore et le liquide
$S_V$	Constante de Sievert
$St$	Nombre de Stokes
$T$	Température
$tr$	Exposant signifiant la valeur à la croissance
$\vec{u}_k$	Vitesse de la phase k
$\langle \vec{u}_k \rangle$	Vitesse moyenne de la phase k
$\langle \vec{u}_k \rangle^k$	Vitesse intrinsèque moyenne de la phase k
$\vec{w}_i$	Vitesse de l'interface
$X_H^l$	Solubilité de l'hydrogène à l'équilibre dans le liquide
$X_H^s$	Solubilité de l'hydrogène à l'équilibre dans le solide
$X_H^{gmr}$	Solubilité de l'hydrogène à l'équilibre par rapport aux germes



---

## Notations grecques

$\alpha_H$	Saturation en hydrogène dissout
$\beta$	Retrait de solidification, $\beta = (\rho_s - \rho_l) / \rho_l$
$\lambda_1$	Distance entre bras primaires
$\lambda_2$	Distance entre bras secondaire
$\Delta t_{mac}$	Macro pas de temps
$\Delta t_{mic}$	Micro pas de temps
$\gamma_{l/g}$	Tension superficielle entre le liquide et le gaz
$\gamma_H$	Sursaturation en hydrogène dissout
$\gamma_k$	Fonction indicatrice de phase
$\Phi_{oxy}$	Densité de flux de d'oxydes
$\mu_H^m$	Potentiel chimique de l'hydrogène dissout
$\mu_k$	Viscosité dynamique de la phase k
$\nu_k$	Viscosité cinématique de la phase k
$\rho_k$	Masse volumique de la phase k
$\bar{\bar{T}}$	Tenseur des contraintes

---

# Introduction

## 1. Objectif de la thèse

Depuis les premiers chocs pétroliers dans les années 1970, l'ensemble des industries s'est concentré sur le contrôle de leur consommations d'énergie. Les années de pétrole cher et la prise de conscience de la raréfaction de la ressource ont mené à des développements se concentrant sur la réduction de la consommation. Cette réduction peut se faire par plusieurs approches : une alternative qui serait moins énergivore (développement des réseaux de transports en commun), une amélioration des rendements (avec une meilleure régulation par exemple) ou une diminution du besoin énergétique pour remplir la même fonction. Celle-ci peut se réaliser par un allègement des structures. C'est une des voies où l'industrie aéronautique s'est engagée en faisant appel à des matériaux plus légers. L'allègement des structures par l'usage de nouveaux alliages peut se réaliser par deux moyens : l'utilisation de produits plus légers avec des caractéristiques équivalentes mais aussi l'utilisation de produits plus épais qui diminuent les procédés de montages supplémentaires (l'utilisation de rivets par exemple).

Mon travail de thèse s'insère dans le projet PRINCIPIA (PRocédés INdustriels de Coulée Innovants Pour l'Industrie Aéronautique) de l'ANR MATETPRO qui consiste à participer au développement de nouveaux alliages d'aluminium dans l'industrie aéronautique. Ces nouveaux alliages qui nous intéressent sont des alliages de la famille AlCuLi. La présence de lithium dans ces alliages amène des nouvelles problématiques : une plus grande présence d'inclusion, à cause de l'oxydabilité du lithium, ainsi qu'une porosité plus importante dans le produit final. Cette problématique de la porosité a été centrale dans le travail que j'ai réalisé, de par l'étude de l'environnement et des conditions de croissance des pores.

Ce manuscrit commencera par une rapide description du procédé de coulée semi-continue d'aluminium. C'est le procédé le plus utilisé afin de couler les plaques ou billettes qui sont ensuite laminées jusqu'à la taille du produit final. Cette description introduira deux défauts inhérents à ce procédé : la macroségrégation et la porosité. Le manuscrit se poursuivra sur une bibliographie de ces deux phénomènes. La macroségrégation et la mise en place des structures de solidification forment les conditions de croissance des pores. C'est pourquoi la première partie du travail effectué concernera la solidification en coulée semi-continue. Enfin, nous étudierons le développement de la porosité à l'aide d'un modèle que nous avons développé.

## 2. Le procédé de coulée semi-continue d'aluminium

Le procédé de Coulée Semi-Continue d'aluminium doit son nom au fait que l'extraction du solide est réalisée en même temps que l'injection du métal liquide. Ce procédé porte un autre nom dans les pays anglosaxons : 'direct-chill (DC) casting'. Ce nom montre bien une autre caractéristique de ce procédé : une fois qu'une coquille de solide s'est formée près du moule, le refroidissement est directement réalisé par un jet d'eau qui ruisselle sur le métal solide. Ce procédé a été inventé pendant les années 30 presque simultanément en Allemagne par VAW et au USA par ALCOA.

Deux types de produits sont communément réalisés par cette technique, des plaques et des billettes. Les plaques sont des produits rectangulaires d'une épaisseur de typiquement 500 mm et d'une largeur d'environ 1500 à 2000 mm. La longueur du produit final peut être de plusieurs mètres. Les plaques sont ensuite laminées pour former des produits adaptés à l'utilisation finale, du revêtement pour aéronautique à de la feuille d'aluminium alimentaire. Les billettes sont des produits cylindriques d'un diamètre pouvant atteindre le mètre. Ces billettes sont ensuite transformées pour former différents produits tels que des barres, des tubes ou bien du fil.

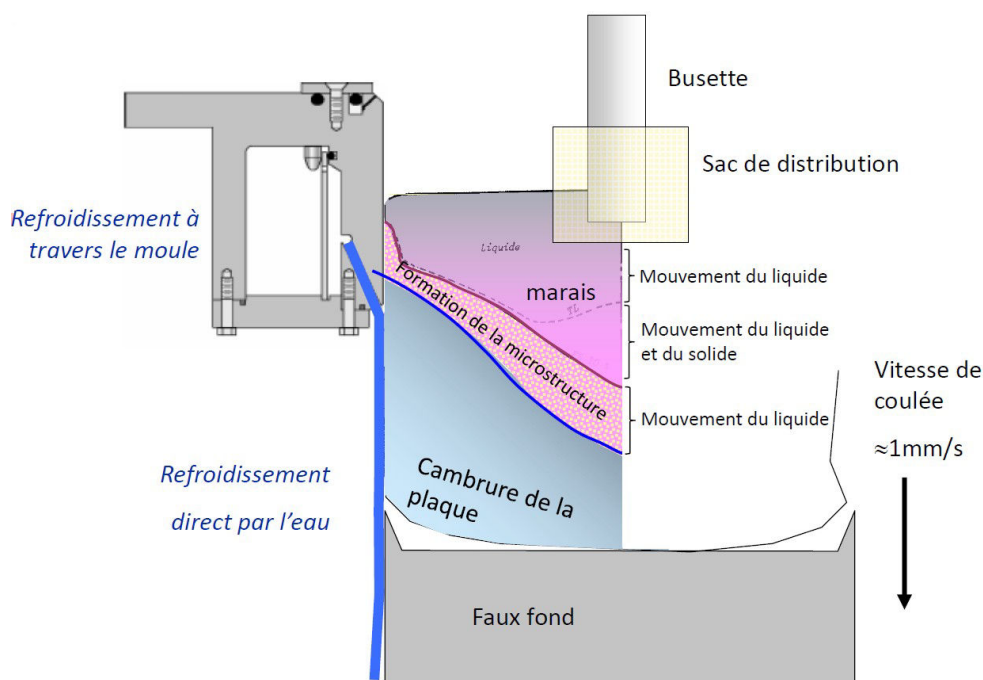


Figure 1 : Schéma du procédé de coulée continue, le liquide est injecté par la partie supérieure du moule, après une première solidification induite par le refroidissement primaire du moule, l'extraction de la chaleur est réalisée par un ruissellement d'eau directement à la surface du produit. (Schéma d'après Založnik [2006])

Pendant la coulée semi-continue le métal liquide est versé dans le moule refroidi. Initialement, le moule est fermé par le faux-fond . Lorsqu'une coquille de solide s'est formée près des parois du moule, le faux-fond est tiré par un vérin à une vitesse  $V_{cast}$  qui détermine la vitesse de coulée. Lors de cette phase, le niveau de métal liquide dans le moule est maintenu constant. Alors que le métal est solide près des parois, le centre de la plaque est toujours en cours de solidification.

Le refroidissement complet de la plaque est assuré par le contact direct de la paroi solide et d'un jet d'eau. Ce refroidissement secondaire assure la majorité de l'extraction de chaleur nécessaire à la solidification complète. En général, pour des dimensions commerciales, le refroidissement imposé en coulée semi-continue entraîne des taux de refroidissement de l'ordre de 0,5 à 10 K/s [Nadella et al. 2008a].

La figure 1 représente l'état du métal lorsque le régime permanent est atteint. Le solide près de la paroi est formé par le moule refroidi, puis le refroidissement secondaire assure une extraction de chaleur suffisante pour amener le métal sous la température du solidus. Lors de la solidification, plusieurs écoulements interviennent, leur nature sera discutée dans la bibliographie, chapitre 1 page 39.

La qualité finale d'une plaque se mesure selon plusieurs critères. L'état de surface et de la sous-surface est important car un mauvais état peut entraîner la nécessité d'un scalpage, la suppression d'une épaisseur sur toute la surface du produit. Cette opération amène à une perte de productivité. Le développement de différentes technologies de moules et le contrôle des paramètres ont permis de contrôler ce type de défaut.

Le contrôle de la microstructure est une importante source de recherche pour la solidification. Dans la coulée semi-continue d'aluminium, l'adjonction de particules affinantes permet de favoriser une taille des grains faible et une structure équiaxe. Le processus de germination et de croissance des grains est encore un domaine de recherche actif.

La macroségrégation est une hétérogénéité de composition chimique à l'échelle du produit. La macroségrégation est toujours présente dans les produits de grandes tailles. C'est un défaut irréparable car le temps nécessaire à une homogénéisation en composition à l'échelle du produit n'est pas concevable. La diffusion des éléments dans la phase solide est de l'ordre de  $10^{-12} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ , pour une longueur de 1m, le temps de diffusion est donc de l'ordre de  $10^{12}$  s ou bien environ 30 000 ans. Cette hétérogénéité de composition entraîne directement des hétérogénéités de propriétés mécaniques.

La porosité peut aussi devenir un problème dans certaine gamme de produit. La porosité dans les alliages d'aluminium est engendrée principalement par la précipitation sous forme gazeuse de l'hydrogène dissout présent dans le liquide. Lorsque le produit final est amené à être largement laminé la porosité est un défaut acceptable, car elle se retrouve comprimée. Mais lorsque le produit est amené à n'être que faiblement laminé, afin de proposer des

produits finaux épais, les pores sont dommageables pour la résistance mécanique et la fatigue.

Les principaux paramètres du procédé sont la vitesse de coulée, le débit d'eau pour le refroidissement secondaire et la température d'introduction du métal liquide (la surchauffe). Chaque alliage et taille de produit possèdent leurs propres optimum pour ces paramètres. Généralement, la vitesse de coulée est de l'ordre de 2 à 20 cm/min, le débit d'eau de 2000 à 4000 mm<sup>3</sup>/min par mm de périmètre [Grandfield & McGlade 1996] et la température d'introduction varie de 690 à 725 °C.

# Chapitre 1 : Bibliographie

Dans cette bibliographie, nous nous intéresserons dans un premier temps à la porosité. Cette partie s'attachera à décrire les raisons de son apparition puis les moyens utilisés dans la littérature pour la modéliser. Nous verrons que le développement de la porosité est intrinsèquement lié à celui des microstructures et de la composition chimique locale. C'est pourquoi la seconde partie de cette bibliographie sera centrée sur l'établissement des structures de solidification en coulée semi-continue avec la macroségrégation et la microstructure.

## 1. La porosité dans les alliages d'aluminium

La porosité est un manque de matière solide. Elle a pour effet de rendre discontinue la phase solide. Ces discontinuités amènent à une dégradation des propriétés mécaniques et à une réduction de la durée de vie des pièces. Par ses effets néfastes, la porosité est une problématique majeure pour l'industrie de l'aluminium. La réduction de la porosité permettrait à cette industrie d'améliorer les propriétés des matériaux qu'elle propose. La porosité, dans les alliages d'aluminium, résulte d'une formation de pores gazeux lors de la solidification. Dans l'aluminium, le gaz responsable de l'apparition de la porosité est l'hydrogène car sa solubilité est supérieure de plusieurs ordres par rapport à celle des autres gaz présents dans l'atmosphère et susceptibles d'être solubles (argon, hélium, oxygène...).

### 1.1. Origine de la porosité

On peut remonter à l'origine de la porosité bien avant la solidification. En effet, lors de la coulée, l'aluminium est à l'état liquide pendant le temps de maintien dans les différents fours puis pendant le temps de transit vers le puits de coulée. L'aluminium en phase liquide a alors tendance à se mettre en équilibre thermodynamique avec l'hydrogène présent dans son environnement immédiat. La principale source d'hydrogène est la réduction de l'humidité par la réaction d'oxydation de l'aluminium ( $3H_2O + 2Al_{liq} \rightarrow Al_2O_3 + 3H_2$ ) qui libère de l'hydrogène. La principale source d'humidité est l'air ambiant, mais d'autres sources d'humidité peuvent être présentes, comme par exemple un relâchement d'humidité par les goulottes d'acheminement de l'aluminium.

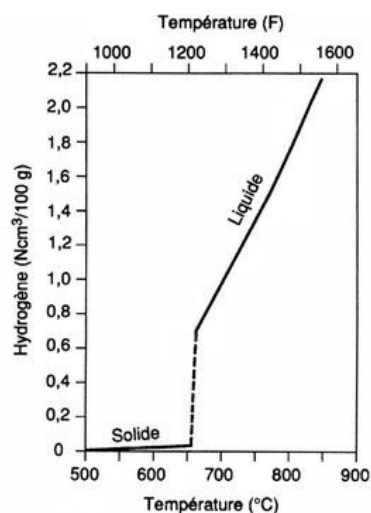


Figure 1.1 : Limite de solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium pur en fonction de la température (source : techniques de l'ingénieur; J. Charbonnier; Gaz dans les alliages d'aluminium de fonderie Fig. 11 ). 1Ncm<sup>3</sup> correspond à 1 cm<sup>3</sup> de gaz mesuré dans les conditions normales de température (°C) et de pression (10<sup>5</sup> Pa).

L'aluminium liquide arrive donc au procédé de coulée avec de l'hydrogène en solution. Une différence de solubilité, figure 1.1, entre la phase liquide et la phase solide de l'aluminium entraîne une partition de l'hydrogène lors de la solidification. La solubilité dans le solide étant beaucoup plus faible que dans le liquide, il en résulte une augmentation de la concentration en hydrogène dissout dans le liquide. La figure 1.1 montre ce saut de solubilité entre la phase liquide et solide pour l'aluminium pur.

Si lors de la solidification, la concentration en hydrogène dissout dans le liquide devient supérieure à la limite de solubilité, le liquide est alors saturé en hydrogène et des pores peuvent se former. La limite de solubilité est dépendante de la pression, de la température mais aussi de la composition en élément de l'alliage. Néanmoins, l'état saturé du liquide n'est pas suffisant pour former des pores. Pour qu'un pore d'hydrogène puisse se former, un mécanisme de germination doit s'opérer. Ce processus de germination est encore méconnu et fait encore l'objet de nombreuses études et hypothèses.

La croissance de la porosité étant simultanée à celle de la phase solide, la taille et la morphologie des microstructures ainsi que la cinétique de leur croissance sont importantes pour le développement de la morphologie des pores. L'impact de la croissance de la phase solide sur la porosité est donc un aspect très important et doit être pris en compte.



### 1.1.1 Caractérisation de la porosité

La morphologie des pores observés est très différente en fonction de la morphologie de la microstructure de solidification, colonnaire ou équiaxe, figure 1.2. Dans une zone colonnaire, un pore a tendance à prendre une forme allongée, alors qu'il prend une forme plus sphérique en présence de grains équiaxes.

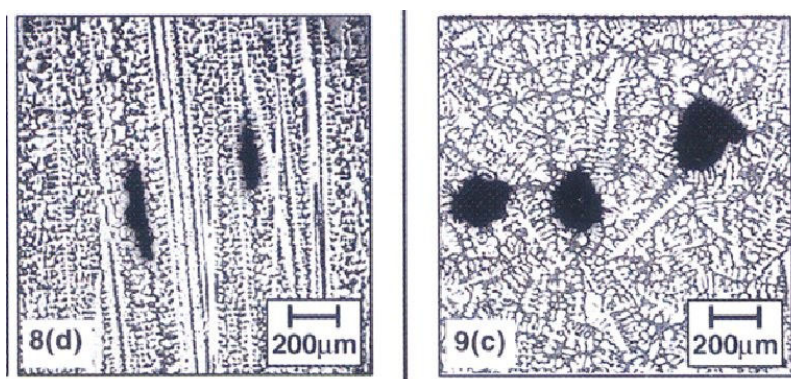


Figure 1.2 : Morphologie des pores pour une microstructure colonnaire (8(d)) et équiaxe (9(c)), observations réalisées sur deux alliages d'Al-Cu, d'après Lee et Hunt [1997a].

Tableau 1.1 : Influence de l'augmentation d'un paramètre sur la taille des pores et la fraction de porosité.

	Taille	Frac. pore
Atwood et al. [2000] Vit. de solidification	Expérience + modèle, Al-7Si <b>Diminue</b>	
Carpentier [1994] Vit. de solidification H initial, $C_H^0$	Expérience, Al-Si <b>Diminue</b> <b>Augmente</b>	
Escobar de Obaldia et Felicelli [2007] Vit. de solidification H initial, $C_H^0$	Expérience, Al-Si (A356)	<b>Diminue</b> <b>Augmente</b>
Kim et Abbaschian [2011] Vit. de solidification H initial, $C_H^0$	Expérience + modèle, Al-4.5Cu	<b>Diminue</b> <b>Augmente</b>
Kubo et Pehlke [1985] Vit. de solidification	Modèle, Al-Cu <b>Diminue</b>	<b>Diminue</b>
Lee et Hunt [1997a] Vit. de solidification Composition Cu	Expérience + modèle, Al-Cu <b>Diminue</b>	<b>Augmente</b>

Lee et al. [2002]	Exp. + modèle, Al-Mg		
H initial, $C_H^0$		<b>Augmente</b>	
Composition Mg		<b>Diminue</b>	
Melo et al. [2004]	Exp. + modèle, Al-Cu		
Vit. de solidification		<b>Diminue</b>	
H initial, $C_H^0$		<b>Augmente</b>	
Nagaumi [2001]	Exp. + modèle, Al-Mg		
Vit. de solidification		<b>Diminue</b>	
Saikawa et al. [1999]	Exp., Al-Mg et Al-Li-Mg		
H initial, $C_H^0$		<b>Augmente</b>	<b>Augmente</b>
Yao et al. [2012]	Exp. + modèle, Al-Si		
Vit. de solidification		<b>Diminue</b>	
H initial, $C_H^0$		<b>Augmente</b>	

L'influence de différents paramètres sur la porosité est résumée dans le tableau 1.1. La vitesse de solidification et la quantité initiale en hydrogène dissout sont deux paramètres plusieurs fois étudiés dans la littérature et les résultats de la littérature sont en accord. Ils ont tous les deux une influence directe sur la taille des pores et la fraction volumique de porosité. Lorsqu'on augmente la vitesse de solidification, la taille des pores diminue. Une explication avancée est que la structure de solidification devient plus fine et contraint ainsi la taille des pores. On peut aussi avancer qu'une solidification rapide laisse moins de temps à l'hydrogène dissout pour se diffuser vers les pores. Le taux initial d'hydrogène a un impact direct sur la porosité en augmentant aussi bien la taille des pores que la fraction volumique. C'est pour cette raison que beaucoup de soin est apporté pour réduire au maximum ce taux avant la coulée.

Le taux initial d'hydrogène dissout est aussi un élément pouvant influencer la morphologie de la porosité. Saikawa et al. [1999], figure 1.3, reportent une différence de forme en fonction du gazage initial. Avec une plus forte concentration en hydrogène initiale, le pore tend à une forme sphérique, figure 1.3.b. En revanche les pores deviennent plus plats et épousent les contours des grains lorsque la concentration initiale est plus faible, figure 1.3.a.

Avec une concentration initiale plus importante, la germination aurait lieu plutôt pendant la solidification. Le pore aurait donc plus d'espace et de temps pour croître.

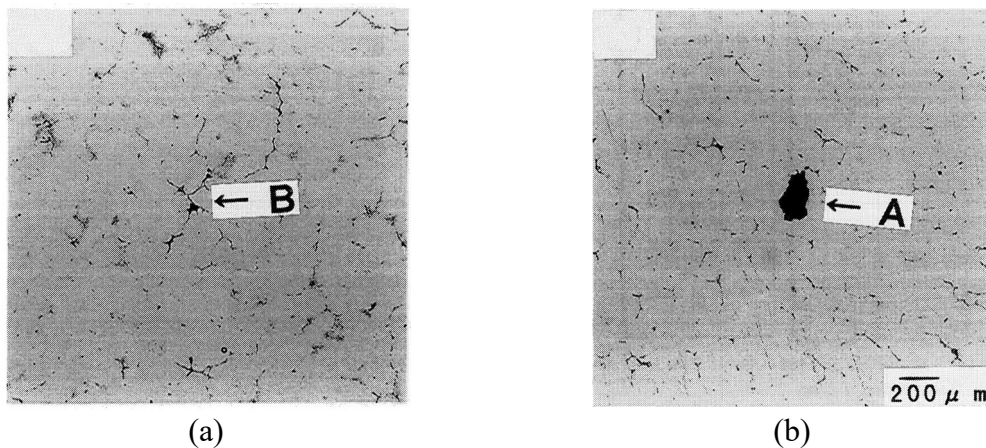


Figure 1.3 : Différence de morphologie en fonction du taux de gazage initial 1.05 (a) et 1.23 (b)  $\cdot 10^{-7}$  [m<sup>3</sup>/kg] dans un alliage Al-2.36Li-1.76Mg-0.15Zr-0.11Ti [wt.%] d'après Saikawa et al. [1999].

Plusieurs critères sont utilisés pour caractériser la porosité, notamment la fraction volumique de porosité ( $g_p$ ) et la taille des pores. Lorsque les pores prennent une forme tortueuse, il est difficile de donner une taille représentative. On peut alors utiliser la notion de rayon/diamètre sphérique équivalent où le volume des pores est ramené à une sphère. Une autre caractéristique importante est 'la grande longueur', c'est la plus grande droite pouvant être tracée à l'intérieur du pore. L'importance de ce critère provient de la plus grande fragilité amenée par la présence de plus gros pores. À fraction de pore égale, une porosité plus fine aura moins d'impact sur les caractéristiques mécaniques.

Plusieurs méthodes sont utilisées pour quantifier la porosité, la plus simple étant l'observation optique sur des échantillons. Cette technique couplée au traitement d'image et en prenant certaines hypothèses, notamment sur le passage du 2D à la 3D, permet d'obtenir une fraction de pore, une distribution de tailles et une densité. Une technique simple pour calculer la fraction de pore est de mesurer la masse volumique apparente et la masse volumique théorique d'un échantillon. La connaissance de ces deux masses volumiques permet de calculer la fraction de pore. La tomographie X, [Salvo et al. 2003], est de plus en plus utilisée pour observer la porosité, car cette technique permet une visualisation de la porosité qui permet de calculer avec précision les tailles caractéristiques, la densité et la fraction de pore. La taille des échantillons est le facteur limitant de cette technique. Les ultrasons sont aussi utilisés dans la mesure de la porosité, pour traiter des pièces de dimensions industrielles et de manière non destructive. Cependant la réponse des ultrasons n'est pas nécessairement liée uniquement à la porosité. En effet, la présence d'impuretés (par exemples des oxydes) est une source de réponse pour les ultrasons.

Ces travaux montrent que la solubilité et la morphologie de croissance du solide dans la zone pâteuse sont deux éléments importants pour la compréhension des phénomènes provoquant la formation de porosités dans les alliages d'aluminium. Nous continuerons donc cette bibliographie avec la théorie thermodynamique de la solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium et ses alliages, par un état des lieux sur les données expérimentales disponibles et par les approches de modélisation. Puis, nous nous intéresserons à la relation entre le pore et la microstructure qui l'entoure en introduisant la notion de rayon de courbure. Ces notions sont essentielles pour comprendre l'influence de la taille de la microstructure sur la germination et la croissance des pores.

## 1.2. La solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium et ses alliages

### 1.2.1 Théorie

La présence d'hydrogène en solution dans les alliages d'aluminium provient principalement de la réaction entre l'humidité présente dans l'environnement et l'aluminium liquide. De cette réaction, il résulte une formation d'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et de dihydrogène  $\text{H}_2$  :



Le dihydrogène ainsi libéré peut être dissout dans l'aluminium liquide en suivant la réaction :



Un équilibre se crée entre le dihydrogène gazeux formé et l'hydrogène en solution dans l'aluminium liquide. Cet équilibre est contrôlé par différents paramètres thermodynamiques. L'énergie libre de Gibbs de la réaction (1.2) est donnée par :

$$G_{\text{H}_2}^m(T, p_g) - 2\mu_{\underline{\text{H}}}^m(T, P_g) = 0 \quad (1.3)$$

L'indice  $m$  indique que c'est la valeur molaire qui est utilisée pour l'énergie libre de Gibbs et le potentiel chimique. Le potentiel chimique pour l'hydrogène dissout dans le liquide,  $\mu_{\underline{\text{H}}}^m$ , peut être obtenu à partir de sa valeur dans son état naturel non dissout ( $G_{\text{H}}^{m0}$ ), en négligeant la dépendance du coefficient d'activité de l'hydrogène,  $a_{\underline{\text{H}}}^l$ , à la pression :

$$\mu_{\underline{\text{H}}}^m(T, P_g) = G_{\text{H}}^{m0}(T, P_g) + \mathcal{R} T \ln a_{\underline{\text{H}}}^l(T, X_{\text{H}}) \quad (1.4)$$

L'équation (1.4) dans l'équation (1.3) donne :

$$\begin{aligned} G_{H_2}^m(T, P_g) - 2G_H^m(T, P_g) &= 2\Re T \ln a_H^l \\ \Delta G_{H_2}^m(T, P_g) &= \Re T \ln (a_H^l)^2 \end{aligned} \quad (1.5)$$

où  $\Delta G_{H_2}^m(T, P_g)$  donne l'énergie libre de formation pour  $H_2$  à la pression  $P_g$ . Si l'on considère l'hydrogène comme un gaz parfait, on peut alors utiliser l'équation des gaz parfaits pour introduire l'effet de la pression dans l'équation (1.6) :

$$\begin{aligned} \Delta G_{H_2}^m(T, P_g) &= \Delta G_{H_2}^m(T, p_0) + \int_{p_0}^{P_g} V^m dp \\ &= \Delta G_{H_2}^m(T, p_0) + \int_{p_0}^{P_g} \Re \frac{T}{P} dp \\ &= \Delta G_{H_2}^m(T, p_0) + \Re T \ln \frac{P_g}{P_0} \end{aligned} \quad (1.6)$$

où  $\Delta G_{H_2}^m(T, p_0)$  donne l'énergie libre de formation de l'hydrogène gazeux à la pression de référence  $P_0$ . En combinant l'équation (1.5) et (1.6), on peut écrire :

$$\begin{aligned} \Re T \ln (a_H^l)^2 &= \Delta G_{H_2}^m(T, p_0) + \Re T \ln \frac{P_g}{P_0} \\ \frac{P_g}{P_0} &= (a_H^l)^2 \exp \frac{-\Delta G_{H_2}^m(T, p_0)}{\Re T} \end{aligned} \quad (1.7)$$

La loi de Raoult permet de décrire l'activité de l'hydrogène dans le liquide :

$$a_H^l = f_H^0 X_H^l \quad (1.8)$$

où  $f_H^0$  est le coefficient d'activité de l'hydrogène dans le liquide pur et  $X_H^l$  la solubilité de l'hydrogène dans le liquide. En redéfinissant  $\Delta G_{H_2}^m(T, p_0)$  en termes d'enthalpie,  $\Delta H_{H_2}^m$ , et d'entropie de formation,  $\Delta S_{H_2}^m$ , ( $\Delta G = \Delta H + T \Delta S$ ) et en utilisant la loi de Raoult pour décrire l'activité de l'hydrogène dans le liquide, on peut réécrire l'équation (1.8) comme :

$$\frac{P_g}{P_0} = \left( A_{H_2} \exp \frac{-\Delta H_{H_2}^m(T, P_0)}{\Re T} \right) (X_H^l)^2 \quad (1.9)$$

avec

$$A_{H_2} = \exp \frac{-\Delta S_{H_2}^m(T, P_0)}{\Re} (f_H^0)^2 \quad (1.10)$$

L'équation (1.9) peut se mettre sous une autre forme pour retrouver la loi de Sievert :

$$X_H^l = (A_{H_2})^{(-1/2)} \exp \frac{\Delta H_{H_2}^m}{2 \mathfrak{R} T} \sqrt{\frac{P_g}{P_0}} \quad (1.11)$$

ou encore :

$$X_H^l = S_V(T) \sqrt{\frac{P_g}{P_0}} \quad (1.12)$$

avec la constante de Sievert  $S_V(T) = (A_{H_2})^{(-1/2)} \exp \frac{\Delta H_{H_2}^m}{2 \mathfrak{R} T}$

De la loi de Sievert, équation (1.12), on peut remarquer que la solubilité est sensible à la racine carré de la pression du gaz (cette dépendance est toujours vraie pour les gaz diatomiques) et que la solubilité décroît exponentiellement avec la température. Pour l'aluminium pur,  $\Delta H_{H_2}^m = -97645 \text{ J.mol}^{-1}$  et  $A_{H_2} = 10^4$  [Sigworth & Engh 1982].

La solubilité en hydrogène de la phase solide peut être calculée en utilisant le coefficient de partage :

$$k_H = \frac{X_H^s}{X_H^l} \quad (1.13)$$

Différentes valeurs du coefficient de partage utilisées dans la littérature sont résumées dans le tableau 1.2. Ce coefficient de partage, est souvent pris égal à 0,07, la valeur pour l'aluminium liquide.

Tableau 1.2 : Valeurs du coefficient de partage d'équilibre solide-liquide pour l'hydrogène dissout issus de la littérature

Auteur	Système	Coefficient de partage
Karagadde et al. [2009]	Al-Si	0,05
Lee et Hunt [2001]	Al-Cu	0,10
Atwood et Lee [2003]	Al-Si	0,10
Ferreira et al. [2010]	Al-Cu-Si & Al-Cu-Si	0,049
Felberbaum et Rappaz [2011]	Al-Cu	0,07
Sabau et Viswanathan [2008]	Al-Si	0,069

Remarque sur la saturation et la sursaturation :

La saturation est simplement le rapport entre la concentration de l'élément et sa concentration à l'équilibre (sa solubilité à la même température et pression) :

$$\alpha_H = \frac{C_H}{X_H^{eq}} \quad (1.14)$$

avec,  $\alpha_H$  la saturation,  $C_H$  la concentration et  $X_H^{eq}$  la solubilité.

La sursaturation  $\gamma_H$  qui équivaut à  $\alpha_H - 1$ , représente l'excès en élément par rapport à sa solubilité. Si  $\gamma_H$  est supérieur à zéro, alors la solution est sursaturée, on est hors équilibre.

1.2.2 *Mesure de la solubilité*Données pour l'aluminium pur :

Le dispositif de Sievert est le principal moyen utilisé pour mesurer la solubilité d'un gaz. Ce dispositif repose sur la mesure de la variation de pression engendrée par l'absorption du gaz. Le fonctionnement d'un dispositif de Sievert est expliqué dans Liu et al. [1995].

Beaucoup de résultats sont disponibles dans la littérature concernant la solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium pur. Cependant, comme le montrent Liu et al. [1995] et Harvey et Chartrand [2010], il existe une grande disparité de résultats, voir tableau 1.3. Cette disparité peut s'expliquer par les difficultés opérationnelles du dispositif de Sievert. Aux difficultés inhérentes à ce dispositif, le cas de l'aluminium liquide ajoute des perturbations d'origine thermique provenant du système de chauffe. La solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium pur a pourtant fait l'objet de nombreuses études expérimentales.

*Tableau 1.3 : Différentes valeurs de solubilité dans l'aluminium pur, (d'après Liu et al. [1995])*

Référence	Solubilité [ml/100g]
Rontgen et Braun (1932)	0,08
Bauklosh et Oesterlen (1938)	0,95
Bauklosh et Redjali (1942)	0,45
Ransley et Neufeld (1948)	0,91
Opie et Grant (1950)	1,00
Eichnauer et al. (1961)	0,62
Talbot et Anyalebechi (1988)	0,88

Plusieurs lois d'évolution de la solubilité basées sur les résultats expérimentaux ont été proposées. Anyalebechi [1995] a proposé une régression linéaire, équation (1.15), d'un ensemble de résultats publiés dans la littérature et considérés comme fiables par l'auteur :

$$\log_{10}(\text{wt. \% } \underline{H})_{Al-H} = \frac{(-2691.96 K)}{T} - 1.32 \quad (1.15)$$

D'un point de vue général, bien que la solubilité de l'hydrogène soit la plus élevée parmi celles des autres gaz, elle reste relativement faible, de l'ordre de 1ppm. Cette faible solubilité, pourtant responsable de la porosité, est une des raisons des difficultés rencontrées par les expérimentateurs.

#### Données pour des alliages binaires :

Anyalebechi [1995] a résumé les différents résultats expérimentaux présents dans la littérature et concernant la solubilité dans des alliages binaires Al-X, figure 1.4. Les deux graphiques, figure 1.4, montrent l'évolution de la solubilité en fonction de la composition pour plusieurs éléments. Les éléments sont séparés en deux catégories, ceux qui ont tendance à augmenter la solubilité de l'hydrogène (Lithium, Magnésium, Titane, Zinc) et ceux qui l'abaissent (Silicium, Cuivre, Fer).

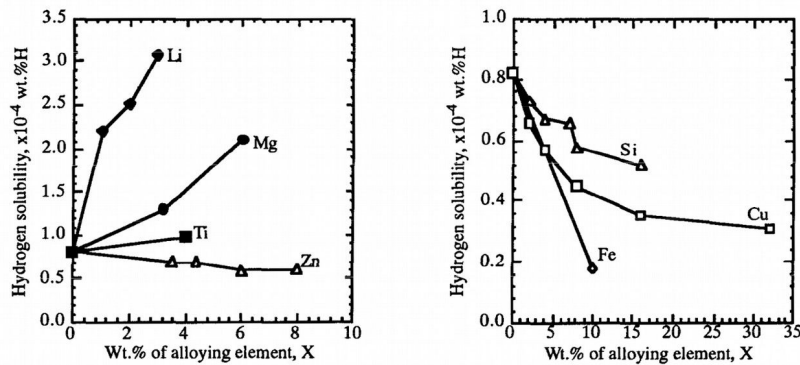


Figure 1.4 : Évolution de la solubilité en hydrogène pour des alliages binaires Al-X à 973 [K] sous une pression partielle d'hydrogène de 101.3 [kPa], d'après Anyalebechi [1995].



Données pour des alliages multi-constitués :

La solubilité de l'hydrogène dans les alliages multi-constitués n'a pas fait l'objet de beaucoup d'études expérimentales, donc peu de résultats sont disponibles. Anyalebechi [1996], énumère les différents résultats disponibles dans la littérature, tableau 1.4.

*Tableau 1.4 : Différentes valeurs de solubilité d'hydrogène mesurées dans des alliages d'aluminium sous 1 [atm] de pression partielle d'hydrogène pour différentes températures, d'après Anyalebechi [1996].*

Solubilité de l'hydrogène $\cdot 10^{-4}$ [wt.%]				
973 K	1023 K	1073 K	1123 K	Référence
0.72	0.89	1.08	1.29	Anyalebechi [1993] Alliage 7050 : Al-6.4Zn- 2.35Mg-2.2Cu-0.12Zr
0.55	0.74	0.98	1.26	Ransley et Talbot [1955] Alliage 2090 : Al-2.57Cu- 1.99Li
0.57	0.72	0.90	1.11	Ransley et Talbot [1955] Duralumin A : Al-4.4Cu- 0.88Mg-0.54Si
4.60	6.07	7.82	9.84	Sargent [1989] Duralumin B : Al-4.55Cu- 0.49Mg-0.69Si

Il a été constaté que les effets des éléments d'alliage sur la solubilité de l'hydrogène ne sont pas linéaires. Anyalebechi a réalisé une série d'expériences sur le ternaire Al-Cu-Li. La solubilité a été mesurée dans les mêmes conditions pour l'aluminium pur, l'alliage binaire Al-2Cu [wt.%], l'alliage binaire Al-2Li [wt.%] et l'alliage ternaire 2090 Al-2.57Cu-2Li [wt.%]. L'objectif de cette étude était d'observer l'interaction entre les principaux éléments de l'alliage 2090. Si les effets des éléments étaient additifs, la solubilité en l'hydrogène de l'alliage 2090 devrait se situer entre la solubilité des deux binaires, figure 1.4. Cependant l'expérience de Anyalebechi montre une solubilité dans le ternaire plus importante que celle dans le binaire Al-Li, figure 1.5. Cela prouve une interaction entre le cuivre et le lithium qui a pour effet d'augmenter la solubilité. Cette interaction entre le cuivre et le lithium sur la solubilité n'est toujours pas bien comprise.

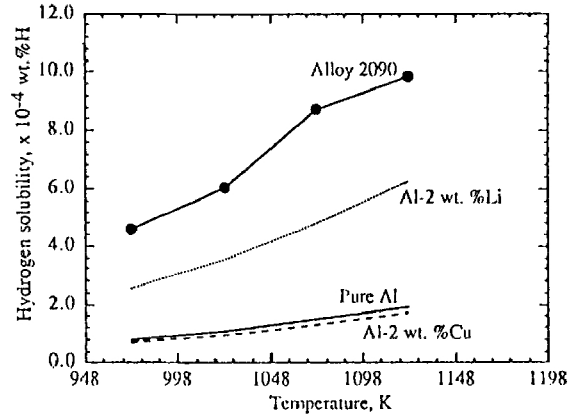


Figure 1.5 : Solubilité de l'hydrogène expérimentalement déterminée dans l'Al pur, l'Al-2wt.%Cu, l'Al-2wt.%Li, et l'alliage 2090 (Al-2.57Cu-1.99Li) à 101.3 [kPa] de pression partielle d'hydrogène, d'après Anyalebechi [1996].

### 1.2.3 Modélisation de la solubilité

Plusieurs modèles thermodynamiques ont été utilisés pour obtenir des valeurs de solubilité, une revue de ces modèles est disponible dans Harvey et Chartrand [2010]. Mais le modèle WIPF (Wagner's interaction parameters formalism), par sa formulation simple, est préféré par l'ensemble des auteurs ayant proposé un modèle de prédiction de la porosité.

Selon Sigworth et Engh [1982], le coefficient d'activité de l'hydrogène évolue en fonction de la composition de l'alliage. Cet effet est incorporé dans la loi de Sievert par le modèle WIPF en substituant le coefficient d'activité de l'hydrogène dans le liquide pur,  $(f_{HI}^0)^2$  dans l'équation (1.10), par :

$$f_{\underline{H}}^l = f_{\underline{H}}^0 10^c \quad (1.16)$$

avec

$$c = \sum_{i=1}^{N_{\text{elt}}} e_H^i C_i^l + r_H^i (C_i^l)^2 \quad (1.17)$$

Dans la relation (1.17),  $C_i^l$  est la composition en élément  $i$  du liquide,  $e_H^i$  et  $r_H^i$  sont les coefficients d'interactions du premier et du second ordre entre l'élément et la solubilité de l'hydrogène.

Tableau 1.5 : Coefficients d'interactions du premier et second ordre pour l'effet des éléments d'alliages sur la solubilité de l'hydrogène, valeurs en [wt.%<sup>-1</sup>], d'après Dantzig et Rappaz [2009]

Élément I	$e_H^i$ [wt.% <sup>-1</sup> ]	$r_H^i$ [wt.% <sup>-2</sup> ]
Cérium	-0.08	-
Cuivre	0.03334	-0.00065
Fer	0.0659	-
Étain	0.004	-
Lithium	-0.25	-
Magnésium	-0.066	-
Manganèse	0.06	-
Nickel	0.04	-
Silicium	0.0193	-0.00045
Thorium	-0.006	-
Titane	-0.0205	-
Zinc	0.0163	-

Un résumé des coefficients disponibles dans la littérature se trouve dans l'ouvrage de Dantzig et Rappaz [2009] et dans l'article de Anyalebechi [1996]. Ces valeurs d'interactions nous renseignent sur les éléments qui ont un effet important, comme le lithium qui possède un coefficient du premier ordre d'un ordre supérieur à tous les autres éléments.

Nous pouvons remarquer dans différentes publications ou données l'utilisation de l'unité [cc<sub>STP</sub>/100g]. Cette unité se traduit par « centimètre cube aux conditions standards de pression et de température pour cent grammes d'alliage ». Elle se convertit avec :

$$1 \frac{cc_{STP}}{100g} \rightarrow 1 \frac{N_H}{22400 [cm^3/mol]} \frac{M_H [g/mol]}{100g} \quad (1.18)$$

avec  $N_H = 2$  et  $M_H = 1$  [g.mol<sup>-1</sup>] pour l'hydrogène. 1 [cc<sub>STP</sub>/100g] équivaut donc à  $0,89 \cdot 10^{-6}$  [W<sub>tH</sub>/W<sub>tAl</sub>]  $\sim 1 \cdot 10^{-4}$  [wt.%]. Dans cet ouvrage nous utiliserons seulement l'unité massique [wt.%].

### 1.3. Interactions entre la porosité et les microstructures de solidification

Les conditions de refroidissement et les conditions d'inoculation de l'alliage sont des paramètres importants pour le contrôle de la structure de la phase solide. Les deux principales structures que l'on retrouve dans les alliages métalliques sont une structure colonnaire ou une structure équiaxe. La structure colonnaire se caractérise par de grandes structures continues en forme de colonnes ramifiées. La structure équiaxe se caractérise quant à elle par sa discontinuité. Les différentes structures sont caractérisées en fonction de l'espacement entre les bras primaires pour les structures colonnaires ou bien la distance intergrains pour les structures équiaxes ainsi qu'en fonction de l'espacement entre les bras secondaires, figure 1.6.

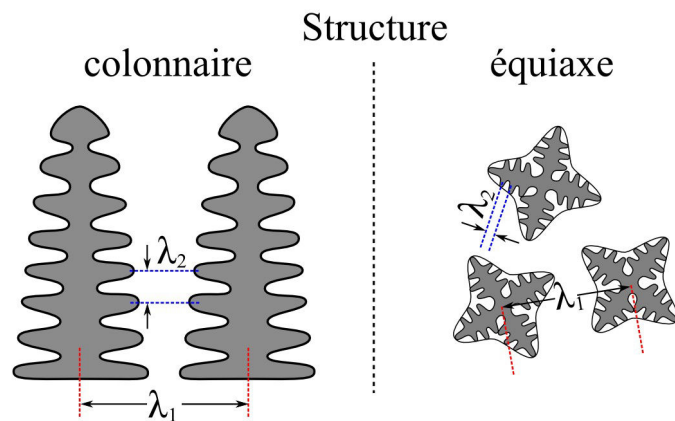


Figure 1.6 : Caractérisation d'une structure colonnaire et équiaxe, avec la distance entre bras primaires  $\lambda_1$  et secondaires  $\lambda_2$ .

On retrouve deux longueurs caractéristiques, la distance entre bras primaires  $\lambda_1$  et la distance entre bras secondaires  $\lambda_2$ . Pour la structure colonnaire,  $\lambda_1$  correspond à la distance entre chaque structure colonnaire. On s'intéressera plus particulièrement à la structure équiaxe qui est recherchée dans le procédé étudié. Les grains équiaxes peuvent présenter différentes morphologies en fonction de leurs dendritisations. On parlera alors d'un grain équiaxe dendritique, figure 1.7.b, ou bien d'un grain globulaire, figure 1.7.a, en fonction de la dendritisation. Pour caractériser cette dernière morphologie, on parlera plus facilement de densité de grains ou de taille de grains, l'utilisation de  $\lambda_2$  n'ayant plus de justification.

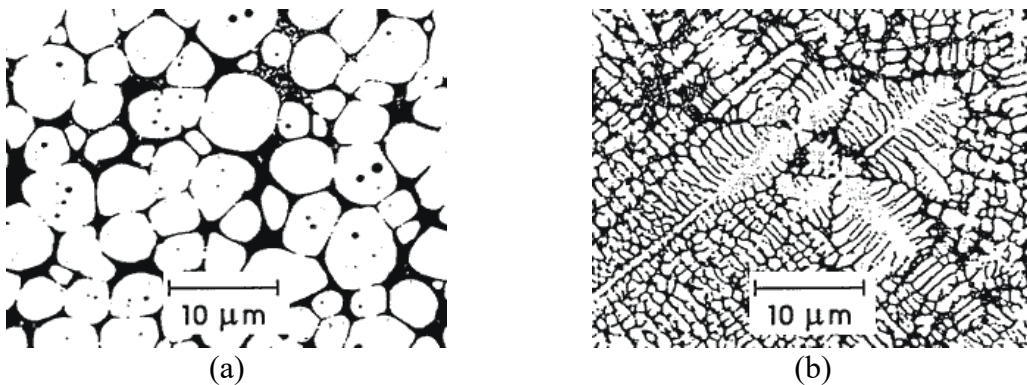
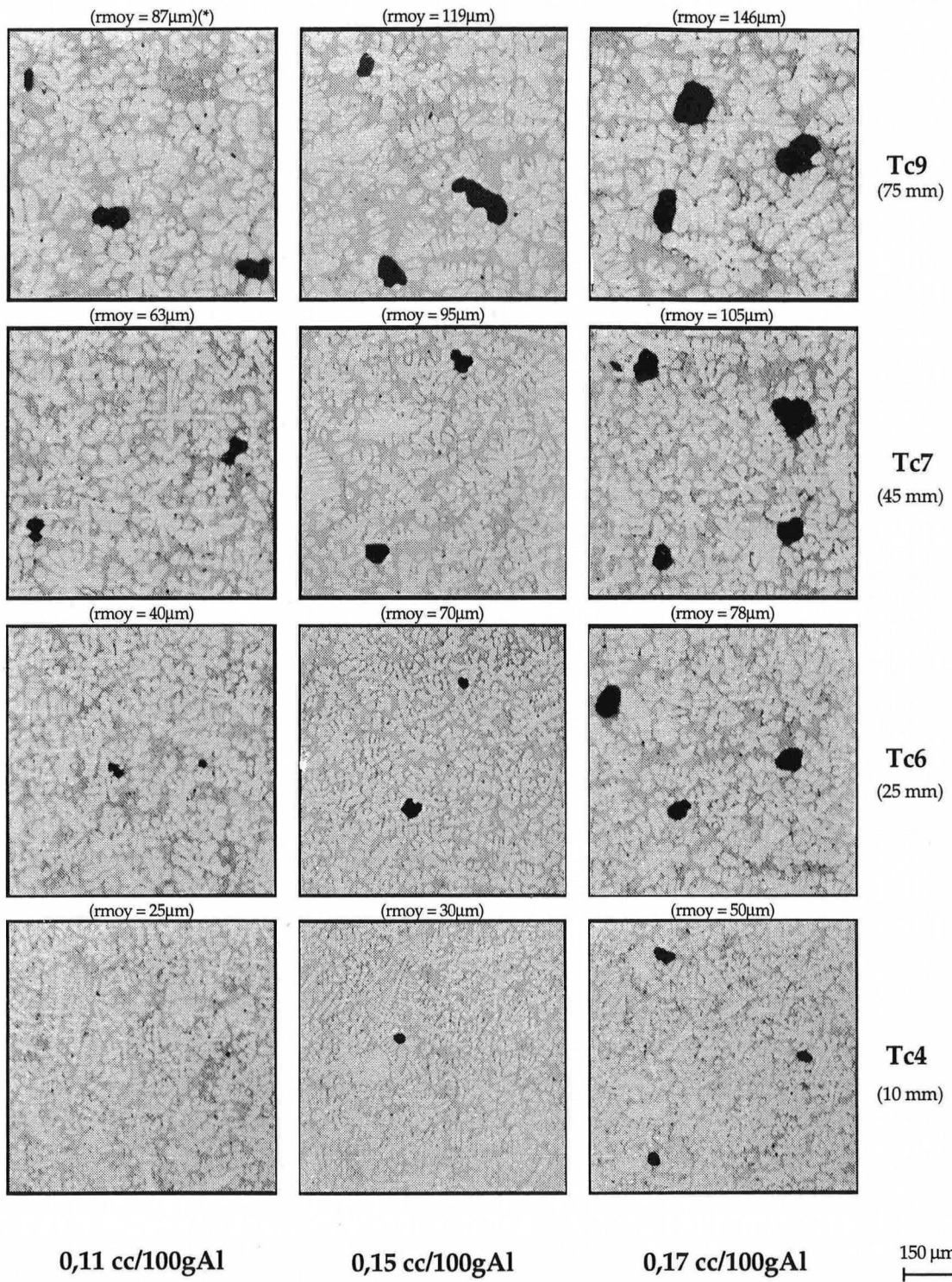


Figure 1.7 : (a) Grains équiaxes globulaires (b) Grains équiaxes dendritiques (source : <http://aluminium.matter.org.uk/>).

La taille des structures de solidification joue un rôle important dans l'apparition des porosités. Afin d'illustrer cette dépendance, nous pouvons discuter des résultats obtenus par Carpentier [1994] dans ses travaux de thèse. Ces travaux reposent sur différentes séries de coulée d'alliage Al-Si avec plusieurs types de refroidisseurs (cuivre, fonte, sable et boîte à eau) afin de modifier la vitesse de solidification, et différents gazages initiaux. Différentes morphologies et fractions de porosités à plusieurs distances du refroidisseur et pour plusieurs gazages initiaux, sont présentées sur la figure 1.8. Nous pouvons observer la variation de la taille de la microstructure avec la distance au refroidisseur. Plus on se rapproche du refroidisseur, plus le temps de solidification est court et plus la microstructure est fine. La même observation peut être formulée concernant la taille des pores en fonction de la distance au refroidisseur. On retrouve une relation entre la taille des pores et la taille des grains. L'augmentation du gazage initiale a aussi une influence directe sur la taille des pores avec une augmentation du diamètre.

De ces observations, on peut observer que des structures fines ont tendance à réduire le risque de porosité. Plusieurs raisons peuvent être avancées. Premièrement, un temps de solidification rapide accorde moins de temps pour le développement des pores. Deuxièmement, une structure plus fine affecte l'équilibre mécanique des pores par l'effet de la loi de Laplace : la pression intérieure d'un pore est directement reliée à son rayon de courbure. Pour pouvoir germer et croître dans une structure très fine, le rayon de courbure des pores doit être très faible, ce qui implique une pression importante dans le pore. Il faut donc de très fortes saturations en hydrogène ou une très forte chute de pression pour pouvoir germer les pores dans ces conditions.



(\*)  $r_{moy}$  : Valeur du rayon moyen équivalent des pores mesuré selon §IV.5.2

Figure 1.8 : Microporosité dans des échantillons de Al-7Si wt.% en fonction du gazage initial et de la distance au refroidisseur en fonte, d'après Carpentier [1994].

## 1.4. Germination des pores

### 1.4.1 Germination

On peut lister 4 types de germination. La germination homogène, la germination hétérogène et deux types de germination non classique.

Lors d'une germination homogène (type 1, figure 1.9.a) un germe gazeux se forme spontanément dans la phase liquide. La sursaturation nécessaire pour ce type de germination est extrêmement importante et n'a donc que très peu de chance de se produire dans le procédé étudié.

La germination hétérogène (type 2, figure 1.9.b) se produit à la surface d'un solide. La présence d'une surface solide abaisse le travail de germination nécessaire. Du fait de la réactivité de l'aluminium et de certains éléments d'alliage avec l'air, une quantité non négligeable d'oxyde est susceptible d'être présent dans le liquide lors de la coulée et peut donc jouer le rôle de support pour une germination hétérogène.

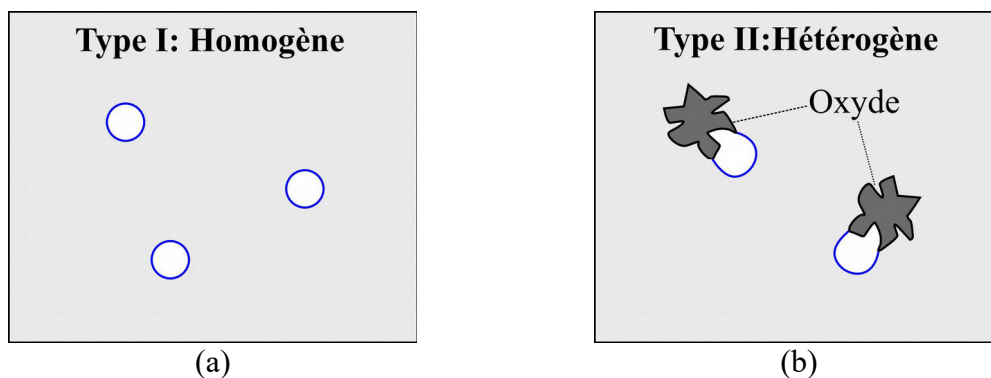


Figure 1.9 : (a) Germination de type 1; Homogène (b) germination de type 2; Hétérogène.

Les germinations de type 3 et 4 (figure 1.10) sont des germinations hétérogènes mais avec la présence d'un germe gazeux préexistant dans le liquide. La différence entre le type 3 et 4 est le rayon de courbure du germe gazeux. Pour le type 3 le rayon de courbure est inférieur au rayon de germination, il faut alors une certaine sursaturation pour former le pore. Alors que le rayon de courbure est supérieur au rayon de germination dans le type 4, le travail de germination est nul, ce qui implique une germination dès la limite de solubilité atteinte.

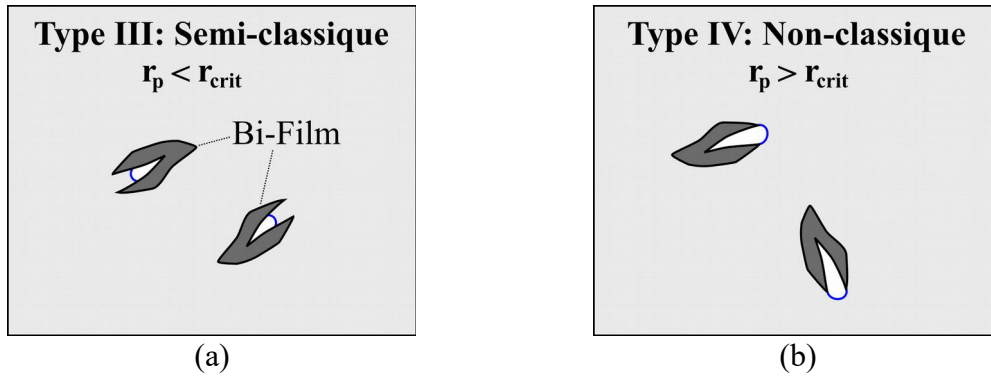


Figure 1.10 : (a) germination de type 3 : Semi-classique (b) germination de type 4 : Non-classique.

Une germination de type 4 n'a jamais été identifiée dans les études sur la porosité d'aluminium. Mais une germination de type 3 est suggérée avec la théorie du bi-film de Dispinar et Campbell [2004]. Lors du procédé de coulée, la peau d'oxyde peut se fractionner et être entraînée par l'écoulement. En se fractionnant, elle peut emprisonner de l'air, mais comme ni l'azote ni l'oxygène ne sont solubles dans l'aluminium liquide, cette poche de gaz persiste et peut être un probable site de germination. Cette théorie a en partie été réfutée par Felberbaum [2010], dans son travail de thèse il a mis en évidence que seulement 5 % des pores qu'il a observés proviennent de bi-film. Ses observations ne doivent pas être généralisées, le procédé utilisé peut avoir un impact sur la densité de bi-film présent lors de la coulée. Néanmoins nous pouvons affirmer que la germination dans la coulée semi-continue d'aluminium est de type 2 ou bien de type 3.

#### 1.4.2 Modélisation de la germination

Pour minimiser son énergie de surface, un pore, en absence d'anisotropie de la tension superficielle, adoptera une forme sphérique. Un équilibre se crée entre la pression à l'intérieur et à l'extérieur du pore. Le saut de pression à l'interface satisfait l'équation de Laplace :

$$\Delta P = \frac{2\gamma_{lg}}{R} \quad (1.19)$$

où  $\Delta P = P_l - P_g$  est la différence de pression entre le liquide et dans la bulle et  $R$  est le rayon de la bulle à l'équilibre.  $\gamma_{lg}$  est la tension de surface entre le liquide et le gaz. Comme la tension de surface entre l'aluminium liquide et l'hydrogène est positive ( $\gamma_{lg} > 0$ ), la pression à l'intérieur d'un pore est supérieure à la pression du liquide.

Afin de comprendre l'impact de la courbure sur la germination, il est important d'expliquer



comment la germination est modélisée dans quasiment l'ensemble des modèles de porosité. On utilise le concept de germes, ces germes possèdent un rayon,  $r_{grm}$ , il est donc possible de calculer la pression à l'intérieur de ces germes :

$$P_{grm} = P_l + \frac{2\gamma_{lg}}{r_{grm}} \quad (1.20)$$

avec  $\gamma_{lg}$  la tension de surface et  $P_l$  la pression dans le liquide qui est égale à :

$$P_l = P_{atm} + P_m + \Delta P \quad (1.21)$$

avec  $P_{atm}$  la pression atmosphérique (la pression s'appliquant au procédé),  $P_m$  la pression métallostatique et  $\Delta P$  la perte de charge provoquée par l'écoulement.

En considérant que l'on est dans une situation isotherme, il est possible de calculer une solubilité d'équilibre en hydrogène par rapport au germe. En incluant la pression du germe dans la loi de Sievert, on obtient :

$$X_H^{grm} = S_l(T, C_l^i) \sqrt{\frac{P_{grm}}{P_0}} = S_l(T, C_l^i) \sqrt{\frac{P_l + \frac{2\gamma_{lg}}{r_{grm}}}{P_0}} \quad (1.22)$$

Lorsque la composition en hydrogène dissout dans l'aluminium liquide atteint cette solubilité le germe est « activé » et le pore commence à croître.

$$C_H^l \geq X_H^{grm} \quad (1.23)$$

L'équation (1.23) peut être considérée comme le principal critère de germination.

La figure 1.11 montre l'influence du rayon des germes sur le critère de germination dans le cas d'un alliage Al-5Cu [wt.%]. L'évolution de la température et de la composition en cuivre a été calculée en considérant la loi de Scheil-Gulliver et l'équilibre thermodynamique local. La pression dans la phase liquide est considérée comme constante et égale à la pression atmosphérique. La composition en hydrogène dans la phase liquide,  $C_H^l$ , augmente et la solubilité d'équilibre en hydrogène  $X_H^l$  diminue lorsque la fraction solide augmente, ce qui est conforme à la théorie développée précédemment. La solubilité par rapport aux germes,  $X_H^{grm}$ , diminue également mais reste supérieure à la solubilité d'équilibre  $X_H^l$  à cause de la plus grande pression à l'intérieur des germes. Plus le rayon des germes,  $r_{grm}$ , est important, plus la différence de pression est faible (selon la loi de Laplace), et plus la solubilité par rapport aux germes  $X_H^{grm}$  est proche de  $X_H^l$ . Avec un rayon de 100 [ $\mu\text{m}$ ] les germes sont activés à  $g_s = 0,60$ , très proche du moment où la phase liquide est saturée en hydrogène, à  $g_s = 0,57$ , alors que l'activation des germes avec un rayon de 10 [ $\mu\text{m}$ ] se fait à  $g_s = 0,70$ . Le rayon des germes représente donc la barrière pour

la germination des pores. Plus le rayon est faible, plus la sursaturation nécessaire est importante et plus la germination des pores est tardive.

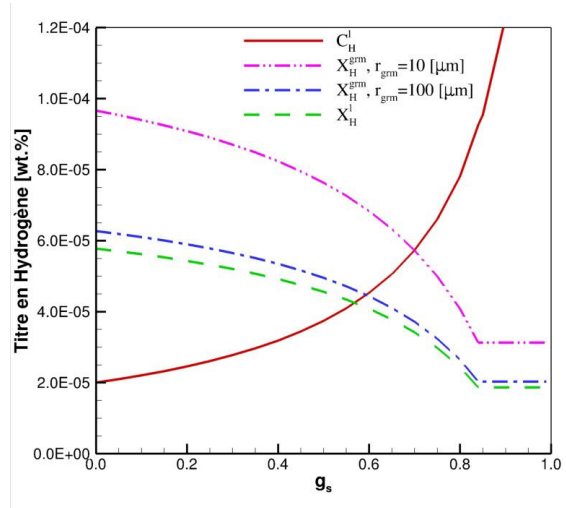


Figure 1.11 : Variation de la composition en hydrogène dissout  $C_H^l$ , de la solubilité d'équilibre en hydrogène  $X_H^l$  et de la solubilité par rapport aux germes, avec deux rayons,  $r_{grm}$ , 10 et 100 [ $\mu m$ ], en fonction de la fraction solide. Calcul effectué avec la loi de Scheil pour un alliage Al-5Cu [wt.%].

#### Remarque :

Si l'on reprend le calcul du critère de germination :

$$C_H^l > X_{eq}^{gmr} \quad \text{Avec} \quad X_{eq}^{gmr} = S_v \sqrt{\frac{P_l + 2\gamma_{lg}/r_{crit}}{P_0}} \quad (1.24)$$

une diminution de la tension de surface,  $\gamma_{lg}$ , faciliterait la germination des pores. La barrière de germination est amoindrie dans ce cas. Plusieurs auteurs ([Liao et al. 2014], [Emadi et al. 1993],[Liu et al. 2003]) ont montré un effet important du strontium sur la porosité. L'une des explications pour cet effet est la diminution sensible de la tension de surface du liquide engendrée par le strontium [Emadi et al. 1993]. Cette diminution facilite la germination en réduisant la sursaturation nécessaire pour activer les germes. Cependant cette explication n'est qu'un phénomène possible parmi d'autres, comme la modification de la phase eutectique [Tiedje et al. 2012] ou encore la propension du strontium à former des oxydes.

### 1.4.3 Caractérisation expérimentale de la germination

L'étude de la germination des pores a donné lieu à d'importants travaux notamment menés par Lee et Hunt [1997b]. Ces travaux ont porté sur l'observation au rayon X d'échantillons en cours de solidification dans un gradient constant XTGS (« X-ray temperature gradient stage »). En traquant l'apparition des pores et en connaissant la position où ils se sont formés, Lee et Hunt ont été capable d'en déduire la sursaturation nécessaire pour la germination. De ces résultats expérimentaux, une distribution de la germination en fonction de la sursaturation a été proposée, posant les bases de l'utilisation d'un modèle de germination stochastique. Une remarque peut être formulée : la résolution de 25 [ $\mu\text{m}$ ] de l'imagerie peut masquer la germination de pores de faible diamètre ou faire apparaître comme une germination la croissance de pores déjà présents. En suivant la même démarche expérimentale, Lee et Hunt [1997a] ont étendu leurs travaux à la mesure du rayon de courbure des pores. Dans cette étude, Lee and Hunt montrent que la perte de charge liée à l'écoulement dans le marais n'est pas le phénomène dominant dans la croissance des porosités dans l'alliage Al-Cu mais que c'est la diffusion de l'hydrogène qui est le mécanisme qui la limite.

L'étude de l'influence de la germination des pores sur la porosité dans des procédés industriels se heurte à plusieurs difficultés, notamment le contrôle de la propreté du métal en fusion.

Atwood et al. [1999] en se basant sur les résultats expérimentaux de Lee et Hunt [1997b] et en utilisant la même démarche que Charbon et Rappaz [1993] pour la germination de la phase solide, ont proposé une description de la germination des pores à l'aide d'une fonction gaussienne normale :

$$\frac{dN_{mic}}{dss} = \frac{n_{max}}{\sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(ss - ss_0)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (1.25)$$

où  $n_{max}$  est le maximum de germe,  $ss$  représente la sursaturation en hydrogène,  $\sigma$  et  $ss_0$  représentent respectivement la sursaturation moyenne de germination et l'écart type de la distribution. Les paramètres de la loi de germination ont été obtenus à partir des résultats expérimentaux. Les valeurs ainsi obtenues sont donc représentatives de la germination réellement observée et non pas de la germination potentielle qui représenterait l'ensemble des sites de germination présents dans le liquide ainsi que leur potentiel de germination.

Des travaux récents [Yao et al. 2011] [Yao et al. 2012] se sont concentrés sur l'étude de la germination des pores. Le modèle qu'utilise Yao et al. [2011] se base sur les travaux de Atwood et al. [1999] pour la description de la germination avec une loi gaussienne, équation (1.25), et sur les travaux de Carlson et al. [2007] pour le modèle de croissance des

pores. Leur objectif est d'étudier l'évolution de la porosité en fonction du niveau d'oxydation de la coulée. Il n'est pas possible de contrôler précisément le nombre d'oxydes présents dans le bain liquide. Mais il est possible de favoriser l'oxydation et l'entraînement des oxydes. C'est ce que les auteurs ont réalisé en utilisant plusieurs installations présentant différentes caractéristiques de protection à l'oxydation. En utilisant la même démarche que dans [Yao et al. 2011] et [Atwood et al. 1999], les auteurs obtiennent une loi de germination pour chaque installation, figure 1.12.

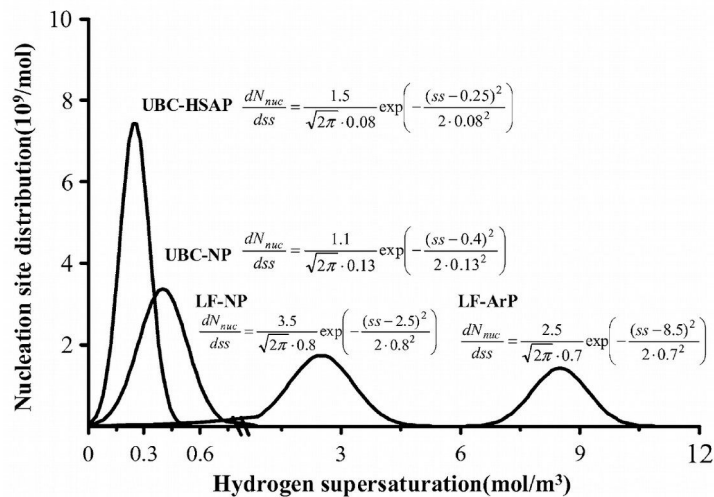


Figure 1.12 : Les différentes lois de nucléation obtenues par Yao et al. [2012]. UBC-HSAP : coulée à l'Université de British Columbia en augmentant la surface d'échange, UBC-NP : coulée à l'Université de British Columbia sans précaution particulière, LF NP : coulée dans une fonderie professionnelle sans précaution particulière, LF-ArP : coulée dans une fonderie professionnelle avec un bouclier d'argon.

Ces lois, obtenues par ajustement des paramètres du modèle aux résultats expérimentaux, représentent la cinétique de germination des pores. Les différences entre ces courbes seraient donc représentatives du degré d'oxydation des bains. Une première conclusion de l'étude est la confirmation que les oxydes agissent bien comme des germes pour la germination des pores. Un accroissement du nombre d'oxydes, par une installation qui favorise l'oxydation, augmente la fraction de pores. La courbe correspondant à la coulée effectuée avec un bouclier d'argon montre la plus grande sursaturation d'activation nécessaire et le plus faible nombre de sites de germination. Cette observation confirme qu'une protection contre l'oxydation réduit la formation de la porosité par la limitation du potentiel de germination des pores. Bien que les auteurs de cette étude ne se proposent pas d'arbitrer sur les différentes théories sur la germination des pores, leurs observations expérimentales et leurs investigations numériques les mènent à privilégier la théorie d'une nucléation hétérogène sur des oxydes plutôt que la théorie du bi-film.

## 1.5. Modèles de courbure

Dans une première approximation, nous pouvons considérer que les pores croissent de manière sphérique, mais cette hypothèse ne peut pas être tenue lorsque la croissance de la phase solide rentre en interaction avec la croissance des pores, figure 1.13. Lors du développement de la phase solide, les pores se retrouvent en contact direct avec les grains. Le rayon de courbure des pores devient alors plus complexe à décrire.

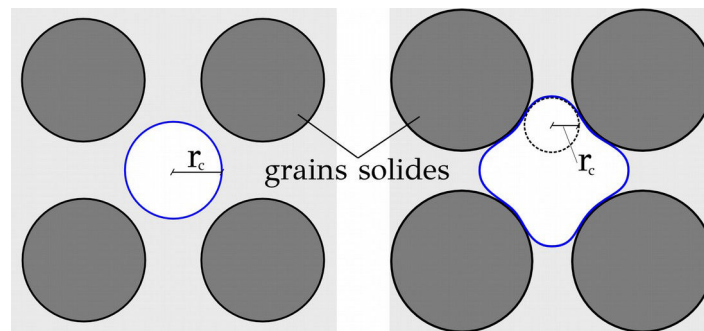


Figure 1.13 : La croissance de la phase solide et des pores amène à contraindre le développement du pore en influençant son rayon de courbure.

Plusieurs auteurs ([Poirier et al. 1987], [Couturier & Rappaz 2006], [Pequet et al. 2002]) ont proposé des modèles reliant le rayon de courbure du pore à la morphologie et à la fraction solide dans le marais. Ces modèles sont basés sur des approches géométriques du marais.

Poirier et al. [1987] ont pris l'hypothèse d'un arrangement régulier de grains solides hexagonaux pour proposer leur relation géométrique d'évolution du rayon de courbure dans un marais colonnaire, exemple (c) sur la figure 1.14.

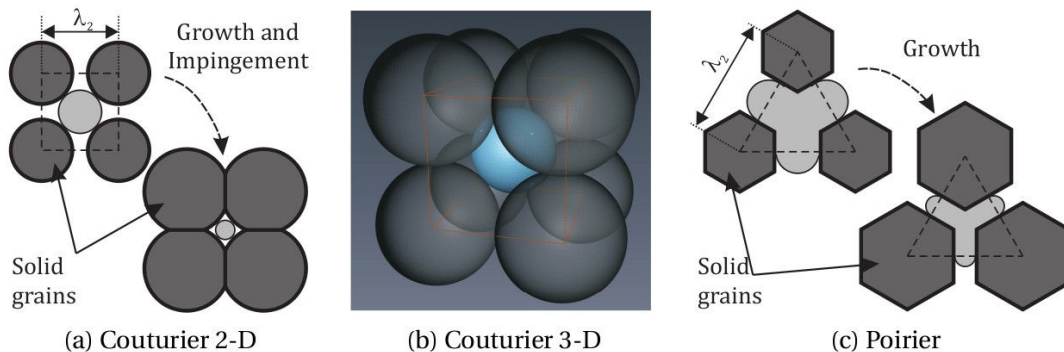


Figure 1.14 : Description schématique des différents arrangements géométriques, modèle cylindrique (a), modèle sphérique (b) et modèle hexagonal (c), d'après Meidani [2013].

Couturier et Rappaz [2006] ont réutilisé le principe d'une croissance entre un arrangement régulier de grains. Mais cet arrangement est composé de cylindres pour décrire une structure de marais colonnaire (a) ou de sphères pour une structure globulaire (b). Le rayon de courbure est égal au rayon maximum d'une sphère (pour le cas sphérique) ou d'un cylindre (pour le cas cylindrique) qui peut s'introduire entre l'arrangement des grains. Une description géométrique complète du modèle de Couturier et al. 3D est disponible dans les travaux de thèse de Meidani [2013].

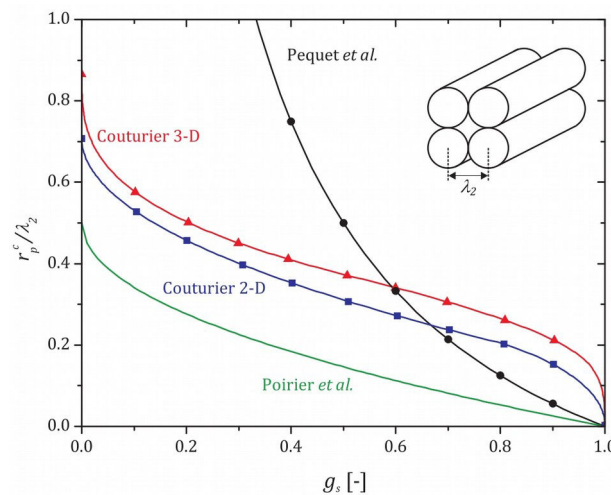


Figure 1.15 : Évolution du rayon de courbure normalisé par  $\lambda_2$  pour les différents modèles géométriques, d'après Meidani [2013].

La figure 1.15 montre l'évolution du rayon de courbure obtenue par les différents modèles. Les comportements attendus sont que le rayon de courbure tende vers zéro lorsque la fraction solide tend vers l'unité. L'allure des courbes est différente pour chaque modèle.

Tous ces modèles reposent sur des relations géométriques qui sont des représentations simplifiées de la morphologie des grains et de leur agencement dans le marais. La courbure agit directement sur la concentration à l'équilibre et donc sur le développement de la porosité. La simplification des modèles peut alors amener à d'importantes erreurs sur la prédiction de la porosité. Plusieurs auteurs ([Felberbaum & Rappaz 2011], [Meidani et al. 2012]) ont étudié de manière approfondie la courbure des pores et leur évolution pendant la solidification. Ces auteurs ont montré que le modèle sphérique de Couturier et Rappaz [2006] correspondait mieux aux valeurs de rayon de courbure obtenues expérimentalement. La caractérisation des rayons de courbure sur des échantillons effectuée par Meidani [2013] l'a mené à proposer une modification du modèle de Couturier et al. 3D.

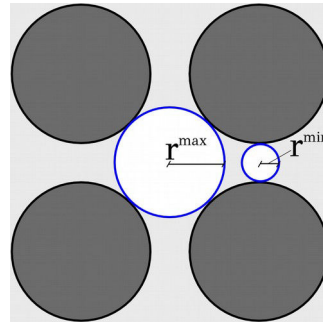


Figure 1.16 : Reproduction en 2 dimensions du modèle de Meidani [2013] représentant le rayon de courbure minimal et maximal.

Le rayon de courbure des pores caractérisé par Meidani [2013] était mieux représenté en prenant le rayon moyen entre la plus grande sphère et la plus petite sphère qui pouvaient se mettre dans un arrangement régulier sphérique, équation (1.26). La figure 1.16 représenterait une simplification en 2 dimensions de la modification apportée par Meidani.

$$r_{\text{courb}} = \frac{1}{2}(r_p^{\text{max}} + r_p^{\text{min}}) \quad (1.26)$$

## 1.6. Croissance des pores

Les pores agissent comme des puits pour l'hydrogène dissout dans l'aluminium, l'hydrogène en sursaturation tend à diffuser vers ces pores. Le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans l'aluminium liquide étant relativement élevé  $D_{\text{H}}^l \approx 1.10^{-7} [\text{m}^2/\text{s}]$  au point de fusion [Anyalebechi 2003], beaucoup d'auteurs ont considéré que la diffusion de l'hydrogène n'était pas un facteur limitant pour la croissance des pores. L'évolution de la concentration en hydrogène dissout est calculée avec un bilan de masse selon :

$$C_{\text{H}}^0 = (1 - g_l) C_{\text{H}}^s + g_l C_{\text{H}}^l + \alpha_{\text{H}} \frac{P_g g_p}{T} \quad (1.27)$$

avec  $C_{\text{H}}^0$  la masse initial d'hydrogène dissout qui est la somme de la masse d'hydrogène dissout, dans la phase solide  $C_{\text{H}}^s$  et dans la phase liquide  $C_{\text{H}}^l$ , et de la masse d'hydrogène en phase gazeuse  $\alpha_{\text{H}} \frac{P_g g_p}{T}$ .

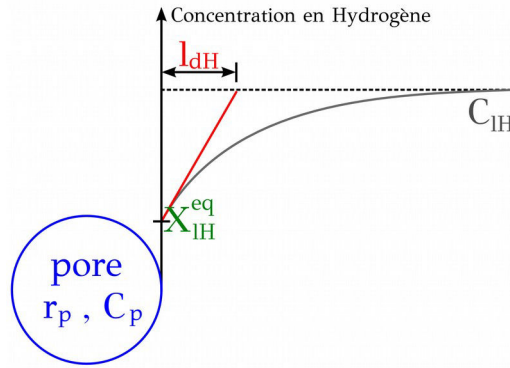


Figure 1.17 : Couche de diffusion autour d'un pore en train de croître, reproduction Carlson et al. [2007].

Pourtant, la diffusion de l'hydrogène a été identifiée comme pouvant limiter la croissance par Lee et Hunt [1997a]. Carlson et al. [2007], figure 1.17, prennent en compte la diffusion de l'hydrogène pour leur modèle de croissance du pore à travers la loi de croissance suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) = \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l}{l_d} (C_H^l - X_H^l) \quad (1.28)$$

avec  $S_p^{ech}$  la surface d'échange entre les pores et le liquide,  $\rho_l$  la masse volumique du liquide,  $D_H^l$  la diffusion de l'hydrogène dissout dans le liquide,  $l_d$  la longueur de diffusion,  $C_H^l$  la composition en hydrogène dissout et  $X_H^l$  la composition à l'équilibre.

La diffusion n'est considérée qu'à travers la phase liquide, celle à travers la phase solide est négligée. Cette hypothèse implique l'estimation de la surface du pore en contact avec le solide. Dans le calcul de la surface d'échange du pore,  $S_p^{ech}$  équation (1.29), les auteurs introduisent un facteur  $\Phi$  représentant cette couverture par la phase solide :

$$S_p^{ech} = 4 \pi N_p (r_p^{sph})^2 \Phi \quad (1.29)$$

avec  $n$  la densité de pore,  $r_p^{sph}$  le rayon sphérique équivalent du pore et  $\Phi$  le taux de couverture par la phase solide. Ce paramètre est calculé avec la relation :

$$\Phi = (1 - g_s)^m \quad (1.30)$$

Ce modèle introduit un paramètre  $m$  qui représente la tortuosité et la morphologie de la phase solide. La figure 1.18.a montre l'influence du paramètre  $m$  sur  $\Phi$ . Plus  $m$  est élevé, plus l'influence est importante, plus le solide couvre les pores et diminue l'interface d'échange. Ce paramètre a beaucoup d'impact sur la surface d'échange, et donc sur les prédictions de la fraction de porosité, figure 1.18.b, comme l'ont montré les auteurs.



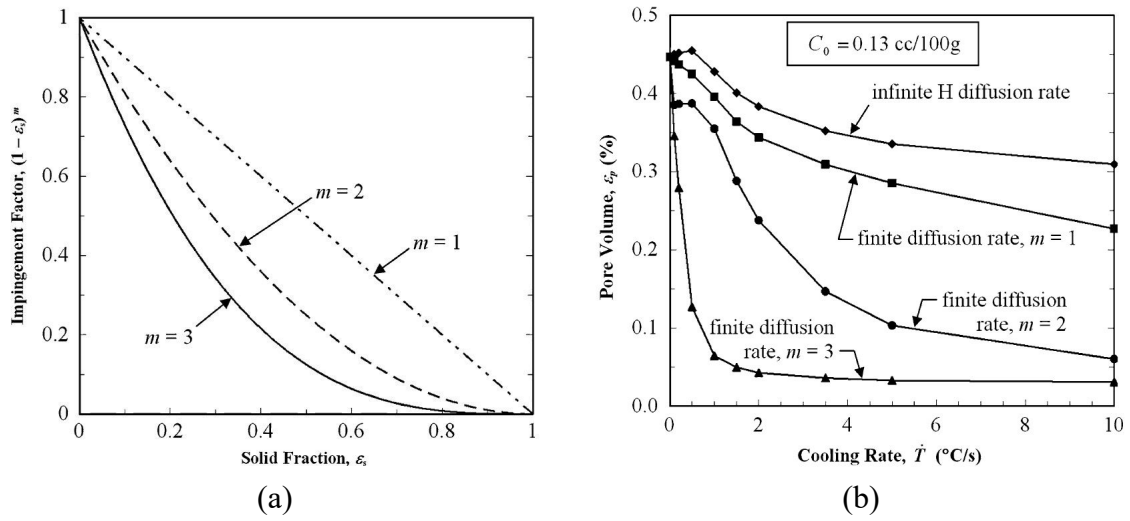


Figure 1.18 : (a) Variation du facteur de recouvrement  $\Phi$  avec la fraction solide pour trois valeurs de  $m$ . (b) Simulation montrant l'influence du facteur de recouvrement  $\Phi$  sur la fraction volumique de pore prédite pour trois valeurs de  $m$ , d'après Carlson et al. [2007].

Le modèle de Carlson et al. [2007] repose sur l'hypothèse d'une diffusion à travers le solide qui serait négligeable. Pourtant cette hypothèse a été réfutée, principalement par Felberbaum et al. [2011] où une étude complète sur l'influence de la diffusion de l'hydrogène sur la croissance des pores a été réalisée par une résolution numérique de la seconde loi de Fick sur les conditions d'un marais obtenues par tomographie X.

Des résultats de cette étude, Felberbaum et al. [2011] concluent que l'utilisation d'une diffusion effective d'hydrogène permet de prendre en compte la diffusion d'hydrogène à travers la phase solide. Cette diffusion effective peut être calculée grâce à plusieurs techniques. La technique qui donne les résultats les plus proches est la '*differential effective medium approximation*' (DEM) :

$$\frac{D_s - \langle D \rangle_{DEM}}{D_s - D_l} \left( \frac{D_l}{\langle D \rangle_{DEM}} \right)^{1/3} = 1 - g_s \quad (1.31)$$

La valeur effective de la diffusion est obtenue après résolution de l'équation (1.31). Néanmoins, l'étude menée par les mêmes auteurs a aussi montré que la relation la plus simple, c'est-à-dire une moyenne volumique, est une approximation qui donne des résultats très satisfaisants :

$$\langle D \rangle = g_s D_s + g_l D_l \quad (1.32)$$

Afin d'avoir une première approximation de l'influence de l'hydrogène sur la croissance des pores, il est intéressant de calculer le nombre de Fourier à l'échelle d'un pore :

$$Fo = \frac{D_H t_f}{L^2} \quad (1.33)$$

avec,  $D_H$  la valeur de diffusion de l'hydrogène,  $t_f$  le temps de croissance du pore (~temps de solidification) et  $L$  une longueur caractéristique liée soit à la taille du pore, soit à la taille de la microstructure ou à la distance entre les pores. Plus le nombre de Fourier est grand, moins la diffusion de l'hydrogène limite la croissance des pores. Grâce à cette simple relation, on peut entreprendre de percevoir le rôle du temps de solidification sur la formation de la porosité : une plus faible porosité avec des solidifications rapides peut aussi s'expliquer par un nombre de Fourier plus faible.

### 1.7. Modélisation de la porosité dans les procédés de coulée

La modélisation de la porosité requiert une modélisation de l'environnement où elle a lieu, c'est-à-dire, de la solidification. Cette modélisation mène à la description d'un ensemble de phénomènes physiques.

- I. Le champ thermique et son évolution
- II. Les écoulements de la phase liquide et solide
- III. Les champs de concentration des éléments de l'alliage et de l'hydrogène
- IV. Croissance de la phase solide et son influence sur la croissance du pore
- V. La germination et la croissance des pores

L'ensemble de ces phénomènes joue un rôle dans la formation de la porosité et une hypothèse portée sur l'un de ces phénomènes se retrouve dans la fraction de pore prédite. Plusieurs catégories de modèles existent dans la littérature, chaque catégorie prend plus ou moins en compte les phénomènes que nous venons de lister. Nous commencerons par une description du critère de Niyama. Bien que ce critère a été conçu pour s'appliquer au cas de la coulée de billette d'acier, il est encore aujourd'hui utilisé pour de nombreux procédés. Puis, nous nous intéresserons principalement aux modèles numériques plus complexes qui permettent de prendre en compte un maximum des phénomènes précédemment cités.

### 1.7.1 Critère de Niyama

Depuis les années 50, différents auteurs ont recherché un critère qui dépendrait seulement de l'alliage, des paramètres du procédé utilisé et qui prédirait l'apparition de la porosité. Ces critères se concentrent principalement sur la prévention de la porosité liée au retrait et non à la porosité liée au dégazage.

Le critère le plus connu et le plus appliqué encore de nos jours, provient de l'étude de Niyama et al. [1981] sur la porosité dans des coulées de billettes d'acier. Niyama commence sa réflexion par décrire d'une manière simplifiée l'écoulement de la phase liquide dans le marais. Si l'on considère le solide immobile, nous pouvons écrire qu'à l'interface solide-liquide, la vitesse du liquide doit posséder une composante normale à cette surface afin de respecter la conservation de la masse. Cette vitesse est alors égale à  $v_{in} = -\beta v_n^*$  avec  $\beta = (\rho_s - \rho_l) / \rho_l$  le retrait propre à l'alliage et  $v_n^*$  la vitesse du front de solidification. En situation monodimensionnelle, cette relation reste valide pour une solidification colonnaire et un retrait constant ( $\rho_s = \text{cst}$  et  $\rho_l = \text{cst}$ ). À partir de ce postulat, Niyama a utilisé la loi de Darcy pour décrire la perte de pression dans le marais :

$$\Delta P = P_l(T_{liq}) - P_l(T) = \frac{\beta \mu_l v_T}{G} \int_{g_l}^1 \frac{g_l}{K(g_l)} \frac{dT}{dg_l} dg_l \quad (1.34)$$

avec  $\Delta P$  la perte de charge,  $\mu_l$  la viscosité dynamique de la phase liquide,  $G$  le gradient thermique et  $K(g_l)$  la perméabilité du milieu.

La vitesse des isothermes  $v_T$  étant difficile à caractériser, Niyama l'a remplacée par le rapport du taux de refroidissement sur le gradient thermique ( $-\dot{T}/G$ ). La perte de charge devient alors proportionnelle à  $|T|/G^2$ ,  $\beta$  et  $\mu_l$  étant des grandeurs propres à l'alliage. Niyama a effectué une série d'expériences afin de corréler l'apparition de la porosité aux rapports des paramètres  $T$  et  $G$ . Après avoir effectué plusieurs coulées en faisant varier les paramètres de coulées et les diamètres, de la porosité fut observée lorsque la condition suivante était satisfaite :

$$\frac{G}{(-\dot{T})^{0.5}} < 1 [(K \cdot \text{min})^{0.5} \cdot \text{cm}^{-1}] \quad (1.35)$$

La démarche de Niyama et le critère qu'il a obtenu sont spécifiques au procédé et à l'alliage utilisé pour son étude. Cependant, ce critère est souvent utilisé pour prédire l'apparition de la porosité gazeuse, alors que son utilisation n'a aucune justification dans ce cadre puisque ce critère a été développé en omettant les effets liés au dégazage.

### 1.7.2 Modèles numériques

Une première famille de modèles numérique s'attache à pouvoir décrire la porosité à l'échelle de l'ensemble d'un procédé. Ces modèles font souvent appel à des techniques d'homogénéisation qui permettent une résolution des équations du modèle sur l'ensemble du domaine.

Kubo et Pehlke [1985] ont été les premiers à intégrer un modèle de porosité complet dans un code de calcul de solidification. Le modèle se base sur une résolution 2D de l'écoulement décrit par la loi de Darcy. Le modèle de Scheil-Gulliver est utilisé pour la ségrégation. La solubilité de l'hydrogène est calculée avec la loi de Sievert et la diffusion de l'hydrogène n'est pas considérée comme limitante (mélange parfait de l'hydrogène). Dans ce cas, l'évolution de la concentration en hydrogène dissout est calculée selon l'équation (1.27). À chaque itération, le modèle vérifie si la sursaturation en hydrogène est suffisante pour faire germer des pores. Le diamètre initial des pores est égal à l'espacement entre les bras primaires, Kubo et Pehlke prennent donc l'hypothèse selon laquelle les pores germent à l'interface liquide/solide. Les fractions de pores obtenues avec le modèle étaient en bonne corrélation avec les résultats expérimentaux obtenus avec un alliage Al-4.5Cu [wt.%]. Malgré cela plusieurs réserves peuvent être opposées à ce modèle, notamment sur l'influence de la diffusion de l'hydrogène et sur les sites de germination. Ce modèle reprend l'ensemble des points énumérés à prendre en compte afin d'obtenir un modèle de porosité complet. Les modèles suivants suivent la même démarche que celle posée par Kubo and Pehlke en améliorant certains points, comme par exemple, l'influence de la diffusion ou l'influence du développement de la phase solide sur les pores.

Le modèle de Pequet et al. [2002] reprend en partie le modèle de Kubo et Pehlke [1985]. L'hypothèse d'un mélange parfait de l'hydrogène est toujours utilisée, mais la description de l'influence de la phase solide sur la croissance des pores a été enrichie avec un modèle de rayon de courbure en fonction de l'espacement interdendritique, modèle décrit page 28.

Un modèle prenant en compte le transport macroscopique ainsi que microscopique de l'hydrogène avec l'aide de la méthode de la prise de moyenne volumique est proposé par Carlson et al. [2007]. Le transport de l'hydrogène est couplé avec un modèle d'écoulement pour la phase liquide, la phase solide et les pores sont considérés immobiles. Le modèle proposé est appliqué à la solidification d'un alliage A356 (Al-Si). L'étude est réalisée en 1D. On peut noter dans cette étude un travail minutieux sur la caractérisation des masses volumiques de la phase eutectique et de la solubilité des différentes phases solides, dans le but d'avoir une description précise du champ de pression et du champ de concentration en

hydrogène en fin de solidification. L'étude montre que la prise en compte de la diffusion donne de meilleurs résultats comparativement aux observations expérimentales, figure 1.19.

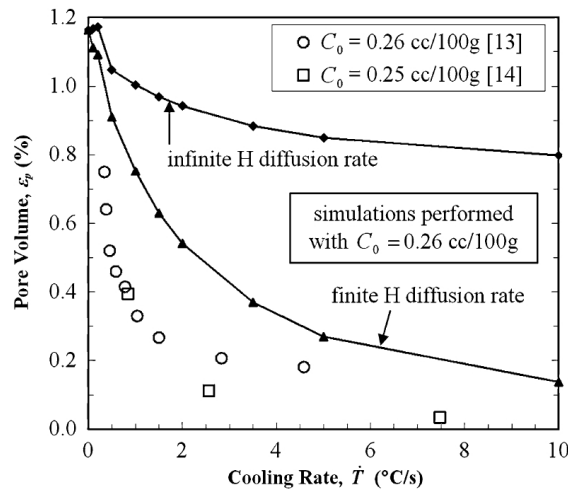


Figure 1.19 : Simulation réalisée avec une concentration initiale d'hydrogène de 0.26 [cc/100g], avec une diffusion de l'hydrogène infinie et limitée. Ces résultats sont obtenus avec un gradient de température  $G=3265\dot{T}^{0.512}$  [°C/m], une densité de pore  $n = 10^{11}$  [m<sup>-3</sup>]. Les résultats expérimentaux de Emadi et Gruzleski [1994] et de Fang et Granger [1989] sont montrés pour comparaison, d'après Carlson et al. [2007].

Le modèle développé par Carlson et al. [2007] est le premier, à notre connaissance, à coupler le transport macroscopique et microscopique dans une description cohérente et adaptable à une étude en 2D ou 3D. Ce modèle utilise la densité des pores comme un paramètre d'entrée, et du fait de la sensibilité du modèle à ce paramètre, les auteurs eux-mêmes font remarquer que son choix doit être réalisé avec précaution.

Une seconde famille de modèle permet de prédire plus précisément la porosité, notamment en décrivant précisément la morphologie et la croissance des pores. Cependant ces méthodes ne permettent d'étudier la porosité que sur des échelles réduites.

Huang et al. [1998] ont utilisé la méthode de l'automate cellulaire, figure 1.20, afin de modéliser la croissance des pores en deux dimensions dans un alliage Al-Si (alliage A356). Leur méthode de résolution se base sur les travaux de Rappaz et Gandin [1993] avec l'ajout d'une troisième phase gazeuse représentant les pores. Le modèle considère un mélange parfait de l'hydrogène avec une distribution stochastique des germes sur le domaine en deux dimensions. L'originalité de ce travail a été d'étudier l'effet du strontium (Sr) sur la porosité. Le strontium est ajouté aux alliages d'aluminium pour ramifier la microstructure.

L'ajout de strontium est connu pour augmenter la porosité. Le modèle développé par Huang et al. [1998] permet de retrouver ce phénomène. Les auteurs expliquent cette influence par l'effet du strontium sur la tension superficielle d'interface liquide/gaz et la modification de la formation de la phase eutectique.

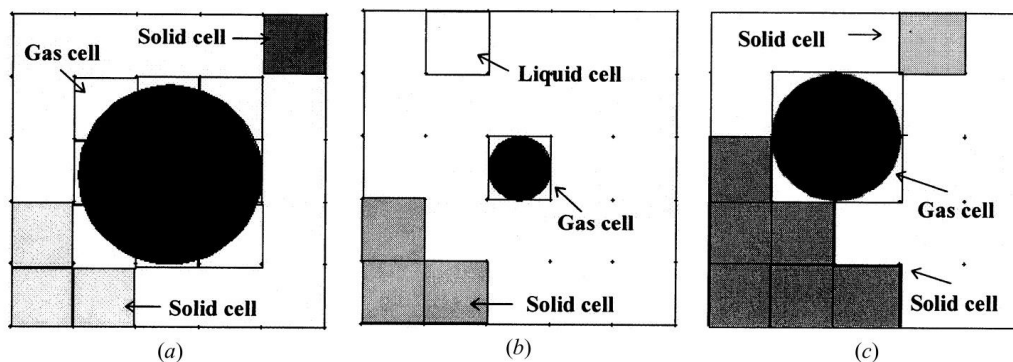


Figure 1.20 : Schématisation du fonctionnement de l'automate cellulaire avec une phase gazeuse qui représente la porosité, d'après Huang et al. [1998].

La méthode de l'automate cellulaire est toujours celle utilisée par Atwood et Lee [2002] pour leur étude sur l'alliage Al-Si. Les résultats du modèle sont comparés aux résultats expérimentaux de Fang et Granger [1989]. La taille des pores donnée par le modèle est surestimée par rapport à l'expérience. Cette surestimation est expliquée par les auteurs comme étant due à l'absence de prise en compte de l'influence du développement de la phase solide sur le rayon de courbure des pores.

L'alliage Al-Si est toujours l'objet d'étude dans Atwood et Lee [2003]. Cette étude, actuellement en trois dimensions, approfondit l'influence des différents paramètres (vitesse de refroidissement, gazage initial, pression appliquée, loi de germination) sur la porosité. Le modèle montre une bonne prédiction de la morphologie des pores en fonction de la morphologie de la phase solide, figure 1.21, et reproduit la tendance des pores à devenir tortueux sous la contrainte de la phase solide, figure 1.22. Les auteurs mettent en exergue le même phénomène de compétition croissance-germination que l'on retrouve dans la germination de la phase solide. Le gazage initial et la vitesse de refroidissement sont les premiers facteurs agissant sur la taille des pores.

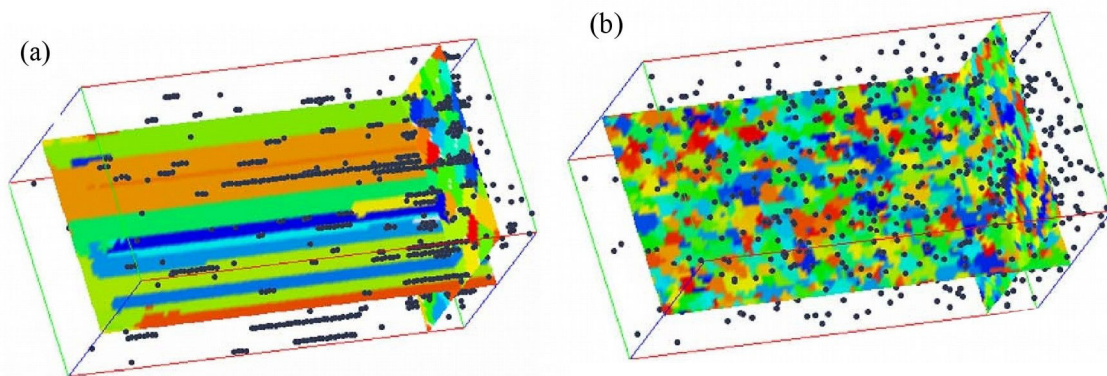


Figure 1.21 : Résultats numériques de Atwood et Lee [2003]. (a) Pour une morphologie colonnaire, le modèle prévoit bien des pores allongés suivant l'axe primaire des grains. (b) Alors que pour une morphologie équiaxe, les pores prédits sont discontinus et tortueux, d'après Atwood et Lee [2003].

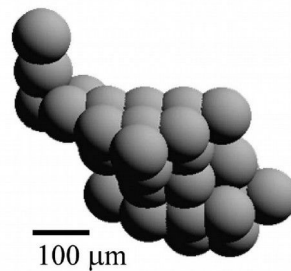


Figure 1.22 : Structure tridimensionnelle d'un pore obtenue par la méthode de l'automate cellulaire, d'après Atwood et Lee [2003].

## 1.8. Étude sur l'influence du lithium.

Bien que le lithium soit un élément d'addition connu pour favoriser l'apparition de la porosité, peu d'études ont été menées pour quantifier son influence. Nous pouvons tout de même noter l'étude expérimentale de Saikawa et al. [1999] qui porte spécifiquement sur l'influence du lithium sur la porosité. Dans cette étude, les auteurs ont coulé avec le même dispositif expérimental deux alliages, l'un avec lithium (Al-2.36Li-1.76Mg-0.15Zr-0.11Ti) et l'autre sans (Al-1.9Mg-0.15Zr-0.11Ti). La figure 1.23 récapitule les résultats obtenus. Sous les mêmes conditions d'exposition, l'alliage avec du lithium possède une concentration en hydrogène dissout plus importante, du fait de l'augmentation de la solubilité induite par l'influence du lithium, (voir figure 1.4).

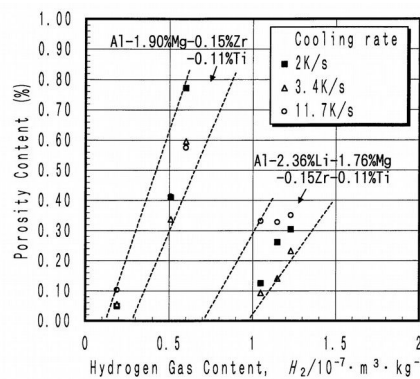


Figure 1.23 : Influence de l'ajout de lithium sur la formation de la porosité pour plusieurs gazages initiaux et refroidissements, d'après Saikawa et al. [1999].

D'après les résultats expérimentaux de Saikawa, nous pouvons voir que l'ajout de lithium n'augmente pas la porosité. Pour la même concentration en hydrogène dissout, l'alliage contenant du lithium montre une porosité inférieure ou égale à celle de l'alliage sans lithium. Ceci indique que la problématique du lithium dans les alliages d'aluminium provient surtout de l'augmentation de la solubilité, qui rend difficile le dégazage.

## 1.9. Conclusion sur l'étude bibliographique sur la porosité dans alliages d'aluminium

La première partie de l'étude bibliographique nous a d'abord permis de comprendre l'origine de la porosité. La porosité dans les alliages d'aluminium est le résultat de la précipitation de l'hydrogène sous forme gazeuse. Cette précipitation est rendue possible avec la forte microségrégation de l'hydrogène. En effet la solubilité de l'hydrogène dans la phase solide est beaucoup plus faible que dans la phase liquide.

À travers cette bibliographie, l'importance de la germination a été montrée. La germination ne peut être homogène donc elle s'amorce sur des substrats. Ces substrats sont probablement des oxydes et des morceaux de peaux d'oxydes qui ont emprisonné de l'air lors de leur formation. Cette poche d'air (ni l'azote ni l'oxygène ne sont solubles dans l'aluminium) représenterait un substrat très efficace pour la germination. Cette hypothèse d'une germination sur les oxydes est soutenue par plusieurs études qui ont montré l'importance de l'oxydation sur la porosité finale obtenue.

Le rôle de la microstructure du solide a été mis en évidence : en effet la microstructure modifie l'équilibre local entre le dihydrogène dans les pores et l'hydrogène dissout dans le liquide. Cet effet est lié à la modification de courbure des pores engendrée par la croissance des grains.

Dans la dernière partie de cette bibliographie nous avons vu que différents modèles de



prédiction de la porosité existent. Ces modèles permettent d'étudier la porosité à différentes échelles, dont celle du procédé qui nous intéresse. Nous pourrions alors nous appuyer sur ces modèles afin de proposer un modèle de prédiction de la porosité adapté aux spécificités de la coulée semi-continue.

## **2. La macroségrégation et la microstructure en coulée semi-continue d'aluminium**

À travers la bibliographie réalisée sur la porosité nous nous sommes aperçus de l'importance des structures de coulée. Ces structures de coulée se forment au moment de la solidification de l'alliage. Ces structures vont former les conditions locales de croissance de la porosité. Une description juste de cet environnement est alors nécessaire. Ces structures se composent de la forme des grains qui vont établir l'équilibre mécanique du pore mais aussi de la composition en éléments d'alliage qui va établir l'équilibre chimique du pore.

En partant de ce constat, nous proposons donc maintenant d'étudier la solidification à travers la mise en place de la ségrégation des éléments de composition de l'alliage et de la formation de la phase solide ainsi que de sa morphologie.

### **2.1. Transfert de chaleur et écoulement multiphasique dans la coulée semi-continue**

Nous présenterons le transfert de chaleur et l'écoulement multiphasique, régissant la mise en place des structures de solidification dans la coulée semi-continue d'aluminium, à partir de l'exemple d'une simulation numérique, obtenue avec le logiciel Solid [Založnik & Combeau 2010]. Ce modèle consiste en une description fortement couplée de la germination, de la croissance des grains, des écoulements multiphasiques et du transport de chaleur et de soluté. L'exemple illustré repose sur la solidification d'une plaque de 35 cm de largeur d'alliage 7449, plus d'informations sur cette plaque sont disponibles dans le chapitre 3 page 90.

La figure 1.24 représente le champ thermique et les iso-fractions solides dans la plaque simulée (figure de gauche) et quatre régimes d'écoulements identifiés en fonction de la fraction solide ( $g_s$ ). Seulement la moitié d'une plaque a été modélisée avec une condition limite de symétrie sur l'axe. Des différences de gradient thermique sont facilement observables dans la plaque, avec une solidification rapide près de la surface (à droite) et de moins en moins rapide vers le cœur de la plaque (à gauche). Nous pouvons aussi remarquer

que le gradient thermique est très faible dans la partie supérieure de la zone pâteuse au cœur de la plaque.

L'évolution de la fraction solide permet de séparer la plaque en quatre zones distinctes. La première zone ① se situe avant le début de la solidification, il y a seulement du liquide et l'écoulement est monophasique. La deuxième zone ② représente le régime où les grains solides ont germés et sont encore mobiles, cette zone est nommée « zone pâteuse ». C'est une zone d'écoulement diphasique avec une phase continue, le liquide, et une phase discontinue, les grains solides. Dans la zone ③, les grains sont bloqués et forment une zone poreuse, ils continuent de croître jusqu'à complète solidification. Cette zone est nommée « zone bloquée ». Lors de la transition entre ② et ③, les grains se bloquent, d'où l'utilisation du terme « front de blocage des grains ». La description de cette transition est complexe car elle dépend de plusieurs facteurs, la taille et la morphologie des grains mais aussi de l'intensité des vitesses des écoulements. On considère généralement que les grains se bloquent lorsqu'une fraction solide critique est atteinte. Cette fraction varie de 0,2 à 0,55 en fonction des alliages et des conditions d'inoculation [Arnberg et al. 1996].

La zone ④ correspond à la fin de solidification lorsque la phase solide est seulement advectée à la vitesse du produit.

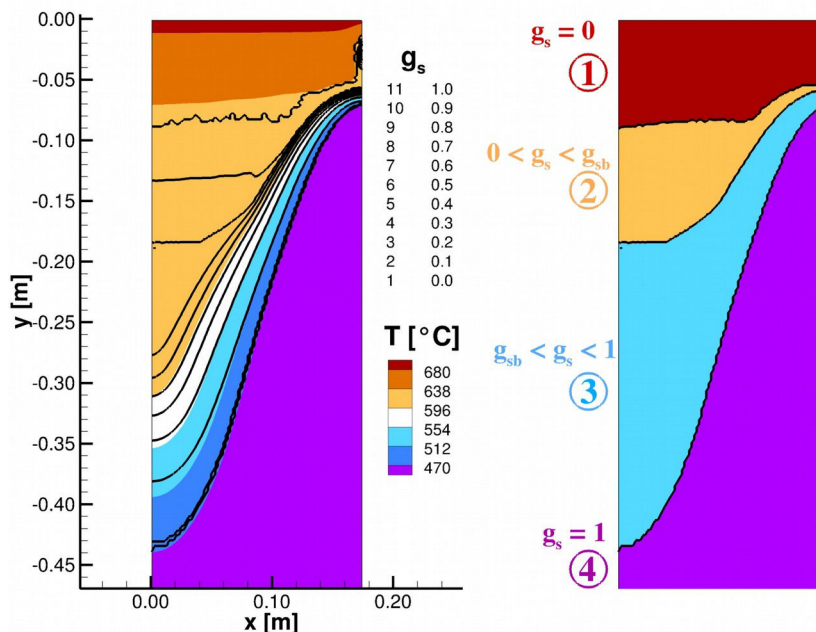


Figure 1.24 : Champ de température (en couleurs) et iso-fractions solide (traits noirs) associés aux quatre régimes d'écoulements identifiés en fonction de la fraction solide, ① Zone liquide, ② Zone pâteuse, ③ Zone bloquée, ④ Zone solide. (Résultat obtenu par simulation numérique)

Les parties gauches des figures 1.25.a et b représentent respectivement la norme de la vitesse de la phase liquide et de la phase solide, exprimée dans le repère du produit :

$$V_{l,s} = \sqrt{((v_{l,s} - v_p)^2 + u_{l,s}^2)} \quad (1.36)$$

avec  $v_p$  la vitesse du produit (paramètre de la coulée). L'expression des vitesses dans ce repère permet de s'affranchir de la vitesse additionnelle donnée par le procédé.

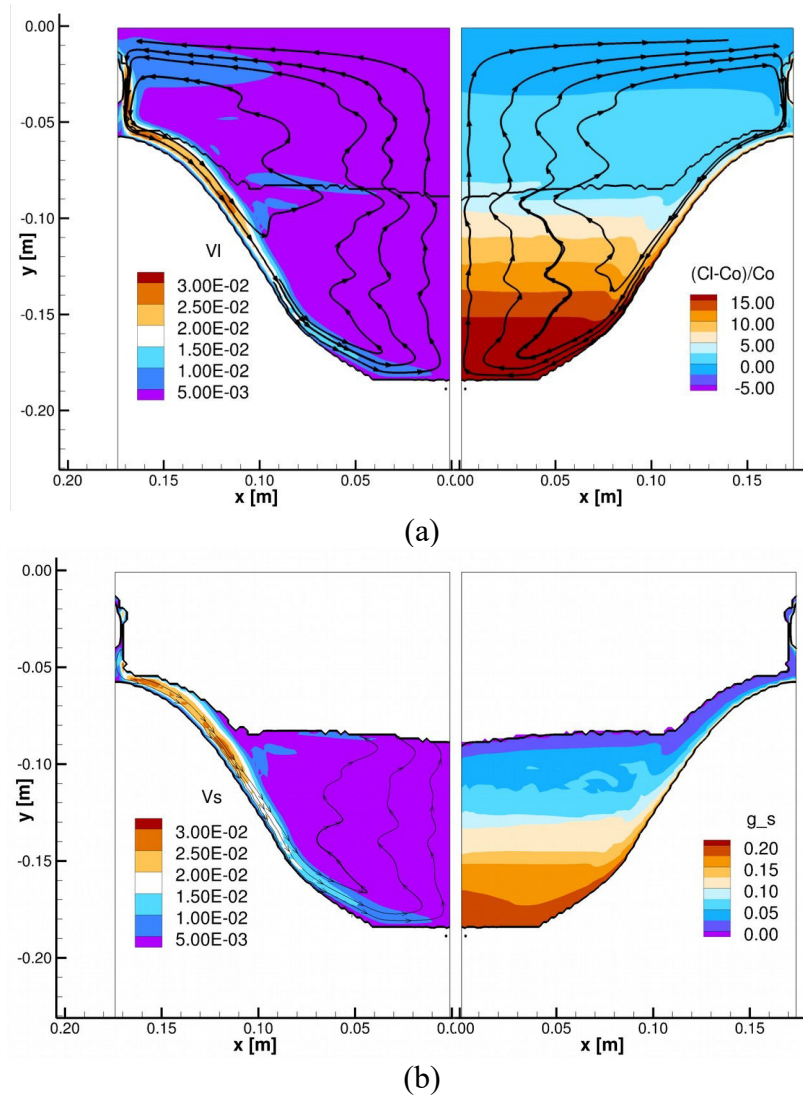


Figure 1.25 : Normes et lignes de courant de la vitesse de la phase (a) liquide et (b) solide dans le repère du produit et évolution de la composition de la phase liquide dans la zone ① et ②.

La boucle principale de convection est facilement explicable par la convection thermo-solutale, figure 1.25.a. Le liquide se refroidit près de la lingotière puis est entraîné vers le fond de la zone pâteuse. Le liquide a aussi tendance à s'enrichir en soluté lors de la

solidification. Dans le cas simulé, le soluté est plus lourd que l'aluminium, la convection solutale contribue donc à la boucle de convection dans le même sens que la convection thermique. Les vitesses de la phase liquide sont plus rapides le long du front de blocage avec des vitesses de l'ordre de  $10^{-2}$  m.s<sup>-1</sup>. Le liquide remonte ensuite avec des vitesses plus faibles, de l'ordre de  $10^{-3}$  m.s<sup>-1</sup>. Le mouvement d'ascension du liquide est perturbé par des gradients thermiques et solutaux existant dans la zone pâteuse.

L'écoulement de la phase solide est fortement lié à la différence de masse volumique entre le liquide et les grains  $\Delta\rho=\rho_s-\rho_l$ . Les grains sont généralement plus denses que le liquide et sédimentent. Ce mouvement de sédimentation entraîne le liquide, contribuant aussi à la formation de la boucle de recirculation du liquide. L'effet de traîné entre les grains et le liquide entraîne avec lui de la phase solide d'où le mouvement ascendant au centre. La vitesse de la phase solide, figure 1.25.b, est aussi la plus élevée le long du front de blocage avec des vitesses de l'ordre de  $10^{-2}$  [m/s]. Lorsque la fraction solide augmente, le mouvement de la phase solide est influencé par les interactions entre les grains.

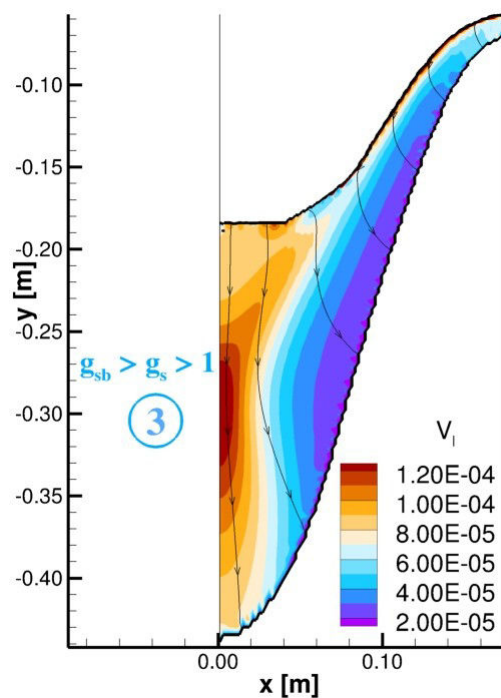


Figure 1.26 : Vitesse relative de la phase liquide dans la zone bloquée, zone ③.

Une fois que les grains se bloquent, dans la zone ③, on considère qu'ils forment un réseau rigide. Les déformations du squelette solide sont ici, comme souvent, négligées. Cependant la convection naturelle joue toujours un rôle avec notamment le retrait. Le retrait correspond à l'écoulement induit par la contraction lors de la solidification, il est dû à la différence de masse volumique entre le liquide et le solide. L'écoulement, figure 1.26, correspond à un écoulement dans un milieu poreux.

La perméabilité de ce milieu est directement corrélée à la fraction liquide. La structure particulière de l'écoulement dans la zone bloquée est le résultat d'un couplage entre la convection naturelle, le retrait et la forme de la zone de solidification. Dans l'exemple présenté on peut observer que les vitesses sont plus importantes au centre du produit.

### 2.1.1 Écoulement dans la zone bloquée

Dans la zone bloquée, décrite comme un milieu poreux hétérogène, le bilan de quantité de mouvement peut être modélisé avec une équation moyennée :

$$\frac{\partial(\rho_l g_l \vec{v}_l)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \vec{v}_l \vec{v}_l) = \nabla \cdot (\mu_l \nabla (g_l \vec{v}_l)) - g_l \nabla (P) - \frac{g_l \mu_l}{K} \vec{v}_l + \rho_l g_l \vec{g} \quad (1.37)$$

La perméabilité,  $K$ , peut être calculée avec le modèle de Kozeny-Carman :

$$K = \frac{DAS^2}{\pi^2 k_K \tau^2} \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2} \quad (1.38)$$

avec  $k_K$  la constante de Kozeny et  $\tau$  la tortuosité. Ces deux paramètres sont souvent pris équivalents à leurs valeurs pour un milieu composé de sphères, c'est-à-dire,  $k_K=5$  et  $\tau=6/\pi$ . Le DAS (Dendrite Arm Spacing ou espacement entre bras de dendrites) est une longueur caractéristique reflétant la taille et la morphologie de la microstructure. Cette longueur peut être la distance entre bras primaire  $\lambda_1$ , ou bien la distance entre bras secondaire  $\lambda_2$  (voir page 18) en fonction de la taille caractéristique des structures de solidification.

Plus cette longueur caractéristique est grande, plus la phase liquide peut s'écouler facilement dans la zone poreuse. Cette influence se traduit par une modification du couplage entre la convection et le retrait dans la zone poreuse. Plusieurs auteurs ont essayé de mesurer la perméabilité dans des structures équiaxes. Nous pouvons notamment remarquer les travaux de Poirier et Ocansey [1993] sur la mesure de la perméabilité pour une morphologie globulaire mais aussi dendritique d'un alliage Pb-Sn en cours de solidification. La figure 1.27 montre une compilation de résultats expérimentaux comparée à des modèles analytiques basés sur différents agencements dans l'espace de sphères. La perméabilité est exprimée de manière adimensionnée avec le rapport des surfaces sur le volume de solide au carré ( $S_v^2$ ). Bien que les valeurs expérimentales présentent une large dispersion, on peut remarquer que l'utilisation du modèle basé sur des sphères donne des résultats satisfaisants.

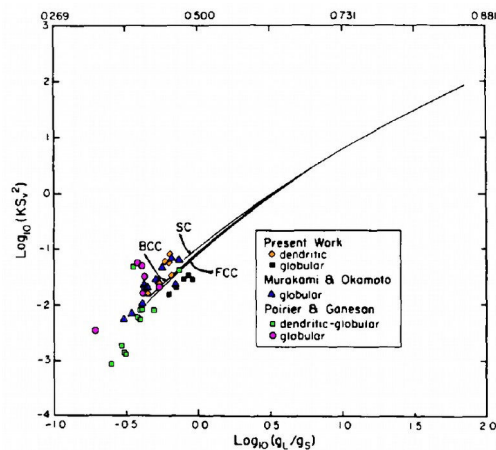


Figure 1.27 : Données expérimentales et modèles analytiques de perméabilité adimensionnée  $KS_v^2$  pour l'écoulement d'un liquide interdendritique dans une structure équiaxes. SC, BCC and FCC représentent des courbes analytiques pour un écoulement à travers des sphères ordonnées, en système cubique primitif SC (Simple Cubic), en système cubique centré BCC (Body-Centered Cubic) et en système cubique à faces centrées FCC (Face-Centered Cubic), d'après Poirier et Ocansey [1993] (les points expérimentaux ont été colorisés pour permettre une meilleure visibilité).

Plusieurs auteurs ([Khajeh & Maijer 2010], [Bernard et al. 2005]) ont calculé la perméabilité à partir de micro-tomographie. À partir des clichés en 3D obtenus en tomographie, un maillage est construit et l'écoulement est simulé. Cette technique permet de décrire précisément le tenseur de perméabilité. Khajeh et Maijer [2010] ont complété leur étude par une reconstruction à l'aide d'un procédé de prototypage rapide de la zone poreuse obtenue en tomographie. Puis, la perméabilité a été mesurée à l'aide d'un perméamètre. La figure 1.28 montre les résultats de ces deux articles. La perméabilité est toujours exprimée de manière adimensionnée. Les deux séries de résultats restent proches des résultats de la littérature précédente et confirment la bonne concordance, en termes d'ordre de grandeur et de tendance en fonction de la fraction solide, du modèle de Kozeny-Carman.

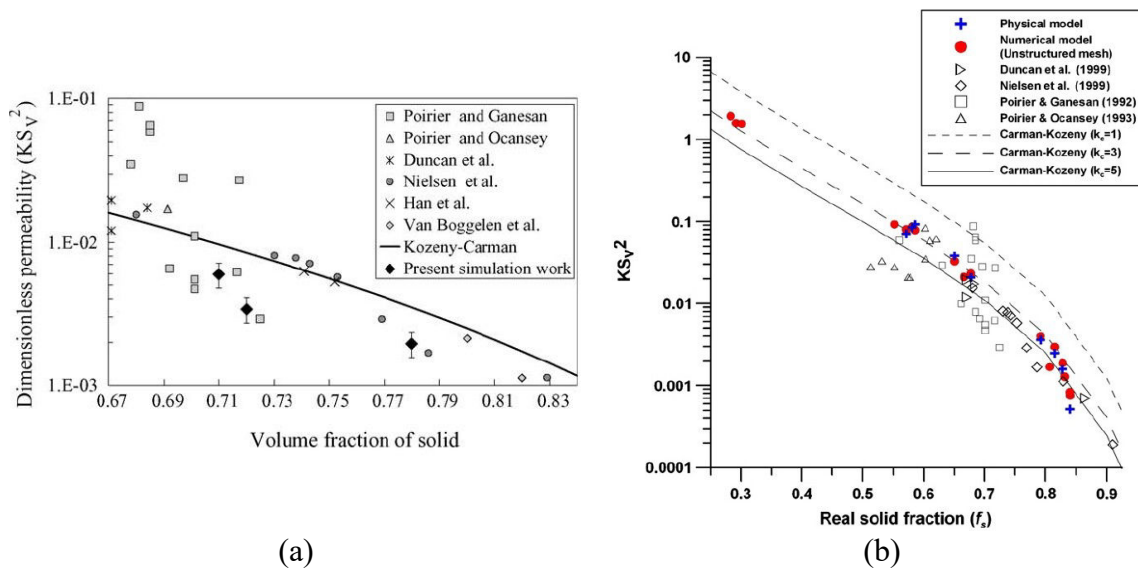


Figure 1.28 : (a) Comparaison entre la perméabilité adimensionnée calculée avec les données expérimentales de la littérature pour des alliages métalliques, et aussi la prédiction de Kozeny-Carman, d'après Bernard et al. [2005] (b) Comparaison entre la perméabilité adimensionnée calculée numériquement et obtenue expérimentalement avec les données de perméabilité obtenues avec un perméamètre, d'après Khajeh et Majjer [2010].

## 2.2. Microstructure en coulée semi-continu d'aluminium

La microstructure recherchée en coulée semi-continue d'aluminium est une microstructure équiaxe. Une transition colonnaire-équiaxe (CET) avec une importante zone colonnaire n'est présente que lorsque les compositions en éléments sont relativement faibles ([Flemings & Nereo 1967], [Hutt & St John 1998]). Une faible taille des grains est préférée car elle permet une plus grande vitesse de coulée avant l'apparition des problèmes de crique à chaud.

D'autres avantages d'avoir une taille fine peuvent être listés :

- Amélioration des propriétés mécaniques (résistance et ductilité)
- Amélioration de la formabilité de l'alliage
- Réduction du temps nécessaire pour les traitements d'homogénéisation
- Amélioration des propriétés de l'anodisation finale
- Réduction de la porosité.

### 2.2.1 *Utilisation de particules affinantes*

La taille des grains dépend des paramètres et de la technologie de coulée. Mais le moyen du contrôle de la taille de grains le plus courant dans l'industrie est l'ajout de particules affinantes lors de la coulée. Ces particules agissent comme un substrat qui facilite la germination hétérogène. Deux types d'affinant sont utilisés, Al-Ti-B et Al-Ti-C. Les particules affinantes sont prisonnières dans une matrice en Al sous la forme de tige. Ces tiges sont continuellement ajoutées au métal liquide avant la coulée. La matrice en Al en fondant libère les particules. La gamme d'injection varie de 1 kg à 10 kg d'affinant pour une tonne de métal.

Lorsque des particules affinantes sont utilisées, la morphologie des grains est liée à la composition de l'alliage avec souvent des grains globulaires mais parfois dendritiques. Par exemple, un alliage Al-Mn montre une morphologie globulaire alors que Al-Mg-Si une morphologie dendritique [Nadella et al. 2008a].

L'affinage des grains a un important effet sur le mouvement des grains équiaxes. Avec des particules plus fines et moins dendritiques, le blocage des grains est retardé. L'utilisation de particules affinantes déplace la fraction solide de blocage de 0,2 ~ 0,3 à 0,25 ~ 0,53 [Flemings & Nereo 1967].

### 2.2.2 *Taille des grains*

Une structure équiaxe et une taille de grain homogène sont recherchées afin d'obtenir des propriétés mécaniques homogènes. Cependant, la taille des grains n'est pas homogène, avec communément des grains plus larges au centre et plus fins près de la paroi ([Eskin et al. 2004], [Eskin et al. 2005], [Nadella et al. 2007]). Plusieurs observations expérimentales montrent aussi des structures duplex, une cohabitation de tailles et de morphologies (dendritique/globulaire) hétérogènes au centre des plaques et des billettes ([Finn et al. 1992], [Lesoult et al. 2001]). Il a été récemment montré que la distribution de la taille de grains est fortement influencée par le transport de ces particules affinantes et des grains équiaxes [Bedel 2014].

### 2.2.3 *Espacement des bras de dendrites (DAS : Dendrite Arm Spacing)*

Dans une structure dendritique, l'espacement des bras de dendrites (DAS) est une deuxième caractéristique importante de la microstructure. Un DAS plus faible réduit la microségrégation et la précipitation des particules intermétalliques à cause d'une distance de diffusion réduite. Le DAS caractérise aussi la perméabilité hydrodynamique de la partie



de la zone pâteuse dans laquelle les grains sont bloqués. Le DAS dans les grains dendritiques est conditionné par la maturation et dépend donc du temps de solidification. Les relations empiriques montrent que  $DAS = K \cdot t^n$ , ou  $K$  est une constante et l'exposant  $n$  est de l'ordre de  $1/3$  [Dantzig & Rappaz 2009]. En coulée continue, le DAS a donc tendance à augmenter lorsque l'on s'éloigne de la paroi à cause de la diminution générale du temps de solidification [Nagaumi 2001].

Le DAS varie en fonction des dimensions de la plaque/billette car ils modifient la distance par rapport à la source d'extraction et donc modifient la vitesse de solidification locale. Parmi les différents paramètres de coulée, la vitesse de coulée est le principal paramètre qui influence le DAS [Eskin et al. 2004].

L'ajout de particules affinant pour effet de réduire la taille des grains et d'augmenter le DAS [Finn et al. 1992], alors la morphologie des grains se globularise. Lorsque la morphologie devient que faiblement dendritique, le DAS devient très important, mais n'est plus représentatif de la microstructure. En effet lorsque les grains sont globulaires, l'espacement des bras de dendrites ne peut plus être défini.

### 2.3. La macroségrégation

La macroségrégation est une hétérogénéité de composition en éléments d'alliage à l'échelle du produit, certaines zones du produit sont plus ou moins enrichies en éléments d'alliage aux dépens d'autres zones. La macroségrégation des éléments composant l'alliage lors de la formation de la phase solide est à l'origine de la macroségrégation. La différence de solubilité d'un élément entre la phase liquide et solide va entraîner sa partition lors de la solidification. Cette ségrégation est localisée au niveau du grain. Ce phénomène peut s'exposer en s'appuyant sur un diagramme de phase binaire tel que présenté sur la figure 1.29. Le point 1 représente l'état du métal lorsqu'il est entièrement liquide avec une concentration  $C_0$  en élément X. Le métal liquide se refroidissant, il va atteindre le liquidus qui correspond à la température de début de solidification à l'équilibre thermodynamique. Les premiers cristaux qui se forment n'ont pas une concentration  $C_0$  mais une concentration plus faible, égale à la concentration du point 2S car la solubilité de l'élément X est plus faible dans la phase solide. Avec la baisse de température, la solubilité dans le solide augmente (point 3S), mais reste plus faible que dans le liquide. La masse de l'élément X se conservant, le liquide va s'enrichir en élément X (point 3L).

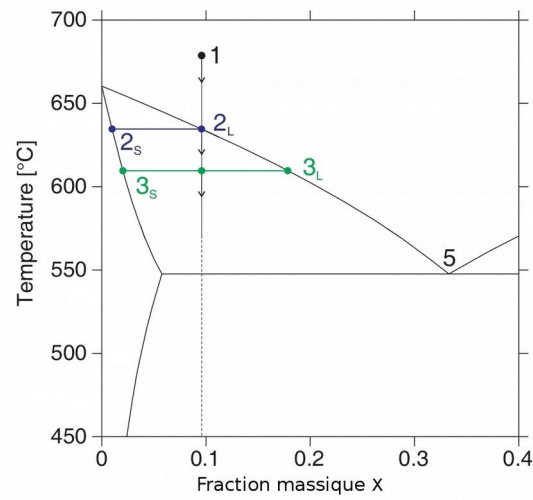


Figure 1.29 : Diagramme d'équilibre type d'un alliage binaire.

Puis, suivant les mouvements relatifs entre la phase liquide et solide, certaines zones seront enrichies et d'autres appauvries en éléments d'alliages. Dans la coulée semi-continue, on peut dénombrer plusieurs écoulements qui régissent la mécanique des fluides :

- La convection forcée :

L'écoulement peut être forcé par l'action d'un mélangeur mécanique ou bien magnétique. Le système d'injection du liquide est aussi une source d'écoulement forcé.

- La convection thermo-solutale :

L'évolution en température et en soluté du liquide modifie sa masse volumique. Puis les différences macroscopiques de masse volumique entraîne un mouvement de convection naturelle. L'évolution de la masse volumique peut se calculer la loi :

$$\rho_l = \rho_0 \left( 1 + \beta_T (T - T_{ref}) + \sum_{i=1}^{nb} \beta_C^i (C_l^i - C_{ref}^i) \right) \quad (1.39)$$

dans cette relation  $\beta_T$ , le coefficient d'expansion thermique, est négatif. La phase liquide devient plus dense à mesure qu'elle se refroidit. Le signe de  $\beta_C$ , le coefficient d'expansion solutale, peut être négatif ou positif en fonction de l'élément de composition.

- Le retrait :

La phase solide n'a pas la même densité que la phase liquide, elle est généralement plus dense. Cette contraction lors de la solidification induit donc un appel de liquide. L'influence du retrait est surtout importante en fin de solidification lorsque la fraction

solide est importante et le liquide est très enrichi en éléments d'alliage.

-Le mouvement des grains :

Après leur germination, les grains équiaxes sont mobiles. La différence de densité entre le liquide et le solide entraîne une sédimentation ou une flottaison des grains. Avec l'avancement de la solidification ces grains s'empilent pour former une zone pâteuse composée d'une phase solide fixe.

- La déformation du squelette solide :

La contraction de la phase solide lors de son refroidissement peut amener à des déformations macroscopiques. Ces déformations de la phase solide peuvent engendrer un mouvement de liquide en fin de solidification. L'impact de ces déformations est souvent négligé en coulée semi-continue d'aluminium.

- Autres sources de macroségrégation :

La précipitation d'une phase gazeuse lors de la solidification peut provoquer un déplacement de liquide et donc influencer la formation de la macroségrégation.

Pour pouvoir analyser la macroségrégation nous pouvons nous appuyer sur la somme moyennée des équations de conservation du soluté dans la phase liquide et dans la phase solide. À l'interface solide/liquide le bilan s'annule. La conservation du soluté s'écrit alors :

$$\frac{\partial(\rho C_m)}{\partial t} + \nabla \cdot (g_l \rho_l \vec{v}_l C_l + g_s \rho_s \vec{v}_s C_s) = \nabla \cdot (g_l \rho_l D_l \nabla C_l + g_s \rho_s D_s \nabla C_s) \quad (1.40)$$

avec  $\rho$  la masse volumique moyenne,  $C_m$  la composition massique moyenne,  $g_k$  la fraction solide de la phase  $k$ ,  $\rho_k$  masse volumique de la phase  $k$ ,  $\vec{v}_k$  vitesse intrinsèque de la phase  $k$  et  $D_k$  valeur de la diffusion de l'élément d'alliage dans la phase  $k$ .

La diffusion à l'échelle macroscopique est négligeable de par le très faible coefficient de diffusion des éléments, aussi bien dans la phase liquide que dans la phase solide, comparée à la vitesse de convection, qui est de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-2}$  m.s<sup>-1</sup>. Si l'on calcule le nombre adimensionnel de Péclet dans ces conditions pour une longueur caractéristique équivalente à la largeur d'une plaque de coulée semi-continue :

$$Pe = \frac{vL}{D_l} \approx \frac{(1.10^{-3} [m/s])(0.02 [m])}{1.10^{-9} [m^2/s]} = 2.10^4 \gg 1 \quad (1.41)$$

Le nombre de Péclet est bien supérieur à l'unité, ce qui nous permet de négliger la diffusion et de réécrire la conservation du soluté sans la partie diffusive :

$$\frac{\partial(\rho C_m)}{\partial t} + \nabla \cdot (g_l \rho_l \vec{v}_l C_l + g_s \rho_s \vec{v}_s C_s) = 0 \quad (1.42)$$

Si on suppose que le liquide est localement à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire que l'on suit localement le diagramme d'équilibre, on peut écrire :

$$T = T_f + m_L C_l \quad (1.43)$$

Cette hypothèse n'est pas valide lorsque la vitesse de refroidissement est importante. Dans notre cas d'étude, elle ne peut pas être tenue dans la zone près du moule, mais reste valide au centre du produit, où le gradient thermique est relativement faible. Si on suppose que le solide est aussi à l'équilibre thermodynamique, on peut exprimer sa concentration moyenne  $C_s = k_p C_l$ . L'équation, une fois exprimée dans le repère du produit avec  $\vec{v}_{srel} = \vec{v}_s - \vec{v}_{cast}$ ,

$\vec{v}_{lrel} = \vec{v}_l - \vec{v}_{cast}$  et  $\frac{\partial(\rho C_m)}{\partial t} = \frac{d(\rho C_m)}{dt} \Big|_{\vec{v}_{cast}}$ , s'écrit :

$$\frac{d\rho C_m}{dt} \Big|_{\vec{v}_{cast}} = \frac{-1}{m_l} (k_p g_s \rho_s \vec{v}_{srel} + g_l \rho_l \vec{v}_{lrel}) \cdot \nabla T - k_p C_l \nabla \cdot (g_s \rho_s \vec{v}_{srel}) - C_l \nabla \cdot (g_l \rho_l \vec{v}_{lrel}) \quad (1.44)$$

avec,  $m_l$  la pente du liquidus,  $k_p$  le coefficient de partage de l'élément.

À partir de cette équation nous pouvons étudier deux situations : des grains libres ou des grains bloqués. Dans la zone du régime libre, nous pouvons considérer  $\rho_s = \rho_l$  car l'effet du retrait sur la macroségrégation est très faible devant la convection naturelle. L'équation se simplifie donc :

$$\frac{dC_m}{dt} \Big|_{\vec{v}_{cast}} = \frac{-1}{m_l} (k_p g_s \vec{v}_{srel} + g_l \vec{v}_{lrel}) \cdot \nabla T - k_p C_l \nabla \cdot (g_s \vec{v}_{srel}) - C_l \nabla \cdot (g_l \vec{v}_{lrel}) \quad (1.45)$$

ou bien en tenant en compte de  $\nabla \cdot (g_l \vec{v}_{lrel}) = -\nabla \cdot (g_s \vec{v}_{srel})$  lorsque  $\rho_s = \rho_l$  :

$$\frac{dC_m}{dt} \Big|_{\vec{v}_{cast}} = (1 - k_p) C_l \nabla \cdot (g_s \vec{v}_{srel}) - \frac{1}{m_l} (k_p g_s \vec{v}_{srel} + g_l \vec{v}_{lrel}) \cdot \nabla T \quad (1.46)$$

Dans la zone bloquée où la vitesse relative est nulle pour la phase solide mais où le retrait peut jouer un rôle important, l'équation se réécrit en :

$$\left. \frac{d(\rho C_m)}{dt} \right|_{\vec{v}_{\text{cost}}} = -C_l \nabla \cdot (g_l \rho_l \vec{v}_{\text{rel}}) - \frac{1}{m_l} (g_l \rho_l \vec{v}_{\text{rel}}) \cdot \nabla T \quad (1.47)$$

Les équations (1.46) et (1.47) permettent de comprendre l'origine de la macroségrégation. Dans l'équation (1.46), le premier terme de la partie droite est à mettre en relation avec l'effet du mouvement des grains et le deuxième terme exprime l'effet du changement de phase et l'écoulement par rapport à l'orientation du gradient thermique. Dans l'équation (1.47), le premier terme de la partie droite correspond à l'effet du retrait et le deuxième terme correspond au déplacement du liquide par rapport au gradient thermique.

Nous allons maintenant illustrer le développement de la macroségrégation dans la coulée semi-continue de l'aluminium avec l'exemple introduit dans la section 2.1. Il est important de préciser que les observations qui vont suivre ne peuvent être généralisées mais permettent de mieux saisir la façon dont la macroségrégation se développe dans ce procédé. La carte présentée sur la figure 1.30.a représente la composition moyenne exprimée relativement par rapport à la composition initiale sur l'ensemble du produit. Le profil associé, figure 1.30.b, représente la macroségrégation finale obtenue. Grâce au profil, nous pouvons dissocier plusieurs zones : une première zone, au centre de la plaque avec une macroségrégation négative, une deuxième zone au quart épaisseur de la plaque où la macroségrégation est positive, et une dernière zone près de la surface de la plaque où la macroségrégation est en moyenne nulle (les oscillations observables sur le profil sont d'origines numériques).

La figure 1.31 montre le profil de macroségrégation selon l'axe  $y$  au centre de la plaque. Ce profil nous permet de nous rendre compte de l'évolution de la macroségrégation. On peut observer que la macroségrégation est positive avant même que le liquidus soit atteint. Dans les conditions de simulation du cas d'étude, on observe que toute la zone pâteuse est ségrégée positivement. Puis survient un saut négatif de composition associé à un léger saut de fraction solide. C'est le blocage des grains qui crée ce phénomène. Lors du blocage des grains, leur vitesse de sédimentation est ramenée à la vitesse du produit. Et si l'on se réfère à l'équation 1.46, une variation de vitesse de la phase solide est susceptible de créer une ségrégation. Les grains, qui sont plus pauvres en éléments que le liquide, ont tendance à s'empiler au centre de la plaque et à chasser le liquide enrichi, produisant une ségrégation négative. Ce phénomène peut être influencé notamment par la vitesse de sédimentation et par la quantité de phase solide qui sédimente. Dans notre cas d'étude, on observe une zone pâteuse presque exclusivement ségrégée négativement. Un changement dans la macroségrégation est clairement observable dans la partie centrale de la plaque dans la zone bloquée, figure 1.30.a et figure 1.31.

Enfin, lorsque la solidification atteint le point eutectique, un saut de fraction solide intervient. Ce saut est observable sur la figure 1.31. La fin rapide de solidification entraîne

un second saut de ségrégation. Ce saut provient lui aussi d'un changement de vitesse, mais cette fois-ci, de la phase liquide. La vitesse additionnelle procurée par le retrait est stoppée. Le liquide, qui est très riche, se retrouve bloqué et forme cette ségrégation positive.

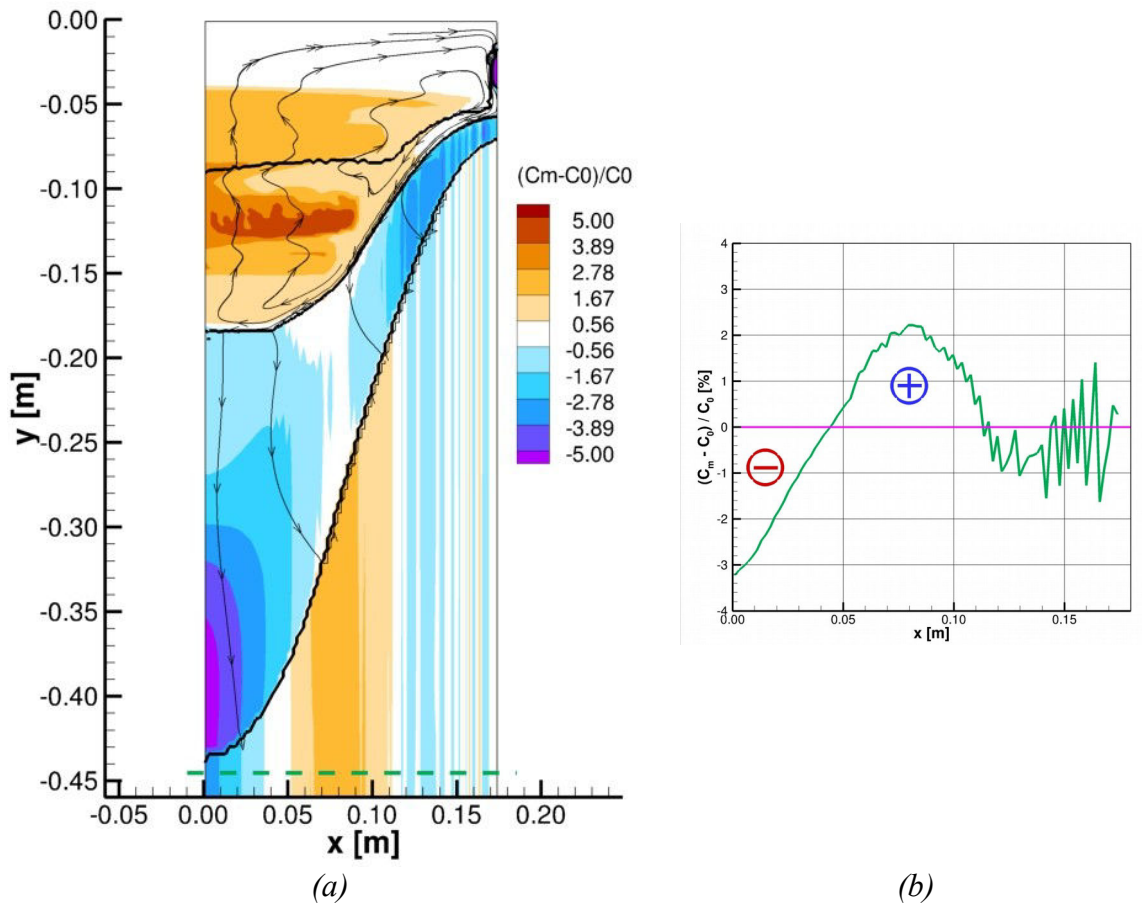


Figure 1.30 : (a) carte de la macroségrégation exprimée relativement, avec l'écoulement relatif de la phase liquide, et (b) le profil final de macroségrégation, (extrait au plan de coupe symbolisé en pointillés verts).

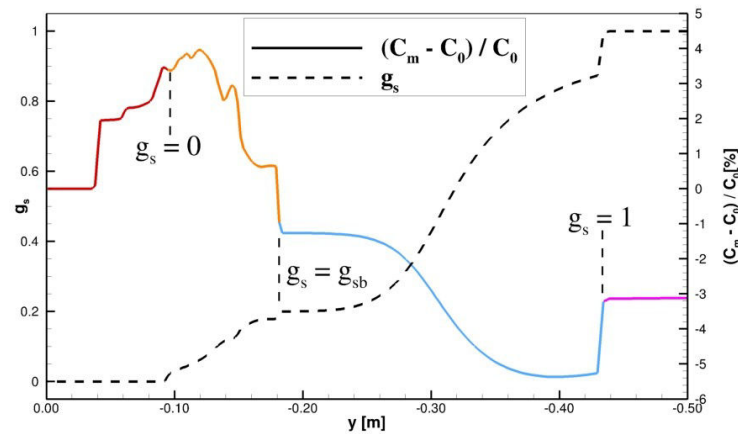


Figure 1.31 : Évolution de la macroségrégation et de la fraction solide au centre de la plaque le long de l'axe  $Y$ . Les couleurs sur la courbe font référence aux différentes zones dans la plaque, voir figure 1.24.

D'une manière générale, la forme du marais a une très grande importance sur l'établissement de la macroségrégation. La profondeur du marais est notamment très critique : en effet une profondeur de marais plus importante donne à l'écoulement lié au retrait plus d'influence dans l'établissement des ségrégations. Parmi les différents paramètres du procédé, la vitesse de coulée a la plus forte influence devant la surchauffe et le débit d'eau [Nadella et al. 2008a].

## 2.4. Effet des paramètres de coulée sur la macroségrégation

L'exemple exposé précédemment nous a montré que l'établissement de la macroségrégation était directement lié aux écoulements. Un changement de ces écoulements, avec par exemple une convection plus intense ou une zone bloquée plus perméable, entraîne une variation de la macroségrégation. La forme de la billette/plaque, ainsi que ses dimensions, influencent aussi la macroségrégation. Les paramètres de coulée, par leurs actions sur les écoulements, sont aussi des sources de modifications. Nous allons voir l'impact de ces paramètres sur la macroségrégation.

### 2.4.1 Géométrie du produit

Une augmentation de l'épaisseur, ou du diamètre, ralentit la solidification à cœur et augmente la profondeur du marais. Cette augmentation de profondeur donne plus d'importance à l'écoulement de retrait. La ségrégation au centre a tendance à devenir de plus en plus négative avec l'augmentation de l'épaisseur [Eskin 2008].

### 2.4.2 Refroidissement

Bien qu'une influence du débit d'eau sur l'établissement de la macroségrégation ait été mise en évidence par Eskin et al. [2004], cet effet reste marginal par rapport à l'influence de la géométrie du produit ou de la vitesse de coulée. Le débit d'eau modifie peu la forme du marais [Nadella et al. 2008a].

### 2.4.3 Vitesse de coulée

La figure 1.32 représente l'évolution de la macroségrégation pour trois vitesses de coulée : 120 mm/min, 160 mm/min et 200 mm/min [Eskin et al. 2004]. L'alliage utilisé est composé principalement de cuivre avec une composition nominale de 4.31wt.%Cu, 0.11Wt.%Si et 0.22Wt.%Fe. L'augmentation des ségrégations est facilement observable sur toute la section de la billette. Les auteurs de l'étude concluent qu'une augmentation de la vitesse de coulée provoque une amplification des phénomènes de transport et un approfondissement du marais. Ces phénomènes mènent donc d'après eux à une augmentation des ségrégations.

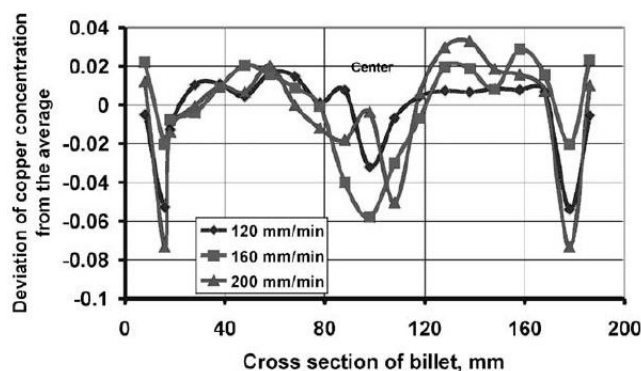


Figure 1.32 : Effet de la vitesse de coulée sur la distribution de la composition relative de cuivre ( $(Cu - Cu_{nominale})/Cu_{nominale}$ ) dans la section horizontale d'une billette de diamètre 200 mm et avec une composition initiale de 4.31 Cu, 0.11 Si, 0.22 Fe wt.%, d'après Eskin et al. [2004].

La vitesse de coulée est déterminante pour le rendement industriel, cependant une augmentation de cette vitesse augmente les risques d'une macroségrégation trop prononcée. La vitesse de coulée utilisée est alors un compromis entre macroségrégation acceptable et productivité.



#### 2.4.4 *Système d'alimentation en liquide*

Le système utilisé pour injecter le métal modifie aussi la macroségrégation. Plusieurs observations expérimentales ont permis de mettre en évidence ce phénomène. Daloz et al. [2002] dans leur étude sur un alliage 5182, lors du programme EMPACT, ont observé l'impact de la mise en place d'un combo-bag. Le combo-bag, composé d'un filet poreux, est souvent utilisé lors de la coulée afin de réduire les mouvements turbulents lors de l'injection du métal liquide. Lorsque le combo-bag n'est pas utilisé, il y a moins de ségrégation. Cet effet de réduction est plus important lorsque l'alliage n'est pas inoculé.

L'inclinaison de l'injecteur de métal a été étudié par Zhang et al. [2012], avec un cas où le métal était injecté verticalement au centre de la billette et un autre cas où le métal était injecté obliquement dans quatre directions. Les auteurs ont montré que l'injection modifiait la forme de la zone pâteuse ainsi que la circulation du liquide dans cette zone. Lorsque le métal est injecté verticalement et au centre de la billette la zone pâteuse est creusée.

Par contre, la température d'injection du liquide n'a que peu d'influence sur la macroségrégation globale. Nadella et al. [2008a] suggèrent que le renforcement de la convection engendrée augmente le mouvement des grains, et que l'effet sur la macroségrégation de ces deux phénomènes s'annule. Cependant une augmentation trop importante de la température est susceptible de favoriser l'exsudation à la paroi. L'exsudation est le percement de la coquille solidifiée près du moule par du liquide.

#### 2.4.5 *Nature des éléments d'alliage*

La figure 1.33 montre le profil de macroségrégation pour trois éléments de l'alliage 2024 (Al-Cu-Mg-Mn) solidifié dans une billette de 200 mm d'épaisseur à une vitesse de coulée de 120 mm/min. La billette a été affinée lors de la coulée. On observe une différenciation des profils en fonction de l'élément, spécialement pour le titane qui montre une ségrégation inversée par rapport au fer et au manganèse. En effet, le coefficient de partage du Ti est supérieur à 1 alors qu'il est inférieur à 1 pour Mn et Fe. La valeur du coefficient de partage est très importante car elle détermine la microségrégation de l'élément. Plus cette valeur sera faible par rapport à l'unité, ou à l'inverse beaucoup plus grande que l'unité, plus l'élément aura tendance à ségréger.

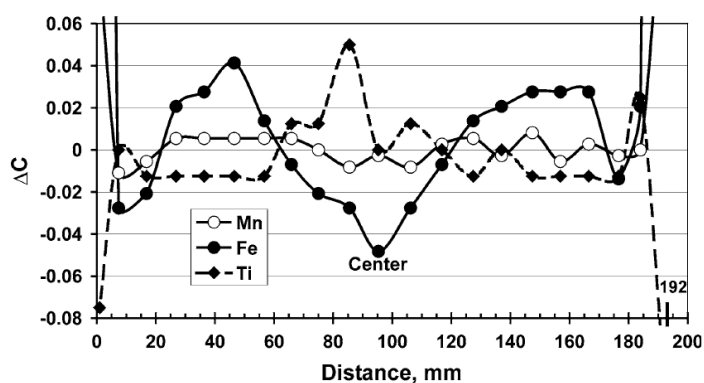


Figure 1.33 : Profil de macroségrégation relative en Fe, Mn, Ti pour une billette affinée (GR-F-12, 0.009 pct Ti) à une vitesse de coulée de 120 mm/min. Les valeurs pour Ti sont divisées par 10, d'après Nadella et al. [2008b] pour un alliage 2024.

Néanmoins, le coefficient de partage n'est pas la seule caractéristique de l'élément à influencer la macroségrégation. La masse volumique de la phase liquide et solide dépend également des éléments d'alliage. Pour la convection naturelle, chaque alliage doit être traité dans sa globalité, car tout élément, même à faible concentration, peut jouer un rôle important.

#### 2.4.6 Effet de l'ajout de particules affinantes

L'effet de l'ajout de particules affinantes est complexe car cet ajout modifie l'ensemble des phénomènes. La modification de la morphologie et de la taille des grains influence le mouvement des grains mais aussi la perméabilité de la zone bloquée. La complexité de ce couplage se retrouve dans les observations expérimentales.

L'ajout de particules affinantes par Daloz et al. [2002] dans une plaque 1850 mm x 550 mm d'alliage 5182 amplifie la ségrégation centrale négative. Vreeman et al. [2002] observent le même effet sur une billette d'Al-6%wt.Cu de 400 mm d'épaisseur. La figure 1.34 montre les deux profils obtenus, avec et sans particules affinantes. Lorsque l'alliage n'est pas inoculé, la ségrégation centrale est drastiquement diminuée jusqu'à montrer une ségrégation positive sur un point expérimental. Des observations similaires ont été reportées par Glenn et al. [2003].

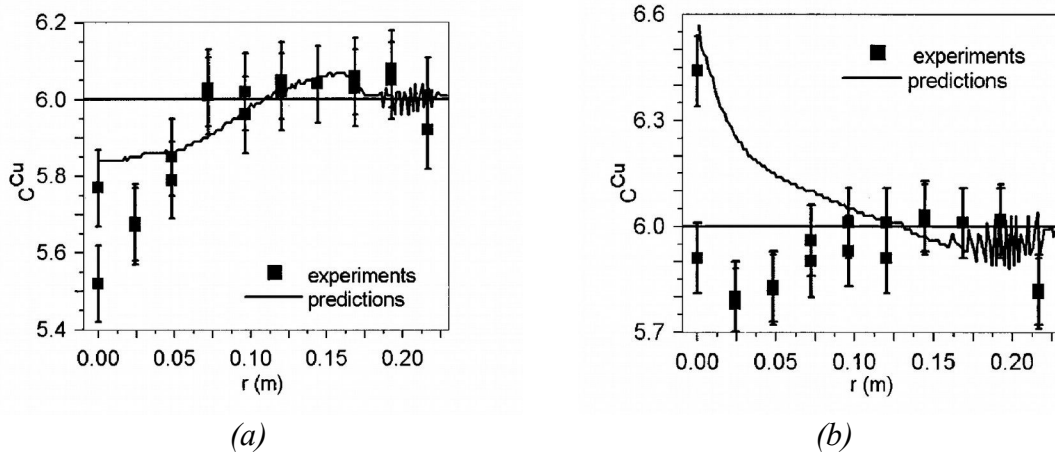


Figure 1.34 : (a) Comparaison entre la composition calculée et expérimentale pour la billette affinée (b) Comparaison entre la composition calculée et expérimentale pour la billette non affinée, d'après Vreeman et al. [2002].

Cependant les résultats expérimentaux de Finn et al. [1992] montrent un évolution contraire dans leur étude de la solidification d'une billette d'alliage Al-4.5%wt.Cu de 533 mm d'épaisseur. Alors que la ségrégation centrale est négative sans particules affinant, elle devient positive lorsque les particules sont ajoutées.

Les études menées par Nadella et al. [2008b] de la solidification de plusieurs alliages commerciaux en billette de 200 mm d'épaisseur n'ont pas montré de changement significatif entre les résultats avec et sans particules affinant. L'absence d'effet pourrait être liée à la modification importante de la perméabilité dans la zone bloquée qui compenserait l'augmentation du mouvement des grains.

L'influence de l'ajout ou non de particules affinant montre bien l'importance des couplages entre l'établissement des écoulements et la morphologie/microstructure qu'exhibe la phase solide.

## 2.5. Modélisation de la macroségrégation dans la coulée semi-continue d'aluminium

Plusieurs modèles de macroségrégation existent dans la littérature, plusieurs d'entre eux ont été utilisés afin de simuler l'établissement de la macroségrégation en coulée semi-continue d'aluminium. Le tableau 1.6 résume des modèles souvent comparés à l'expérience : quatre modèles récurrents dans la littérature et le modèle Solid développé dans l'équipe 302 de l'institut Jean Lamour [Založnik & Combeau 2010]. Le tableau est divisé en deux, avec une partie qui regroupe les phénomènes macroscopiques et l'autre qui regroupe les phénomènes microscopiques. Les modèles sont nommés par rapport à leur principal contributeur.

Une rapide visualisation du tableau 1.6 permet de se rendre compte que les phénomènes macroscopiques sont généralement pris en compte au contraire des phénomènes microscopiques. Pourtant, nous venons de voir que l'établissement de la macroségrégation était directement lié à la microstructure et à la morphologie des grains.

Le modèle de Beckermann [Reddy & Beckermann 1995] prend en compte l'ensemble des phénomènes macroscopiques. Cependant les phénomènes microscopiques sont simplifiés, la densité des grains est fixée, le rayon augmente avec la fraction solide. Une comparaison des résultats de ce modèle aux résultats expérimentaux obtenus par Finn et al. [1992] a été réalisée, figure 1.35. Ces résultats expérimentaux proviennent d'une étude sur la solidification avec ajout de particules affinantes d'une billette de 533 mm de diamètre d'Al-4.5wt.% Cu. La comparaison n'est pas concluante, figure 1.35, le profil de ségrégation expérimental est positif au centre de la plaque alors que le profil simulé exhibe une ségrégation négative. Cette remarque n'est valable que lorsque le mouvement de la phase solide est considéré. Sans prise en compte de ce mouvement, la ségrégation obtenue devient positive au centre de la billette et correspond aux observations expérimentales. Cependant le mouvement de la phase solide ne peut être négligé, surtout lorsqu'il y a inoculation de la coulée.

Tableau 1.6 : Résumé des caractéristiques principales des modèles présents dans la littérature

	« Beckermann » [Reddy & Beckermann 1995]	« Jalanti » Jalanti [2000]	« Eskin » [Eskin et al. 2005]	« Vreeman » Vreeman et Incropera [2000]	Solid [Bedel 2014]
<b>Modèle macroscopique</b>					
Retrait	oui et variable	oui et constant	oui et constant	oui et constant	oui et constant
Convection naturelle	oui, $\rho_l$ variable et $\rho_s$ constant	non, $\rho_l$ et $\rho_s$ constant	oui, $\rho_l$ variable et $\rho_s$ constant	oui, $\rho_l$ variable et $\rho_s$ constant	oui, $\rho_l$ variable et $\rho_s$ constant
Mouvement des grains	oui	<i>non pris en compte</i>	<i>non pris en compte</i>	oui	oui
Perméabilité	équivalent à Carman-Kozeny	modèle de Carman-Kozeny	modèle de Carman-Kozeny	modèle de Carman-Kozeny	modèle de Carman-Kozeny
<b>Modèle microscopique</b>					
Modèle de micro-ségrégation	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
Germination	densité de germe fixe	<i>non pris en compte</i>	<i>non pris en compte</i>	<i>non pris en compte</i>	classes de germes associées à une surfusion
Croissance	densité fixé, diamètre fonction de $g_s$	<i>non pris en compte</i>	<i>non pris en compte</i>	diamètre fixé, densité fonction de $g_s$	diamètre et densité variable
Morphologie des grains	globulaire	<i>non pris en compte</i>	<i>non pris en compte</i>	globulaire	globulaire et dendritique avec transition
<b>Couplage</b>	fort	fort	<i>faible</i>	fort	fort

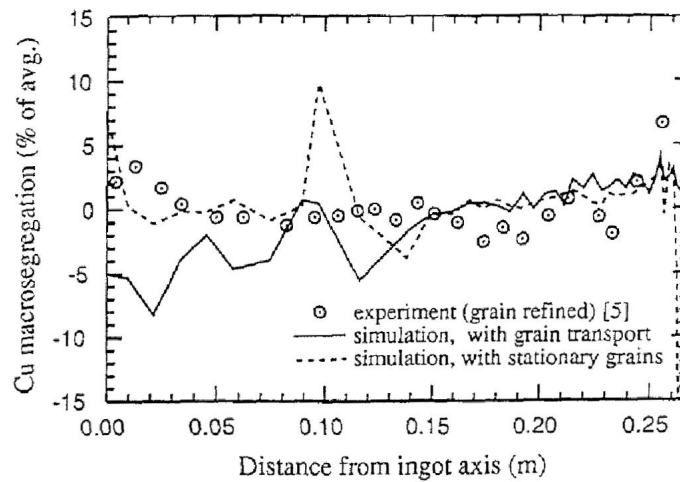


Figure 1.35 : Comparaison entre le profil expérimental et les profils numériques obtenus avec et sans la prise en compte du mouvement des grains, d'après Reddy et Beckermann [1995].

Jalanti [2000] propose un modèle simplifié où seulement l'écoulement induit par le retrait est pris en compte pour les phénomènes macroscopiques. À l'échelle microscopique, ni la germination ni la croissance des grains ne sont modélisées. L'évolution de la phase solide suit la loi des bras de levier ou la loi de Scheil. Les auteurs ont comparé les résultats du modèle à des résultats expérimentaux obtenus sur une plaque de 510 mm d'épaisseur d'alliage Al-4wt%Mg. Une correspondance avec les résultats expérimentaux n'a pu être obtenue qu'avec une distance interdendritique secondaire considérable de 4 mm. Une telle distance ne peut être justifiée.

Vreeman et al. [2000] et Vreeman et Incropera [2000] ont proposé un modèle basé sur celui de Beckermann. Le modèle microscopique a été simplifié, la croissance des grains suit la loi des bras de levier et le diamètre des grains est fixé. Vreeman et al. [2002] comparent les résultats numériques et expérimentaux obtenus avec une billette de 400 mm d'épaisseur d'alliage Al-6wt.%Cu. Deux comparaisons ont été réalisées, avec et sans ajout de particule affinante. La figure 1.34 présente ces comparaisons. On peut voir que la tendance est bien respectée pour le cas avec particules affinantantes mais pas pour le cas sans particule. Pour ce dernier cas, les auteurs ont négligé tout mouvement de la phase solide. Ce résultat montre bien que le mouvement des grains ne peut être négligé même lorsque la coulée n'est pas inoculée.

Le modèle développé par Eskin et al. n'a été que récemment utilisé pour réaliser des comparaisons directes entre profils de macroségrégation simulés et expérimentaux. Cependant, le modèle a été plusieurs fois utilisé pour décrire les écoulements en coulée

semi-continue d'aluminium afin de proposer des explications aux observations expérimentales ([Suyitno et al. 2006], [Eskin et al. 2005] [Zhang et al. 2012]). Du et al. [2007] ont comparé les résultats numériques et expérimentaux avec un alliage 2024 (Al-Cu-Mg). Seul un accord semi-quantitatif a pu être obtenu. La ségrégation négative centrale est surestimée alors que le modèle ne prend pas en compte le mouvement des grains. Les auteurs estiment qu'une meilleure description de la perméabilité de la zone bloquée serait nécessaire ainsi qu'une description du mouvement de la phase solide.

Le modèle Solid a été développé au sein de l'équipe 302 de l'Institut Jean Lamour et il est maintenant utilisé par un consortium d'industriels. Par rapport aux autres modèles de la littérature, ce modèle a la particularité d'avoir une description précise des phénomènes physiques microscopiques. La microségrégation est calculée avec un modèle de croissance qui prend en compte une diffusion limitée dans le liquide et dans le solide. Un aspect original du modèle Solid est la prise en compte de l'inoculation à travers une loi discrète qui représente le niveau des particules d'inoculant ajoutées au bain liquide [Bedel 2014]. Ce modèle a permis de mettre en évidence le rôle du mouvement des particules d'inoculant dans la mise en place de la microstructure. La mise en place d'un modèle à trois phases pour la croissance des grains, avec une distinction entre le liquide interdendritique et extradendritique, permet de prédire une morphologie pour les grains mais aussi de prendre en compte l'impact de la morphologie sur le mouvement et l'empilement des grains équiaxes.

## 2.6. Conclusion sur la mise en place des structures de solidification

À travers cette seconde partie de la bibliographie, nous avons exploré les différents phénomènes responsables de la mise en place des structures de solidification, avec une emphase sur le procédé de coulée semi-continue. Dans un premier temps nous avons décrit les écoulements de la phase liquide ainsi que de la phase solide lors d'une coulée. Cette description s'est basée sur un cas simulé avec le logiciel Solid.

Les écoulements sont très importants pour la mise en place des structures. En effet, ce sont les différences d'écoulement entre la phase liquide et solide qui forment la macroségrégation. Une description précise de ces écoulements est donc nécessaire pour une estimation précise de la macroségrégation. La microstructure dans l'alliage d'aluminium est influencée par l'ajout de particules affinantes. Ces particules inoculent l'aluminium liquide, ils améliorent la germination en proposant des substrats favorables à la nucléation de la phase solide. La prise en compte du mouvement de ces particules est nécessaire afin de prédire correctement la microstructure finale. Ce qui, une nouvelle fois, fait ressortir le rôle prépondérant des écoulements dans la mise en place des structures de coulée.

Puis nous avons passé en revue l'influence des paramètres de coulée sur la macroségrégation et la microstructure. Pour une même taille de produit, la vitesse de coulée semble jouer le rôle le plus important.

Nous avons terminé cette bibliographie par un résumé descriptif des différents modèles qui ont servi à prédire la macroségrégation en coulée semi-continue. Peu de ces modèles ont réussi à la prédire sans adapter les paramètres de manière excessive.



## Chapitre 2 : Modèles : modification et création

Ce chapitre se consacre à la construction des outils numériques utilisés pour les études réalisées lors du travail de thèse. La première partie de ce chapitre concerne l'amélioration du modèle du mouvement des grains dans le logiciel Solid. La seconde partie concerne la construction du modèle de porosité qui a été utilisé pour étudier la formation de la porosité en coulée semi-continue d'aluminium.

### 1. Mouvement de la phase solide

Cette partie commence avec la description des équations de la mécanique des fluides résolues dans la version précédente du logiciel SOLID. Nous verrons ensuite comment améliorer ce modèle pour qu'il prenne en compte l'inertie des grains ainsi que l'influence des collisions entre les grains équiaxes sur l'écoulement de la phase solide. Enfin, nous allons appliquer ce modèle de mouvement de la phase solide au cas d'étude d'une sédimentation de solution dense.

#### 1.1. Modèle précédemment implémenté dans SOLID

Le modèle précédemment implémenté dans le logiciel SOLID a été établi avec plusieurs hypothèses concernant le mouvement de la phase solide. L'inertie des grains est considérée comme négligeable et les effets de la multiplicité des grains sont simplifiés. Par ailleurs, l'effet des contacts entre les grains n'est pas pris en compte.

##### 1.1.1 Équations précédemment résolues

Nous allons commencer cette partie en rappelant les équations résolues dans la précédente itération du logiciel SOLID.

Les équations de continuité moyennées pour la phase solide et pour la phase liquide s'écrivent :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_s \rho_s) + \nabla \cdot (\rho_s g_s \langle \vec{v}_s \rangle^s) = \Gamma_s \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_l \rho_l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = -\Gamma_s \quad (2.2)$$

avec  $\langle \vec{v}_k \rangle^k$  la vitesse moyenne intrinsèque de la phase  $k$  et  $\Gamma_s = \frac{\partial}{\partial t}(\rho_s g_s)$  le taux de solidification.

La conservation de la quantité de mouvement pour la phase liquide lorsque le mouvement des grains est considéré, ( $g_s < g_{sb}$ ), s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = \\ \nabla \cdot (\rho_l g_l \mu_l \nabla \langle \vec{v}_l \rangle^l) - C_D k (\vec{v}_s - \vec{v}_l) - g_l \nabla \langle p \rangle - g_l \Gamma_s \langle \vec{v}_l \rangle^l + \rho_l g_l \vec{g} \end{aligned} \quad (2.3)$$

Lorsque la phase solide n'est pas bloquée, la conservation de la quantité de mouvement simplifiée pour cette phase s'écrit :

$$0 = C_D k (\vec{v}_s - \vec{v}_l) - g_s \nabla p + \rho_s g_s \vec{g} + g_s \Gamma_s \langle \vec{v}_s \rangle^s \quad (2.4)$$

La simplification de la quantité de mouvement de la phase solide permet une simplification de la résolution en additionnant les deux bilans de quantité de mouvement, (2.3) + (2.4) donne :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = \nabla \cdot (\rho_l g_l \mu_l \nabla \langle \vec{v}_l \rangle^l) - \nabla p + \rho_m^b \vec{g} \quad (2.5)$$

avec  $\rho_m^b = \rho_s g_s + \rho_l (1 - g_s)$ .

La masse volumique de la phase solide est supposée constante. De plus, l'hypothèse de Boussinesq est considérée ; la masse volumique de la phase liquide est considérée constante sauf pour le terme de flottabilité où elle est calculée suivant :

$$\rho_l^b = \rho_0 (1 - \beta_T (T - T_{ref}) - \beta_C (C - C_{ref})) \quad (2.6)$$

avec  $\beta_T$  le coefficient d'expansion thermique et  $\beta_C$  le coefficient d'expansion solutale.

Les simplifications réalisées permettent d'obtenir la vitesse de la phase solide de manière semi-explicite :

$$\vec{v}_s = \vec{v}_l + \frac{4 d_g^2 (1 - g_s)}{3 C_D \mu_l \text{Re}_p} (-\nabla p + \rho_g^b \vec{g}) \quad (2.7)$$

avec  $\text{Re}_p$  le nombre de Reynolds particulaire :

$$\text{Re}_p = \frac{\rho_l d_g (1 - g_s) |\vec{v}_s - \vec{v}_l|}{\mu_l} \quad (2.8)$$

où  $d_g$  est le diamètre hydraulique du grain, pris comme le diamètre sphérique équivalent du grain.

Le coefficient de traînée est calculé suivant [Ni & Beckermann 1993], qui ont utilisé la relation de Agarwal et O'Neill [1988] :

$$C_d = \frac{48 C_{ke} (1 - g_l)}{\text{Re}_p} + C_{ie} \quad (2.9)s$$

si  $g_s < 0.5$

$$C_{ke} = \frac{25}{6} \text{ et } c_{ie} = \frac{7}{3} \quad (2.10)$$

si  $g_s > 0.5$

$$c_{ke} = \frac{1}{2} \frac{(1 - g_s)^3}{g_s} \frac{1 + 4.7 g_s}{1 + 83 g_s} \text{ et } c_{ie} = \frac{24 (10^E - 1)}{\text{Re}_p [1 - 0.9 (0.75 - g_s)^{1-3} g_s]^3} \quad (2.11)$$

$$\text{avec } E = 0.216 \text{Re}_p^{0.369} - 0.105 \text{Re}_p^{0.431} - \frac{0.124}{1 + (\log_{10} \text{Re}_p)^2}.$$

Lorsque la phase solide s'est consolidée, sa vitesse est égale à la vitesse du système, soit la vitesse de coulée dans un contexte de coulée continue. Le bilan de quantité de mouvement de la phase liquide devient alors :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \vec{v}_l \rangle^l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = \\ & \nabla \cdot (\rho_l g_l \mu_l \nabla \langle \vec{v}_l \rangle^l) - \frac{g_l^2 \mu}{K} (\langle \vec{v}_l \rangle^l - \vec{v}_p) - g_l \nabla \langle p \rangle + \rho_l g_l \vec{g} - g_l \Gamma_s \langle \vec{v}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (2.12)$$

Avec  $K$  la perméabilité du milieu poreux (voir chapitre 1 page 44) :

$$K = \frac{DAS^2}{20\pi^2} \frac{g_l^3}{(1 - g_l)^2} \quad (2.13)$$

## 1.2. Modification du modèle

Afin de proposer un modèle plus complet, on commence avec les équations de conservations microscopiques. Pour une phase solide ou liquide, celles-ci s'écrivent :

Conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (2.14)$$

Conservation de la quantité locale de mouvement :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \vec{v}) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot \bar{\bar{T}} + \vec{b} \quad (2.15)$$

Puis les équations sont moyennées suivant le principe des prises de moyennes volumiques [Ni & Beckermann 1991]. Les détails de la moyenne des équations sont présentés en annexe A. Le résultat de la moyenne volumique des équations de conservation donne pour chaque phase (liquide et solide) une équation de conservation de la masse et une équation de conservation de la quantité de mouvement.

Conservation de la masse :

pour la phase liquide :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g_l \rho_l) + \nabla \cdot (g_l \rho_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = -\Gamma_s \quad (2.16)$$

pour la phase solide :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g_s \rho_s) + \nabla \cdot (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s) = \Gamma_s \quad (2.17)$$

Conservation de la quantité de mouvement :

pour la phase liquide :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (g_l \rho_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (g_l \rho_l \langle \vec{v}_l \rangle^l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = \\ & -\nabla (g_l \langle p_l \rangle^l) + \nabla \cdot (g_l \mu_l \nabla \langle \vec{v}_l \rangle^l) + M_l^d + M_l^r + g_l \langle \vec{b}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (2.18)$$

pour la phase solide :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial}{\partial t} (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s) + \nabla \cdot (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s \langle \vec{v}_s \rangle^s) = \\ & -\nabla (g_s \langle p_s \rangle^s) + \nabla \cdot (g_s \mu_s \nabla \langle \vec{v}_s \rangle^s) + \vec{M}_s^d + M_l^\Gamma + g_s \langle \vec{b}_s \rangle^s \end{aligned} \quad (2.19)$$

avec  $M_k^d$  l'échange de quantité de mouvement à l'interface par dissipation des contraintes, modélisé comme un terme de traînée entre les grains et le liquide :

$$\begin{aligned} \vec{M}_k^d &= -R (\vec{v}_k - \vec{v}_m) \quad \text{et} \quad \vec{M}_l^d = \vec{M}_s^d \\ \text{avec} \quad R &= \frac{3}{4} \frac{g_s \rho_l}{d_s} |\vec{v}_l - \vec{v}_s| C_d \end{aligned} \quad (2.20)$$

$C_d$  est le coefficient de traînée toujours calculé selon Ni et Beckermann [1993].

$M_k^\Gamma$  représente l'échange de quantité de mouvement à l'interface consécutif au changement de phase :

$$M_k^\Gamma = \Gamma_k \vec{v}_k \quad \text{et} \quad M_s^\Gamma = -M_l^\Gamma \quad (2.21)$$

Pour décrire le mouvement de la phase liquide et de la phase solide, on prend l'hypothèse selon laquelle la pression de la phase solide est égale à la pression de la phase liquide,  $P_l = P_s$ .

Afin de prendre en compte les contacts entre les grains, la phase solide est modélisée comme un pseudo-fluide. Cette modélisation fait intervenir une viscosité de la phase solide qui est calculée suivant [Ishii 1977] et al, équation 2.23. Ce type de modélisation a déjà été utilisé dans le domaine de la solidification ([Ni & Beckermann 1993], [Ludwig & Wu 2002] [Vreeman et al. 2000]).

À partir de la loi de viscosité de mélange :

$$\mu_m = \mu_l \left( 1 - \frac{g_s}{g_s^{b,max}} \right)^{-2.5 g_s^{b,max}} \quad (2.22)$$

On extrait la loi de viscosité de la phase solide :

$$\begin{aligned} \mu_m &= g_l \mu_l + g_s \mu_s \\ \rightarrow \mu_s &= \frac{\mu_l}{g_s} \left[ \left( 1 - \frac{g_s}{g_s^{b,max}} \right)^{-2.5 g_s^{b,max}} - (1 - g_s) \right] \end{aligned} \quad (2.23)$$

avec  $g_s^{b,max}$  la fraction maximale d'empilement. Cette valeur est prise égale à la fraction d'empilement aléatoire de sphères monodisperses, c'est-à-dire,  $g_s^{b,max} = 0.6$ .

La figure 2.1 montre l'évolution du rapport  $\mu_s/\mu_l$  obtenu avec le modèle de Ishii et pour d'autres modèles de viscosité disponibles dans la littérature. Pour l'ensemble des modèles, sauf pour le modèle de Einstein qui n'est valable que pour les solutions très diluées, le rapport augmente avec la fraction solide. Pour la majorité des modèles, cette augmentation est exponentielle lorsque l'on se rapproche de la fraction de blocage maximale. Seul le modèle de Vand [1948] montre un comportement différent. Une énumération exhaustive des modèles disponibles dans la littérature a été réalisée par Ionescu et Necula [2009].

Pour le modèle de Ishii, le rapport reste inférieur à 10 jusqu'à une fraction solide de 0,37. À une fraction solide de 0,5, le rapport est d'environ 30. Pour le cas de l'aluminium, qui possède une viscosité à l'état liquide d'environ  $1,2 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ , la viscosité de la phase solide serait de  $36 \text{ mPa}\cdot\text{s}^{-1}$ . Cette valeur de viscosité correspondrait à celle d'une huile végétale à température ambiante. La forte viscosité de la phase solide va alors introduire une forte résistance au mouvement et donc ralentir l'écoulement.

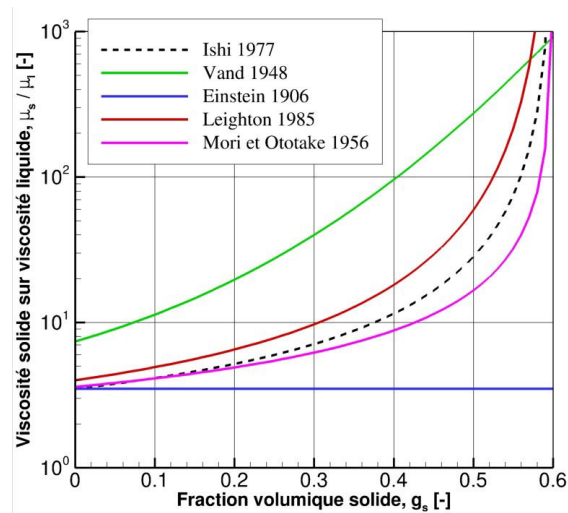


Figure 2.1 : Rapport entre la viscosité solide et la viscosité liquide.

### 1.2.1 Intégration du modèle de croissance de grains à trois phases dans la mécanique des fluides

La croissance des grains dans le logiciel SOLID prend en compte trois phases, le liquide interdendritique, le liquide extradendritique et le solide [Bedel 2014]. Il y a donc maintenant une distinction entre le liquide interdendritique et le liquide extradendritique, figure 2.2. L'ajout d'une troisième phase permet, in fine, de prédire une morphologie des grains.

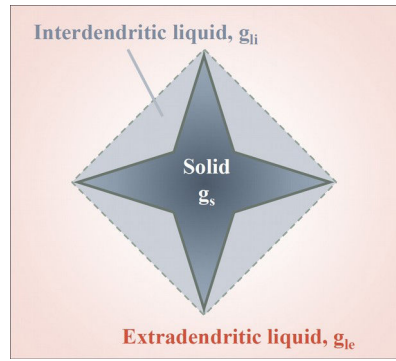


Figure 2.2 : Modèle schématique d'un grain avec son enveloppe qui se compose du solide et du liquide interdendritique. Le liquide extradendritique est situé en dehors de l'enveloppe du grain.

La prise en compte de la séparation entre les deux liquides ajoute la notion d'enveloppe des grains  $g_{env}$ . Cette enveloppe est composée de la phase solide et du liquide interdendritique. Les relations fondamentales résultant de cette modification sont :

$$\begin{aligned} g_{env} &= g_s + g_{li} \\ g_l &= g_{li} + g_{le} \\ g_s + g_{li} + g_{le} &= 1 \end{aligned} \quad (2.24)$$

La fraction interne,  $g_i$ , équation (2.25), représente le rapport entre la fraction solide et la fraction d'enveloppe. C'est ce rapport qui caractérise la morphologie des grains. Plus ce rapport est faible, plus les grains sont dendritiques à l'inverse les grains deviennent globulaires lorsque ce rapport tend vers l'unité.

$$g_i = \frac{g_s}{g_{env}} = \frac{g_s}{g_s + g_{li}} \quad (2.25)$$

L'ajout d'une troisième phase pour la croissance des grains ne modifie que très peu la mécanique des fluides si l'on pose des hypothèses sur le mouvement des deux phases liquides. Si l'on suppose que le liquide interdendritique se déplace avec le liquide extradendritique, les équations moyennées de transport de la quantité de mouvement pour les phases liquide et solide restent inchangées. Donc, la configuration en terme de dynamique des fluides ne change pas, avec le mouvement de la fraction solide et le mouvement de la fraction liquide composée du liquide interdendritique et extradendritique. Néanmoins, la morphologie des grains a un impact sur leur mouvement. Cet impact est pris en compte en modifiant le calcul de la traînée. Le calcul du coefficient de traînée est maintenant considéré en prenant en compte l'enveloppe du grain,  $g_{env}$ . Le coefficient de traînée est toujours calculé suivant Ni et Beckermann [1993] mais c'est l'enveloppe du grain qui est maintenant considérée.

Les relations sont modifiées comme suit :

$$C_d = \frac{48 C_{ke}(g_{env})}{Re} + C_{ie} \quad (2.26)$$

Si  $g_{env} < 0.5$

$$C_{ke} = \frac{25}{6} \text{ et } c_{ie} = \frac{7}{3} \quad (2.27)$$

Si  $g_{env} > 0.5$

$$c_{ke} = \frac{1}{2} \frac{(1-g_{env})^3}{g_{env}} \frac{1+4.7 g_{env}}{1+83 g_{env}} \text{ et } c_{ie} = \frac{24(10^E-1)}{Re(1-0.9(0.75-g_{env})^{1-3} g_{env})^3} \quad (2.28)$$

Cette modification permet de prendre en compte naturellement l'effet de la morphologie du grain sur son déplacement. En effet, pour une même fraction solide,  $g_s$ , un grain dendritique expérimentera plus d'effet de traînée à cause de à son enveloppe plus importante. Il sera donc ralenti par rapport à un grain globulaire.

La loi de viscosité solide est également modifiée suivant le même principe, on prend maintenant en compte la fraction d'enveloppe à la place de la fraction solide :

$$\mu_{env} = \frac{\mu_l}{g_e} \left[ \left( 1 - \frac{g_e}{g_e^{b,max}} \right)^{-2.5 g_s^{b,max}} - (1 - g_e) \right] \quad (2.29)$$

avec  $g_e^{b,max}$  la fraction maximale d'empilement toujours égale à 0,60.

Le terme de gravité n'est pas modifié par l'ajout de la nouvelle phase. On considère qu'il n'y a que la fraction solide de l'enveloppe qui joue un rôle pour la flottabilité du grain. Les équations de conservation de la quantité de mouvement sont très peu modifiées, avec seulement le terme de viscosité solide ( $\mu_{env}$ ) et le terme de traînée ( $M_{env}^d$ ) qui sont modifiés, elles se réécrivent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (g_l \rho_l \langle \vec{v}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (g_l \rho_l \langle \vec{v}_l \rangle^l \langle \vec{v}_l \rangle^l) = \\ -\nabla (g_l \langle p_l \rangle^l) + \nabla \cdot (g_l \mu_l \nabla \langle \vec{v}_l \rangle^l) + M_l^d + M_l^\Gamma + g_l \langle \vec{b}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (2.30)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s) + \nabla \cdot (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s \langle \vec{v}_s \rangle^s) = \\ -\nabla (g_s \langle p_s \rangle^s) + \nabla \cdot (g_s \mu_{env} \nabla \langle \vec{v}_s \rangle^s) + M_{env}^d + M_l^\Gamma + g_s \langle \vec{b}_s \rangle^s \end{aligned} \quad (2.31)$$



### 1.3. Résolution des équations de transport de quantité de mouvement pour les phases liquide et solide

Afin de résoudre le système d'équations aux dérivées partielles (EDP), (2.16) (2.17) (2.18) (2.19), qui régit la mécanique des fluides, nous devons utiliser un algorithme de résolution propre aux problèmes multiphasiques. Plusieurs de ces algorithmes existent dans la littérature. Une description détaillée de ces algorithmes peut être trouvée dans l'ouvrage de Yeoh et Tu [2009].

L'algorithme IPSA, qui est une extension de l'algorithme SIMPLE, se base sur la technique de « correction de la pression ». Il a été utilisé pour résoudre ce système d'équations. Cet algorithme repose sur l'hypothèse d'un champ de pression égale entre les phases solide et liquide. Toutefois, les équations de conservation de la quantité de mouvement des phases liquide et solide, équations (2.18) et (2.19), sont couplées à travers l'échange de quantité de mouvement induit par la traînée. Ce couplage doit être pris en compte lors de la résolution des équations. Une prise en compte explicite du couplage peut mener à des problèmes de convergence de la solution [Karema & Lo 1999]. C'est pourquoi le couplage pour le terme de traînée est traité de manière semi-implicite.

Le système, une fois discrétisé suivant la méthode des volumes finis, s'exprime sous la forme :

Conservation de la quantité de mouvement pour la phase solide :

$$a_p^s u_p^s = \sum_{nb} a_{nb}^s u_{nb}^s + R_{sl} (u_p^l)^{n-1} + g_p^s \Delta V_p \left. \frac{\partial P}{\partial X} \right|_p + g_p^s \rho_p^s g + a_{p0} u_p^{s(t-1)} \quad (2.32)$$

$$a_p^s = \sum_{nb} a_{nb}^s + \sum_{nb} g_{np} F_{nb} + a_{p0} - R_{sl} - M_{sl} \quad (2.33)$$

Conservation de la quantité de mouvement pour la phase liquide :

$$a_p^l u_p^l = \sum_{nb} a_{nb}^l u_{nb}^l + R_{ls} (u_p^s)^{(n-1)} + g_p^l \Delta V_p \left. \frac{\partial P}{\partial X} \right|_p + g_p^l \rho_p^l g + a_{p0} u_p^{l(t-1)} \quad (2.34)$$

$$a_p^l = \sum_{nb} a_{nb}^l + \sum_{nb} g_{np} F_{nb} + a_{p0} - R_{ls} - M_{ls} \quad (2.35)$$

avec  $R_{km}$  le terme d'échange de quantité de mouvement induit par la traînée et  $M_{km}$  celui induit par le changement de phase.

Conservation de la masse pour une phase :

$$g_e^k \rho_e^k u_e^k \Delta A_e - g_w^k \rho_w^k u_w^k \Delta A_w = \Gamma_k - \frac{((g_p^k \rho_p^k) - (g_p^k \rho_p^k)^{t-1}) \Delta V_p}{\Delta t} \quad (2.36)$$

avec  $\Gamma_k$  le taux de changement de phase ( $\Gamma_s = -\Gamma_l$ )

Nous allons maintenant décrire succinctement les étapes de l'algorithme IPSA. Premièrement, on exprime les vitesses indépendamment de la phase considérée :

$$u_p^k = \sum_{nb} \frac{a_{nb}^k u_{nb}^k}{a_p^k} + g_p^k \frac{\Delta V_p}{a_p^k} \frac{\partial P}{\partial x} \Big|_p + B_p^k \quad (2.37)$$

avec  $B_p^k = \frac{1}{a_p^k} (R_{km} (u_p^m)^{n-1} + g_p^k \Delta V_p + g_p^k \rho_p^k g + a_{p0} u_p^{k(t-1)})$ .

On pose les relations de corrections de la pression et des vitesses :

$$\begin{aligned} u &= u^* + u' \quad , \quad u' = u - u^* \\ P &= P^* + P' \quad , \quad P' = P - P^* \end{aligned} \quad (2.38)$$

avec l'indice \* qui correspond à la prédiction et l'indice ' qui correspond à la correction.

Nous avons donc la formulation du calcul de la prédiction des vitesses :

$$u_p^{k*} = \sum_{nb} \frac{a_{nb}^k u_{nb}^{k*}}{a_p^k} + g_p^k \frac{\Delta V_p}{a_p^k} \frac{\partial P^*}{\partial x} \Big|_p + B_p^k \quad (2.39)$$

et selon (2.37), (2.38) et (2.39) , celle de la correction de la vitesse qui s'exprime :

$$u_p^{k'} = \sum_{nb} \frac{a_{nb}^k u_{nb}^{k'}}{a_p^k} + g_p^k \frac{\Delta V_p}{a_p^k} \frac{\partial P'}{\partial x} \Big|_p \quad (2.40)$$

En utilisant la méthode SIMPLEC on définit le terme de correction de vitesse comme :

$$u_p^{k'} = \frac{g_p^k \Delta V_p \frac{\partial P'}{\partial x} \Big|_p}{a_p^k - \sum_{nb} a_{nb}^k u_{nb}^{k'}} = -d_p^{k,u} \frac{\partial P'}{\partial x} \Big|_p \quad (2.41)$$

Avec la relation (2.38), l'équation de conservation de la masse se réécrit :

$$g_e^k \rho_e^k (u_e^{k*} + u_e^{k'}) \Delta A_e - g_w^k \rho_w^k (u_w^{k*} + u_w^{k'}) \Delta A_w = \Gamma_k - \frac{((g_p^k \rho_p^k) - (g_p^k \rho_p^k)^{t-1}) \Delta V_p}{\Delta t} \quad (2.42)$$

En sommant cette relation sur les deux phases présentes et en utilisant l'équation (2.41), on obtient :

$$\begin{aligned}
 & \sum_{k=1}^2 g_e^k \rho_e^k u_e^{k*} \Delta A_e - \sum_{k=1}^2 g_e^k \rho_e^k d_e^{k,u} \left. \frac{\partial P'}{\partial x} \right|_e \Delta A_e \\
 & - \sum_{k=1}^2 g_w^k \rho_w^k u_w^{k*} \Delta A_w + \sum_{k=1}^2 g_w^k \rho_w^k d_w^{k,u} \left. \frac{\partial P'}{\partial x} \right|_w \Delta A_w \\
 & = - \sum_{k=1}^2 \frac{((g_p^k \rho_p^k) - (g_p^k \rho_p^k)^{t-1}) \Delta V_P}{\Delta t}
 \end{aligned} \tag{2.43}$$

En regroupant les termes connus ou prédits, l'équation précédente devient :

$$- \sum_{k=1}^2 g_e^k \rho_e^k d_e^{k,u} \left. \frac{\partial P'}{\partial x} \right|_e \Delta A_e + \sum_{k=1}^2 g_w^k \rho_w^k d_w^{k,u} \left. \frac{\partial P'}{\partial x} \right|_w \Delta A_w + \sum_{k=1}^2 R_P^k = 0 \tag{2.44}$$

avec :

$$\sum_{k=1}^2 R_P^k = g_e^k \rho_e^k u_e^{k*} \Delta A_e + g_w^k \rho_w^k u_w^{k*} \Delta A_w + \frac{((g_p^k \rho_p^k) - (g_p^k \rho_p^k)^{t-1}) \Delta V_P}{\Delta t} \tag{2.45}$$

On exprime les gradients de pression selon un schéma centré :

$$\left. \frac{\partial P'}{\partial x} \right|_i = \frac{P'_I - P'_P}{\Delta x_{I,P}} \tag{2.46}$$

On peut alors définir l'équation de résolution de la correction de pression :

$$a_P^k P'_P = \sum_{NB} a_{nb} P'_{NB} - \sum_{k=1}^2 R_P^k \tag{2.47}$$

avec

$$a_{nb} = \sum_{k=1}^2 g_{nb}^k \rho_{nb}^k d_{nb}^{k,u} \frac{\Delta A_{nb}}{\Delta x_{NB,P}} \tag{2.48}$$

La figure 2.3 présente l'algorithme de résolution du schéma IPSA. Premièrement, on calcule la prédiction des vitesses  $u^*$  (équation (2.39)) à partir de la prédiction du champ de pression  $P^*$ . Puis on calcule la correction de pression  $P'$  (équation (2.47)) à partir des vitesses prédites. Ensuite on calcule la correction des vitesses  $u'$  avec la relation (2.41). Enfin, on corrige les vitesses et le champ de pression.

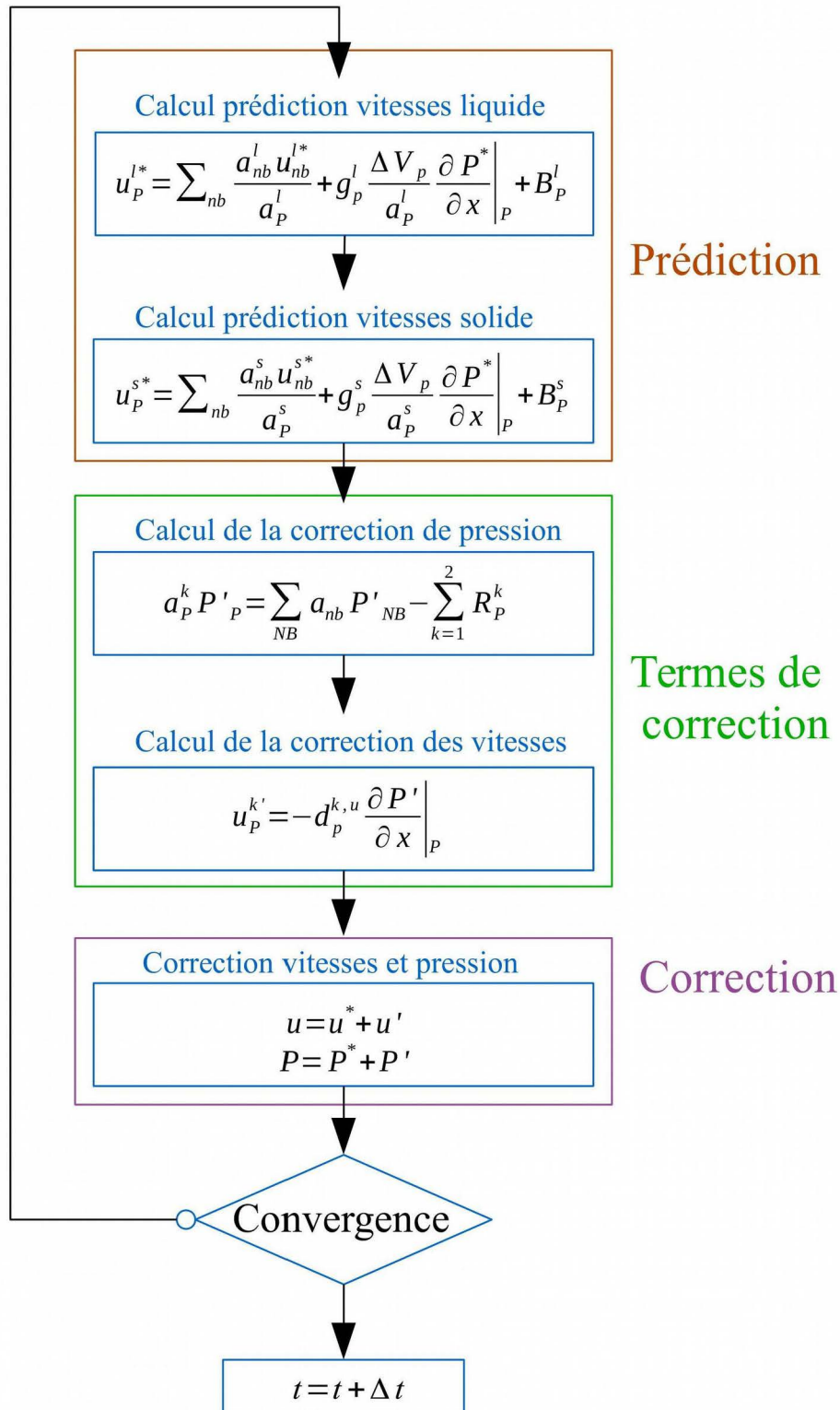


Figure 2.3 : Algorithme de résolution du schéma IPISA.

## 1.4. Application en mécanique des fluides

Afin de valider l'implémentation en mécanique des fluides, nous avons réalisé une comparaison avec des résultats expérimentaux disponibles dans le contexte de la sédimentation d'un écoulement dense de particules [Pham Van Bang et al. 2006]. Ces résultats seront comparés aux résultats expérimentaux et aux résultats numériques présentés par Chauchat [2007] dans son travail de thèse.

L'expérience consiste à mesurer le déplacement des interfaces lors de la sédimentation d'une suspension très dense de billes dans une solution aqueuse. Deux interfaces sont mesurées : l'élévation du front de blocage des billes et l'abaissement du front clair. L'expérience fait 10 cm de hauteur mais la suspension ne monte qu'à environ 5,5 cm à partir du fond et la partie supérieure contient uniquement du liquide. L'ensemble du domaine est considéré pour la simulation. Le tableau 2.1 énumère les différents paramètres physiques de l'expérience. Des conditions de paroi comme conditions limites sont appliquées sur toutes les surfaces et pour les deux phases,  $\vec{v}_s = \vec{v}_l = 0$ . Une condition limite de glissement sur les parois verticales pour la vitesse de la phase solide a aussi été testée et aucune différence notable dans l'écoulement n'a pu être observée.

Tableau 2.1 : Paramètres physiques et initiaux de l'expérience de Pham Van Bang et al. [2006].

hauteur de l'expérience	10 [cm]	Largeur du récipient	22 x 22 [cm]
hauteur de la suspension	~ 5,5 [cm]	masse vol. liquide, $\rho_s$	950 [kg.m-3]
diamètre des grains	145 [ $\mu$ m]	masse vol. solide, $\rho_l$	1050 [kg.m-3]
fraction solide initiale	0,48 [-]	viscosité du liquide, $\mu_l$	0,2 [Pa.s]
fraction de blocages	0,6 [-]		

La figure 2.4 montre l'évolution de la fraction solide au temps 500 s, 1000 s et une fois que les billes ont fini de sédimenter, avec les interfaces repérées en mauve. Le front de blocage monte relativement rapidement à cause de la forte fraction volumique de sphères déjà présentes à l'état initial. Quant au front clair, il n'a qu'une faible amplitude d'évolution. Dans un premier temps, l'écoulement des billes est quasiment rectiligne, figure 2.4.a, puis l'écoulement devient plus complexe avec de multiples boucles de recirculation lorsque l'espace entre les interfaces se réduit, figure 2.4.b.

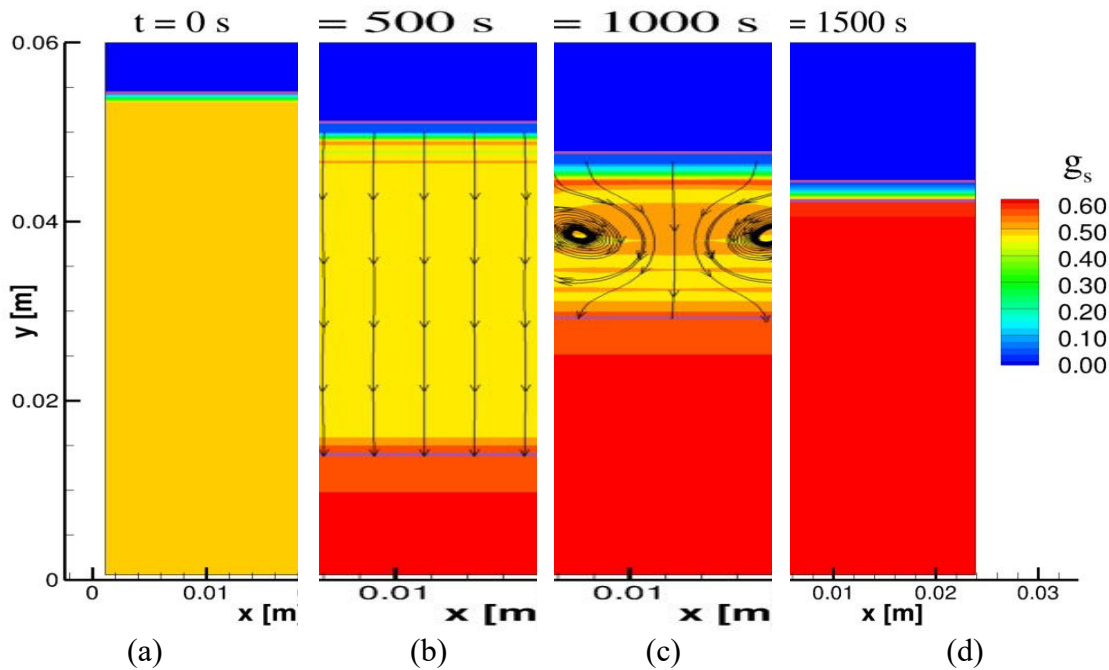


Figure 2.4 : Évolution de la fraction solide en fonction du temps : à l'état initial (a), après 500 s (b), après 1000 s (c) et après le blocage de toutes les billes (d). Les lignes de courants représentent l'écoulement des billes.

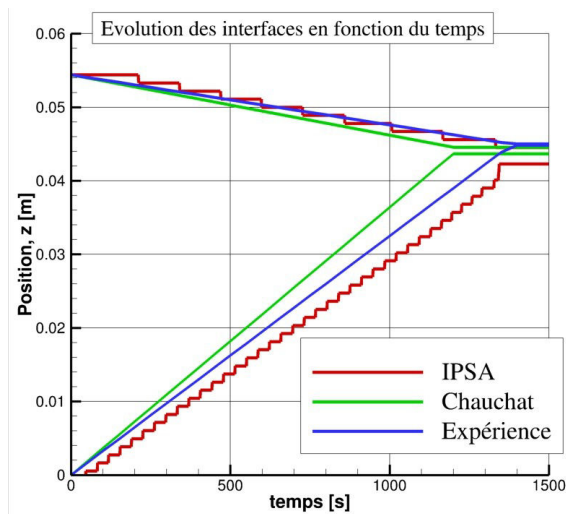


Figure 2.5 : Comparaison de l'évolution de la position des interfaces en fonction du temps entre les résultats du modèle, les résultats expérimentaux de Pham Van Bang et al. [2006] et ceux numériques de Chauchat [2007].

La figure 2.5 présente une comparaison de l'évolution en fonction du temps entre les résultats du modèle, les résultats expérimentaux de Pham Van Bang et al. [2006] et les résultats numériques de Chauchat [2007]. On obtient une très bonne prédiction de l'évolution des interfaces comparée à l'expérience et la vitesse de sédimentation des billes

n'est que très faiblement surestimée. La différence de prédiction avec le modèle de Chauchat est liée au choix du modèle pour calculer le coefficient de traînée.

Ce résultat nous permet de valider le modèle de mécanique des fluides implémenté dans le logiciel Solid et les modifications apportées.

## 2. Modèle de prédiction de la porosité en DCC

La présentation du modèle de porosité est scindée en deux, avec une première partie centrée sur la description des phénomènes physiques pris en compte et sur les hypothèses retenues, suivie d'une deuxième partie avec une application à un cas 0D afin d'explicitier le fonctionnement du modèle.

### 2.1. Création du modèle de prédiction de la porosité

#### 2.1.1 *Évolution de la concentration en hydrogène dissout*

Nous avons vu que la très faible solubilité de l'hydrogène dans le solide était responsable de l'augmentation de la concentration en hydrogène dans la phase liquide. Le coefficient de partage  $k_H$  est le rapport entre la concentration à l'équilibre en hydrogène dissout dans la phase solide et dans la phase liquide. Le coefficient de partage s'obtient :

$$k_H = \frac{C_H^s}{C_H^l} \quad (2.49)$$

Le modèle développé considère ce coefficient comme constant tout au long de la solidification. Différentes valeurs de ce coefficient pour différents alliages peuvent être trouvées dans le tableau 1.3 page 13.

#### 2.1.2 *Évolution de la solubilité et de la composition d'équilibre*

La solubilité et la composition d'équilibre réfèrent physiquement à la même grandeur. Cependant, nous préférons utiliser le terme « solubilité » lorsque l'on se réfère à la composition d'équilibre par rapport à l'environnement extérieur et « composition d'équilibre » lorsque l'on se réfère à l'équilibre par rapport aux pores ou aux germes.

La composition d'équilibre en hydrogène dissout est calculée suivant la loi de Sievert, voir partie chapitre 1 page 10 :

$$X_H^l = S_v(T) \sqrt{\frac{P_g}{P_0}} \quad (2.50)$$



avec  $X_{\underline{H}}^l$  la composition d'équilibre,  $S_v$  la constante de Sievert,  $P_g$  la pression du milieu gazeux et  $P_0$  la pression de référence (1 atm).

La loi de Sievert fait intervenir une constante, appelée constante de Sievert. Dans le cas de l'aluminium, cette constante peut être calculée suivant Carpentier [1994] :

$$S_v(T) = \frac{1}{K_{\underline{H}} f_{\underline{H}}^l} \quad (2.51)$$

avec  $K_{\underline{H}}$  la constante de dissociation et  $f_{\underline{H}}^l$  le coefficient d'activité de l'hydrogène.

La constante de dissociation,  $K_{\underline{H}}$ , calculée d'après Ransley et Neufeld [1948] :

$$\ln K_{\underline{H}} = \frac{5872}{T} + 3.284 \quad (\text{T en K}) \quad (2.52)$$

Le coefficient d'activité de l'hydrogène,  $f_{\underline{H}}^l$ , représente l'influence des éléments de l'alliage sur la composition d'équilibre. Dans le cas de l'aluminium pur, ce coefficient vaut 1. Lorsque des éléments sont ajoutés, ce coefficient d'activité est calculé avec le modèle WIPF proposé par Sigworth et Engh [1982] (voir chapitre 1 p. 15) :

$$\log_{10} f_{\underline{H}}^l = \sum_{i=1}^{N_{\text{elt}}} e_H^i C_i^l + r_H^i (C_i^l)^2 \quad (2.53)$$

avec  $e_H$  et  $r_H$  les coefficients du premier et second ordre d'interaction. Les valeurs de ces coefficients pour différents éléments d'addition sont listées dans le tableau 1.5 page 17.

La pression à l'intérieur du pore est calculée suivant la loi de Laplace :

$$P_p = P_l + \frac{2\gamma_{lg}}{r_{\text{courb}}} \quad (2.54)$$

avec  $\gamma_{lg}$  J/m<sup>2</sup> la tension superficielle entre le liquide et le pore, et  $r_{\text{courb}}$  le rayon de courbure du pore.

En associant l'équation (2.52), (2.53) et (2.54) dans (2.50), on obtient pour la loi de Sievert :

$$X_{\underline{H}}^l = \frac{1}{e^{K_{\underline{H}}} 10^{f_{\underline{H}}^l}} \sqrt{\frac{P_l + 2\gamma_{lg}/r_{\text{courb}}}{P_0}} \quad (2.55)$$

### 2.1.3 Germination de la porosité

Dans le modèle développé la germination est hétérogène. Elle s'effectue sur un certain nombre de germes présents dans l'aluminium liquide. Ces germes sont supposés être différents oxydes ou peaux d'oxydes qui se sont formés au préalable avant l'étape de coulée.

On caractérise ces germes par un rayon critique de germination ( $r_{crit}$ ) et par une densité volumique ( $N_{gmr}$ ).

Pour savoir si le critère de germination est respecté, on calcule la composition d'équilibre en hydrogène dissout par rapport aux germes,  $X_{eq}^{gmr}$  :

$$X_{eq}^{gmr} = S_v \sqrt{\frac{P_l + 2 \gamma_{lg} / r_{crit}}{P_0}} \quad (2.56)$$

Puis, cette composition d'équilibre est comparée à la composition effective dans le liquide. Si la composition dans le liquide est supérieure, la sursaturation en hydrogène dissout est suffisante et le critère de germination est satisfait :

$$C_H^l > X_{eq}^{gmr} \quad (2.57)$$

Le rayon critique modifie directement le critère de germination. C'est donc un paramètre important pour le déclenchement de la germination. Plus ce rayon est important, plus la sursaturation nécessaire à la germination est faible, voir figure 1.11 page 24. Un rayon important peut signifier une oxydation importante du bain, avec beaucoup d'oxydes très efficaces pour la germination de la porosité.

La microstructure peut limiter la germination. Lorsque la microstructure est très fine, la germination est plus difficile par le faible rayon de courbure disponible.

Cet effet est pris en compte en modifiant le rayon critique de germination lorsque l'espacement disponible entre les grains est inférieur au rayon critique. Ce critère peut se mettre sous la forme :

$$r_{crit} = \min(r_{crit}, r_{Couturier}^{3D}) \quad (2.58)$$

avec  $r_{crit}$  le rayon critique initial et  $r_{Couturier}^{3D}$  l'espacement entre les grains donné par le modèle de Couturier pour des sphères (voir chapitre 1, page 27).

Il est important de noter que le rayon critique de germination représente également le rayon initial des pores après la germination.

#### 2.1.4 Mouvement des germes

Une particularité du modèle est la prise en considération du mouvement des germes qui servent à la germination. Dans une première approximation, ces germes se déplacent avec le liquide. Leur diamètre est considéré comme suffisamment faible et leur masse volumique suffisamment proche de celle du liquide pour que le nombre de Stokes soit très inférieur à l'unité,  $St \ll 1$ . Cependant la masse volumique des oxydes peut être beaucoup plus importante que celle de l'aluminium liquide. De plus ils peuvent avoir un diamètre important. Par exemple, on peut prendre le cas de l'oxyde d'alumine ( $Al_2O_3$ ) qui présente une masse volumique de  $3970 \text{ kg.m}^{-3}$  pour un diamètre moyen de  $20 \text{ }\mu\text{m}$  ou un aluminat de magnésium ( $MgAl_2O_4$ ) qui possède une masse volumique de  $3600 \text{ kg.m}^{-3}$  pour un diamètre moyen de  $50 \text{ }\mu\text{m}$ . Pour ces types d'oxydes, l'hypothèse d'un déplacement avec le liquide peut être remise en question. Nous verrons dans le chapitre 4 l'effet de la prise en compte du mouvement propre de ces particules sur la porosité.

Le mouvement et la consommation des germes suit l'équation de bilan :

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_{grm}) + \nabla \cdot (\vec{v}_l N_{grm}) = N^\Phi \quad (2.59)$$

avec  $N^\Phi$  le taux de germination des pores.

#### 2.1.5 Croissance des pores

En coulée continue, la vitesse de solidification n'est pas uniforme. Il peut donc être intéressant de prendre en compte la limitation de la croissance des pores par la diffusion de l'hydrogène. Pour ce faire nous allons utiliser le modèle développé par Carlson et al. [2007] dont nous allons maintenant proposer une rapide description.

Suivant le principe de moyenne volumique proposé par Ni et Beckermann [1991], une équation de conservation de la masse d'hydrogène en phase gazeuse pour les pores peut être écrite :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p C_{H_2}^p) + \nabla \cdot (g_p \vec{v}_p \rho_p C_{H_2}^p) = X_H^l \frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) + \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l}{l_p} (C_H^l - X_H^l) \quad (2.60)$$

avec  $C_{H_2}^p$  la concentration en dihydrogène dans le pore,  $S_p^{ech}$  l'air d'interface entre les pores et le liquide par unité de volume,  $D_H^l$  le coefficient de diffusion à travers le liquide,

et  $l_p$  la longueur de diffusion dans le liquide à l'interface pore-liquide. Il est supposé que la diffusion de l'hydrogène à travers la phase solide est négligeable. Les deux termes de droites de l'équation (2.60) correspondent respectivement au mouvement de l'interface pore-liquide et à la diffusion de l'hydrogène dissout à travers le liquide vers le pore. La résolution de l'équation (2.60) pour la croissance massique des pores par unité de volume donne :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) = \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l (C_H^l - X_H^l)}{l_p (C_{H_2}^p - X_H^l)} + \frac{g_p \rho_p}{C_{H_2}^p - X_H^l} \frac{\partial C_{H_2}^p}{\partial t} \quad (2.61)$$

L'hydrogène est considéré comme le seul gaz présent dans les pores, donc  $C_{H_2}^p = 1$  l'équation (2.61) se simplifie :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) = \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l (C_H^l - X_H^l)}{l_p (1 - X_H^l)} \quad (2.62)$$

L'aire d'interface entre les pores et le liquide est calculée suivant Carlson et al. [2007] :

$$S_p^{ech} = 4 \pi N_p (r_{equi}^{sph})^2 (1 - g_s)^m \quad (2.63)$$

avec  $r_{equi}^{sph}$  le rayon équivalent sphérique des pores. Dans cette relation  $(1 - g_s)^m$  représente la fraction de surface des pores recouverte par le solide et ne participe donc pas au transfert par diffusion.  $m$  est un paramètre qui représente l'intensité du recouvrement par le solide. Plus il est élevé, plus la surface d'échange est réduite, voir figure 1.18 page 31.

La longueur de diffusion est prise comme égale à un rayon équivalent sphérique :

$$l_p = r_{equi}^{sph} \quad (2.64)$$

Cette expression de la longueur de diffusion est basée sur le résultat analytique quasi stationnaire de l'épaisseur d'une couche limite autour d'une sphère [Carlson et al. 2007].

### 2.1.6 Interaction avec la microstructure

La phase de croissance d'une porosité une fois germée comprend deux étapes. Une première étape de croissance libre sans interaction avec les structures de solidification et une deuxième étape avec interaction. Lors de cette étape, à chaque instant de la croissance du pore, nous considérons que le rayon de courbure du pore s'adapte à l'évolution de la microstructure.

La figure 2.6 montre schématiquement l'évolution d'un pore et l'évolution de la microstructure. Lors de sa germination, le pore est considéré comme sphérique, figure 2.6.a. Si l'on considère les grains comme sphériques et arrangés spatialement suivant un réseau cubique simple, il est possible de calculer leur espacement avec le modèle de Couturier (chapitre 1 page 27). Comme la microstructure et le pore croissent en même temps, le pore va naturellement se retrouver en contact avec les grains, (b) figure 2.6. Le diamètre du pore à ce moment est appelé,  $r_p^{contact}$ . Après le contact, si le pore veut continuer de croître, il devra adapter son rayon de courbure à la microstructure. On considère alors que le rayon de courbure du pore est imposé par l'évolution de la microstructure. Ce rayon s'obtient en utilisant la même relation géométrique définie par Couturier, modifiée par les observations expérimentales de Meidani [2013] voir chapitre 1 page 29. La croissance des pores continue jusqu'à l'apparition de la phase eutectique, où la porosité se retrouve figée.

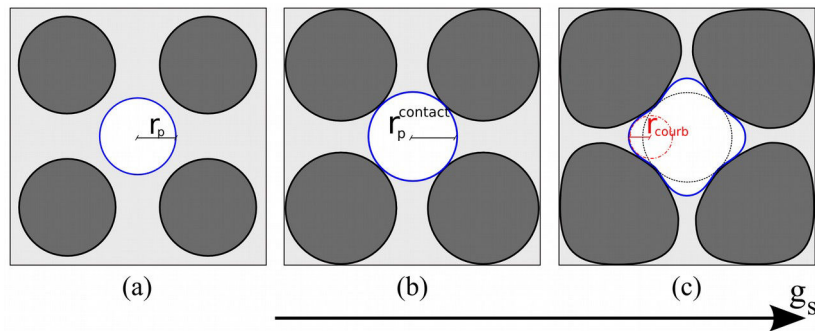


Figure 2.6 : Évolution du pore lors de sa croissance. Lorsque le pore rentre en contact avec la microstructure, son rayon de courbure est altéré. Étape (a) début de croissance sphérique des pores, étape (b) contact entre les pores et la microstructure, étape (c) croissance contrainte des pores.

La figure 2.7 montre le principe de fonctionnement du modèle de Couturier pour des sphères. Les quatre sphères grises représentent les grains dans un arrangement cubique simple. La sphère bleue au centre possède un diamètre qui correspond à l'espacement maximal disponible entre les sphères. Le modèle prend en compte l'interpénétration des sphères après une certaine fraction solide. Une description détaillée de ce modèle est disponible dans Meidani [2013]. Avec ce modèle, le rayon de courbure est alors une fonction de la fraction solide et de la taille des grains (ou de la densité de grains) : plus la taille des grains sera faible, plus le rayon de courbure imposé aux pores sera faible.

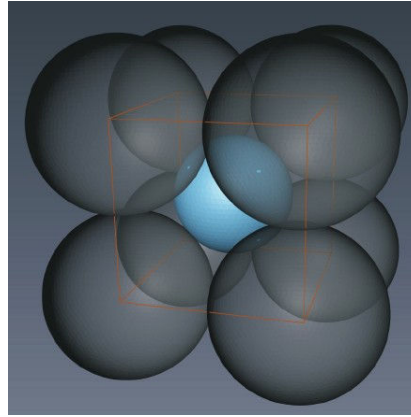


Figure 2.7 : Représentation d'une sphère dans l'espacement maximal permis par un arrangement cubique simple de quatre sphères, d'après Meidani [2013].

A la fin de la solidification, nous obtenons donc deux rayons. Le premier correspond au rayon équivalent sphérique final des pores  $r_{equi}^{sph} = \left( \frac{3g_p}{N_p 4\pi} \right)^{1/3}$ , et le deuxième correspond au rayon de contact défini précédemment  $r_p^{contact}$ . Le rapport de ces deux rayons exprime donc une morphologie des pores :

$$Mo = r_p^{contact} / r_{equi}^{sph} \quad (2.65)$$

Plus ce rapport est supérieur à l'unité, plus les pores adoptent une morphologie tortueuse. À l'inverse, plus le rapport est proche de l'unité, plus les pores sont sphériques. Cette indication morphologique liée au diamètre final des pores permet d'avoir des informations sur l'historique du pore. Une taille importante d'un pore avec une morphologie sphérique, indiquerait qu'il a germé tôt et que son diamètre est ensuite resté pratiquement constant.

### 2.1.7 Résumé des relations

Le tableau 2.2 résume les différentes relations utilisées dans le modèle de porosité. Le modèle a été implémenté de manière non-couplée à la solidification, l'apparition de la porosité ne modifie pas les écoulements. De plus, afin d'accélérer les calculs, la solidification est considérée comme ayant atteint un régime stationnaire. Seulement les champs liés à la porosité ( $g_p$ ,  $C_H^{l,s}$ ,  $N_p$ ,  $N_{gmr}$ ) sont calculés.

L'implémentation numérique du modèle de porosité dans le logiciel Solid est détaillée dans l'annexe B.

Tableau 2.2 : Liste des relations utilisées dans le modèle de porosité.

Calcul de la composition d'équilibre	$X_{eq}^{gmr} = S_v \sqrt{\frac{P_l + 2 \gamma_{lg} / r_{crit}}{P_0}}$
Calcul de la croissance des grains	$\frac{\partial}{\partial t} (g_p \rho_p) = \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l (C_H^l - X_H^l)}{l_{lp} (1 - X_H^l)}$
Surface d'échange	$S_p^{ech} \rho_l = 4 \pi N_p (r_{equi}^{sph})^2 (1 - g_s)^m$
Longueur de diffusion	$l_{lp} = r_{equi}^{sph}$
Rayon de courbure <u>avant contact</u>	$r_{courb} = r_{equi}^{sph}$
Rayon de courbure <u>après contact</u>	$r_{courb} = fct(g_s, r_s)$ (Modèle Meidani)

## 2.2. Application à un cas 0D

Afin d'illustrer le fonctionnement du modèle, nous allons l'appliquer à la solidification d'un alliage de cuivre Al-5wt.%Cu pour une géométrie 0D. Pour cette étude, nous considérerons un système fermé. La quantité totale d'hydrogène reste donc constante et on peut écrire le bilan :

$$\underbrace{\rho_l C_H^0}_{initiale} = \underbrace{g_l \rho_l C_H^l + g_s \rho_s C_H^s}_{dissoute} + \underbrace{g_p \rho_p}_{gazeuse} \quad (2.66)$$

Le chemin de solidification de l'alliage est donné par le modèle de Scheil-Gulliver où l'on considère un mélange parfait dans le liquide et une diffusion nulle du soluté dans le solide :

$$C_l = C_0 (1 - g_s)^{(k-1)} \quad (2.67)$$

et

$$g_s(T) = 1 - \left( \frac{T - T_f}{T_{liq} - T_f} \right)^{\frac{1}{k-1}} \quad (2.68)$$

Le tableau 2.3 liste les différents paramètres utilisés pour cette étude. Les masses volumiques de la phase liquide et solide sont prises égales et constantes. La pression est considérée constante et valant 1 atm. Le choix du taux de refroidissement a été fait pour être dans la gamme des refroidissements rencontrés en coulée semi-continue d'aluminium.

Tableau 2.3 : Paramètres thermodynamiques et paramètres du modèle de porosité.

Alliage Al-5wt.%Cu			Modèle porosité		
$k$	[-]	0,173	$C_H^0$	[wt.%]	$3.10^{-5}$
$m$	[°C.wt.% <sup>-1</sup> ]	3,39	$r_{crit}$	[μm]	10
$T_{eut}$	[°C]	548,2	$N_{gmr}$	[m <sup>-3</sup> ]	$10^{10}$
$T_f^{Al\ pure}$	[°C]	660	$m$	[-]	2
$C_{Cu}^0$	[wt.% <sup>-1</sup> ]	5	$\gamma_{g/l}$	[N.m <sup>-1</sup> ]	0,9
$N_s$	[m <sup>-3</sup> ]	$10^{11}$			
$\rho_l$	[kg.m <sup>-3</sup> ]	2388			
$dT/ds$	[°C.s <sup>-1</sup> ]	1			

La figure 2.8.a représente le diagramme binaire d'où les paramètres de solidification de l'alliage ont été extraits. La figure 2.8.b représente l'évolution de la fraction solide et de la composition liquide en cuivre en fonction de la température. Pour cette concentration nominale de cuivre, le modèle de Scheil-Gulliver prédit environ 10 % de phase eutectique.

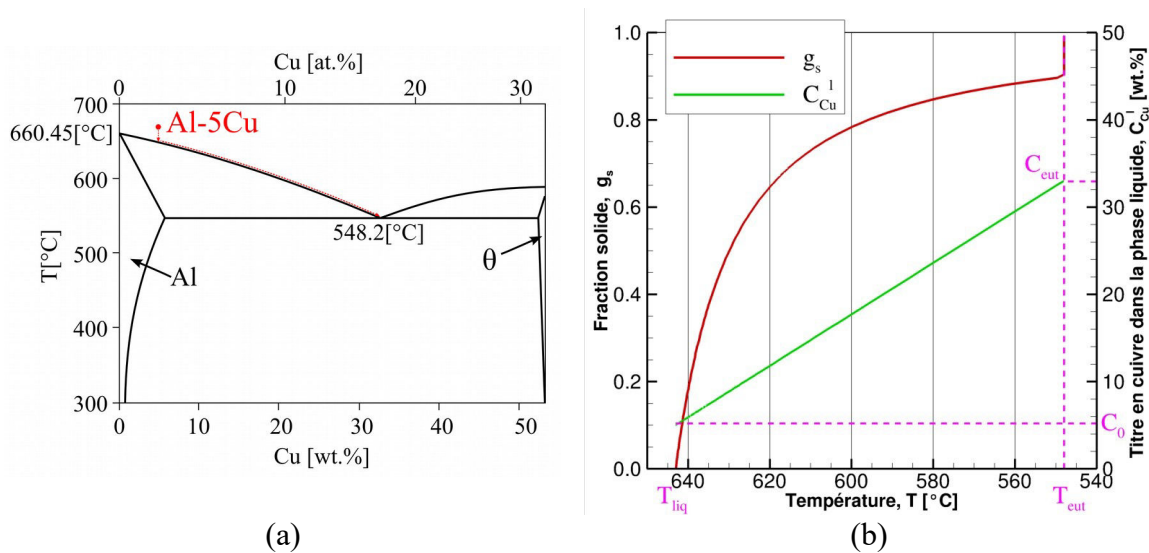


Figure 2.8 : (a) Diagramme binaire Al-Cu. (b) Chemin de solidification obtenu avec le modèle de Scheil-Gulliver pour un alliage Al-5wt.%Cu.

Les courbes de la figure 2.9 montrent l'évolution de la porosité obtenue avec le modèle. La figure 2.9.a décrit l'évolution des compositions et des concentrations en hydrogène dissout et la figure 2.9.b décrit l'évolution de la fraction de porosité et des



différents rayons en relation avec la porosité.

La solubilité, figure 2.9.a, diminue sous l'effet combiné de la baisse de température et de l'enrichissement en cuivre du liquide. En effet, le cuivre est un élément d'addition qui diminue la solubilité de l'hydrogène dans les alliages d'aluminium. La composition en hydrogène dissout dans le liquide augmente avec la ségrégation lors de la croissance de la phase solide. Lorsque la composition est supérieure à la solubilité (ici à  $T = 637 \text{ °C} \sim g_s = 0,31$ ), le liquide est saturé en hydrogène dissout. Cependant, la germination n'intervient que lorsque le critère, équation (2.57), est satisfait, c'est-à-dire, lorsque la composition du liquide est suffisante pour vaincre la barrière de germination liée aux effets de courbure (ici à  $T = 630 \text{ °C} \sim g_s = 0,50$ ). Cette barrière est calculée par rapport au rayon critique des germes.

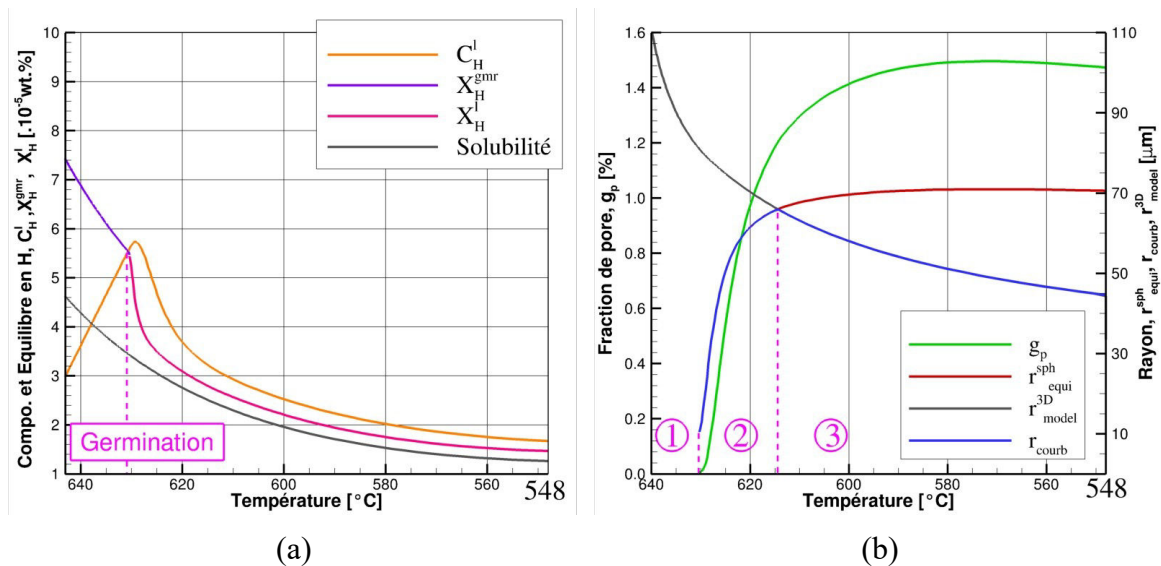


Figure 2.9 : (a) Évolution de la solubilité, de la concentration en hydrogène dissout  $C_H^l$ , de la composition d'équilibre de germination  $X_H^{gmr}$  et de la composition d'équilibre par rapport aux pores  $X_H^l$  en fonction de la température. (b) Évolution de la fraction volumique de porosité  $g_p$ , du rayon de courbure  $r_{courb}$ , du rayon équivalent sphérique du pore  $r_{equi}^{sph}$  et du rayon obtenu par le modèle de Couturier  $r_{model}^{3D}$  en fonction de la température.

La figure 2.9.b expose les différentes étapes de l'évolution de la porosité. La première phase, (1), correspond à l'étape de pré-germination, la porosité ne s'est pas développée car le critère de germination n'est pas rempli.

La deuxième phase, (2), correspond à la croissance sphérique des pores. À partir du rayon initial (ici  $10 \mu\text{m}$ ) les pores croissent. Le début de la croissance sphérique est très rapide, car le liquide est fortement saturé en hydrogène dissout, le terme  $(C_H^l - X_H^l)/(1 - X_H^l)$  de

l'équation 2.62, est important et provoque une rapide croissance.

Puis, dès que le pore rentre en contact avec la microstructure, ce qui est matérialisé par le croisement entre  $r_{equi}^{sph}$  et  $r_{model}^{3D}$ , la croissance est contrainte et débute la phase (3) (ici à  $T = 614$  °C et  $g_s = 0,68$ ). Dans notre cas, le rayon de contact des pores,  $r_p^{contact}$ , est d'environ 65  $\mu\text{m}$ . Dès lors, le rayon des pores est imposé par le modèle géométrique,  $r_{model}^{3D}$ , voir section 2.1.6 page 82.

Lorsque la croissance eutectique commence, phase (4) (qui n'est pas visible sur la figure 2.9.b car à température constante), la porosité est considérée comme n'évoluant plus.

Dans le cas étudié, on obtient une fraction finale de pore d'environ 1,4 %. Le rayon sphérique équivalent final est d'environ 70  $\mu\text{m}$ . Dans ce cas d'étude, les pores exhiberaient une morphologie très sphérique avec un rapport, équation (2.65), d'environ 1,1. La légère diminution de la porosité visible sur la figure 2.9.b est liée à la forte contrainte exercée par la microstructure dans ce cas. En effet, en fin de solidification, le rayon de courbure imposé aux pores est petit, ce qui entraîne une forte pression à l'intérieur des pores. Cette forte pression augmente la masse d'hydrogène dans les pores (loi des gaz parfaits) et diminue le volume global de la porosité. Cet effet reste cependant limité.

### 2.3. Bilan modèle de porosité

Nous venons de détailler les éléments constitutifs du modèle de porosité implémenté dans le logiciel Solid. Les détails de l'implémentation sont disponibles dans l'annexe B. Puis, nous avons appliqué ce modèle à un cas 0D afin de décrire un résultat. À partir des données d'entrées : la composition initiale d'hydrogène et les caractéristiques des germes (densité et rayon critique), le modèle prédit une fraction volumique de pore et des informations concernant la morphologie des pores, le diamètre équivalent et un rapport morphologique. Dans le chapitre 4 nous appliquerons ce modèle à la solidification d'alliages d'aluminium en coulée semi-continue.

## **Chapitre 3 : Prédiction de la macroségrégation et de la microstructure**

La formation des microporosités est fortement conditionnée par la croissance simultanée des structures de solidification. Les caractéristiques de la microstructure du solide (taille de grains, morphologie, espacement des bras de dendrite) posent une contrainte à la germination et à la croissance des microporosités. De plus, l'évolution de la composition chimique du métal liquide, en éléments d'alliage ainsi qu'en hydrogène, due à la microségrégation pendant la solidification, a une forte influence sur la solubilité de l'hydrogène et donc sur la cinétique de germination et de croissance des pores. Les hétérogénéités macroscopiques (à l'échelle du produit coulé) de microstructure et de ségrégation peuvent donc être des phénomènes importants à l'origine de la formation et de la distribution des porosités dans le produit. Ce chapitre est consacré à la prédiction des structures de solidification en coulée semi-continue. L'outil de modélisation nous permettra d'étudier le rôle de la dynamique du mouvement et du blocage des grains équiaxes dans la mise en place de la macroségrégation et des hétérogénéités de microstructure. L'influence de la morphologie des grains équiaxes sur la formation de la macroségrégation sera également analysée. L'objectif de ce chapitre est double : contribuer à la compréhension du transport des grains dans la coulée semi-continue et analyser l'influence des hypothèses de modélisation sur la prédiction de la macroségrégation et de la microstructure dans ce procédé.

La première partie portera sur l'étude de la solidification d'une plaque d'alliage 7449 base Al-Zn. Cette partie se concentrera sur la macroségrégation et sa formation lors de la coulée. L'apport des modifications du modèle de mouvement des grains sera étudié en détails par des comparaisons avec l'ancien modèle.

La deuxième partie repose sur des comparaisons expérimentales obtenues pour la solidification de billettes d'Al-Cu. Cette partie s'intéressera particulièrement à l'influence de la morphologie des grains sur la formation des structures de solidification.

### **1. Dynamique du mouvement des grains équiaxes dans la zone pâteuse**

Dans cette étude, nous allons dans un premier temps identifier l'influence des différents termes, d'inertie et de contrainte dans la phase solide, ajoutés à l'équation de la conservation de la quantité de mouvement de la phase solide, voir chapitre 2 page 66. Afin d'exposer cette influence, chacun des termes de l'équation sera isolé.

Dans un deuxième temps, nous analyserons l'impact du blocage des grains équiaxes sur l'établissement de la macroségrégation lors de la solidification en coulée semi-continue. Cette analyse sera basée sur une étude paramétrique de la fraction solide de blocage des grains. Cette étude est basée sur le cas prototype de la coulée d'une plaque de l'alliage 7449, déjà utilisé dans des études précédentes [Založnik et al. 2011].

### 1.1. Description du cas d'étude

Nous allons étudier la solidification d'une plaque de 350 mm d'épaisseur d'alliage 7449. L'alliage a été modélisé comme un équivalent binaire Al-8.375Zn wt. %. Le chemin de solidification de l'alliage binaire a été adapté afin de correspondre à celui de l'alliage 7449 grâce une modélisation avec un modèle Calphad [Založnik et al. 2011]. L'évolution des masses volumiques a également été adaptée afin de correspondre à celle de l'alliage 7449. L'alliage est inoculé avec  $0,4 \text{ kg.t}^{-1}$  de l'affinant Al-Ti-C. La morphologie des grains est supposée globulaire. La figure 3.1 représente schématiquement la plaque étudiée.

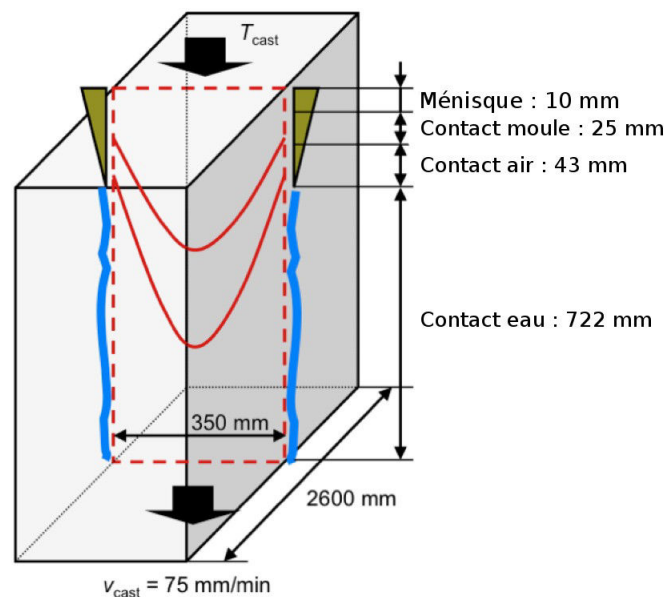


Figure 3.1 : Schématisation de la plaque étudiée, 2600 mm de large pour 350 mm d'épaisseur [Založnik et al. 2011].

Le domaine de simulation est en 2D, et la largeur étant fortement supérieure à l'épaisseur nous supposons que la solidification est bidimensionnelle. L'utilisation d'une symétrie axiale permet de réduire le domaine de simulation à une demi-épaisseur de plaque. L'hypothèse d'une symétrie axiale a été vérifiée par plusieurs calculs sans cette condition. Les résultats étaient identiques à ceux obtenus avec la condition de symétrie. Le

maillage est composé de 87 mailles sur l'axe X et 212 mailles sur l'axe Y afin de garantir des mailles de 2 mm x 2 mm dans la zone pâteuse, bloquée et liquide.

Tableau 3.1 : Données thermophysiques et paramètres utilisés pour l'étude.

<i>Diagramme de phase (pseudo binaire Al-Zn)</i>		
Composition nominale en Zn, $C_0$	8,375	wt.%
Température de fusion de l'aluminium pur	677,8	°C
Température eutectique	477,55	°C
Pente du liquidus	-6,05	°C.wt.% <sup>-1</sup>
Coefficient de partition	0,257	-
<i>Données thermophysiques</i>		
Chaleur spécifique (solide et liquide)	1300	J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le solide	185	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le liquide	75	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Chaleur latente de fusion	3,6.10 <sup>5</sup>	J.kg <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	-1,5.10 <sup>-4</sup>	°C <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$	1,23.10 <sup>-3</sup>	Wt.% <sup>-1</sup>
Viscosité dynamique	1,28.10 <sup>-3</sup>	Pa.s
Coefficient de diffusion du Zn dans le liquide	5,66.10 <sup>-9</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de diffusion du Zn dans le solide	5,60.10 <sup>-13</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de retrait $\beta_{sl} = (\rho_s - \rho_l) / \rho_s$	5,7	%
Longueur caractéristique pour la perméabilité	100	µm
Coefficient de Gibbs-Thompson	1,9.10 <sup>-7</sup>	K.m
<i>Paramètres du procédé</i>		
Température de coulée	684	°C
Vitesse de coulée	75	mm/min
Coefficient de transfert, ménisque	0	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, contact moule	2000	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, contact air	30	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
<i>Paramètres numériques</i>		
Taille du domaine (X·Y)	0,175 · 0,800	m·m
Nombre de cellules, Y·Y	87 · 212	-

La vitesse d'alimentation en aluminium liquide est uniforme sur toute la partie supérieure. Cette vitesse est calculée à partir d'un bilan de masse à chaque itération et prend donc en compte le retrait de solidification. Les conditions limites utilisées sont de type Fourier,  $\varphi = h(T_{peau} - T_{ext})$ . L'extraction de chaleur par le moule est divisée en trois parties, comme indiqué sur la figure 3.1. La première partie correspond au ménisque formé

par le métal liquide près du moule : dans cette partie aucun contact n'est considéré et le transfert thermique est considéré nul ( $h = 0 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ ). La deuxième partie correspond au refroidissement primaire, l'alliage est directement au contact avec le moule et le transfert thermique est maximum ( $h = 2000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ ). La contraction de l'alliage amène à un décollement avant la fin du moule, dans cette zone le refroidissement est largement réduit ( $h = 30 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ ). Après le moule, l'extraction de chaleur par l'écoulement d'eau est décrite par la corrélation de Weckman et Niessen [1982] qui exprime le flux de chaleur en fonction du débit, de la température de l'eau et de la température de la surface de la plaque. Le tableau 3.1 résume les données utilisées concernant le chemin de solidification, les données thermophysiques et les paramètres du procédé.

La distribution en taille des particules affinantes a été obtenue à partir de la loi établie par Tronche [2001] pour les particules de type TiC pour  $0,4 \text{ kg.t}^{-1}$  de l'affinant Al-Ti-C. La figure 3.2 (b) montre cette distribution discrétisée en 10 classes avec un pas de surfusion constant et égal à  $0,15 \text{ }^\circ\text{C}$ . La masse volumique de la phase solide est considérée constante ( $\rho_s = 2692 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et l'approximation de Boussinesq est utilisée pour la phase liquide. L'évolution de la masse volumique du liquide en fonction de la fraction solide pendant la solidification est tracée, figure 3.2.a. La masse volumique de la phase liquide est donc considérée constante ( $\rho_{l,ref} = 2539 \text{ kg.m}^{-3}$ ) sauf dans le terme de flottabilité dans l'équation de conservation de la quantité mouvement pour le liquide. Les masses volumiques de la phase liquide et solide étant constantes, pour les bilans de masses, le retrait est constant et vaut :  $\beta_{sl} = (\rho_s - \rho_{l,ref}) / \rho_s = 0,057$ .

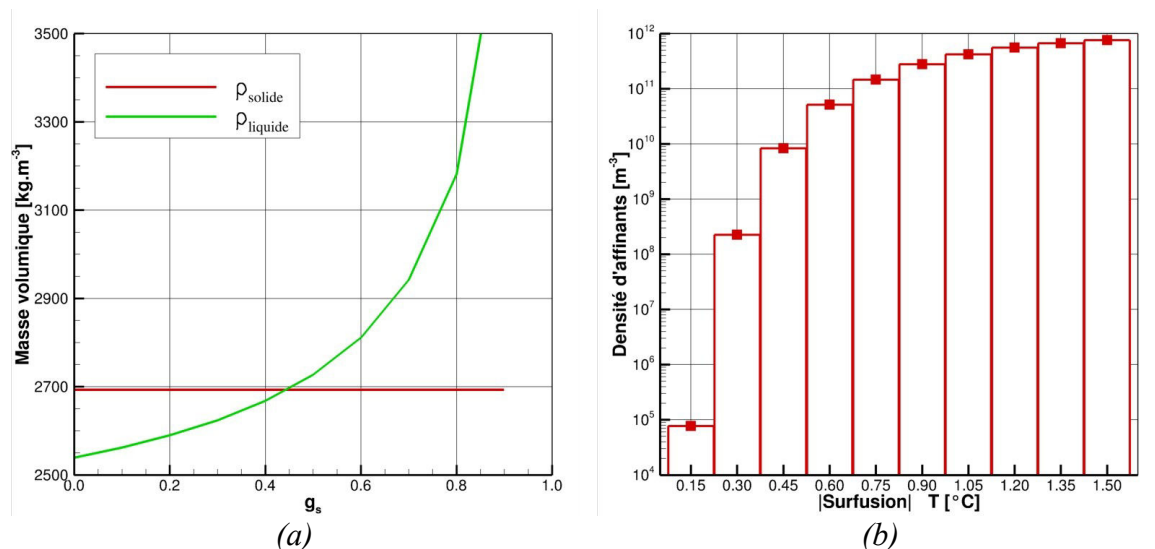


Figure 3.2 : (a) Évolution de la masse volumique du solide et du liquide avec la fraction solide en supposant un chemin de solidification par le modèle de Scheil-Gulliver. (b) Répartition des classes de germes utilisées dans l'étude, correspondant à l'ajout de  $0,4 \text{ kg.t}^{-1}$  de l'affinant du type Al-Ti-C.

## 1.2. Analyse de l'écoulement diphasique dans la zone pâteuse

Dans un premier temps nous allons nous concentrer sur l'apport des extensions du modèle de mouvement des grains à la modélisation et à la prédiction des écoulements et de la forme de la zone pâteuse. Le blocage et l'empilement des grains sont déterminants pour ces phénomènes, c'est pourquoi l'influence de la fraction solide de blocage sera également analysée par une étude paramétrique avec une fraction de blocage de 0,10 à 0,55.

### 1.2.1 Influence de la dynamique de la phase solide sur la structure de l'écoulement

Nous rappelons ici l'équation de conservation de quantité de mouvement pour la phase solide (équation 2.19, page 67) :

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t} (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s) + \nabla \cdot (g_s \rho_s \langle \vec{v}_s \rangle^s \langle \vec{v}_s \rangle^s)}_{\text{inertie}} = -g_s \nabla (P) + \underbrace{\nabla \cdot (\mu_s \nabla \langle \vec{v}_s \rangle^s)}_{\text{viscosité}} + M_s^d + M_s^r + g_s b_s \quad (3.1)$$

Cette équation a été étendue par les termes d'inertie et de viscosité. Le terme visqueux représente les interactions entre les grains par contact (collisions). Afin d'étudier l'apport de ces extensions du modèle, en discriminant l'influence de l'inertie et de la viscosité du solide, nous avons défini une étude paramétrique qui consiste en quatre cas. Ces cas représentent l'équation de quantité de mouvement pour la phase solide, équation (3.1) : avec/sans inertie et avec/sans la viscosité de la phase solide. Le tableau 3.2 résume les quatre cas d'études. Par exemple, pour le cas 1, l'équation de quantité de mouvement pour la phase solide est résolue sans les termes d'inertie et sans la viscosité de la phase solide et pour le cas 2, l'équation est résolue avec les termes d'inertie mais toujours sans la viscosité pour la phase solide. Cette étude a été réalisée pour plusieurs fractions de blocage afin de faire varier les interactions entre les grains dans la zone pâteuse, qui s'intensifient aux fractions de solide élevées, voir figure 2.1 page 68. La fraction de blocage de grains varie en utilisant les valeurs suivantes :  $g_{ep} = 0,10 - 0,20 - 0,30 - 0,40 - 0,50 - 0,55$ .

Tableau 3.2 : Les différents cas d'études en fonction des termes pris en compte.

	Sans inertie	Avec inertie
Sans $\mu_s$	Cas 1	Cas 2
Avec $\mu_s$	Cas 3	Cas 4

La figure 3.3 représente l'écoulement, par la norme de la vitesse et les lignes de courant, dans la zone complètement liquide et dans la zone pâteuse. Les vitesses de la phase liquide et solide sont représentées dans le repère du produit, la vitesse de coulée a été soustraite à la vitesse verticale,  $(u_{s,l}, v_{s,l} - v_p)$ . Pour l'ensemble des cas, l'écoulement conserve la même forme générale. Dès son introduction le liquide se dirige vers la paroi, du fait de la forte extraction de chaleur qui s'y produit. Puis, par la convection naturelle liée au refroidissement et à l'enrichissement en zinc, le liquide descend parallèlement au front de blocage avant de remonter. L'écoulement adopte donc une forme globalement triangulaire. Les vitesses de l'écoulement sont maximales près de la paroi le long du front de blocage où elles atteignent plusieurs centimètres par seconde alors qu'elles sont de l'ordre de quelques millimètres par seconde au centre du lingot lorsque la vitesse est ascendante. Cette zone de forte vitesse est liée à deux phénomènes qui se conjuguent. La forte extraction de chaleur augmente rapidement la masse volumique du liquide et les grains qui viennent de se former dans cette zone sédimentent, entraînant du liquide par effet de traînée. Au milieu de la plaque les grains ont tendance à être entraînés par la remontée du liquide toujours par effets de traînée.

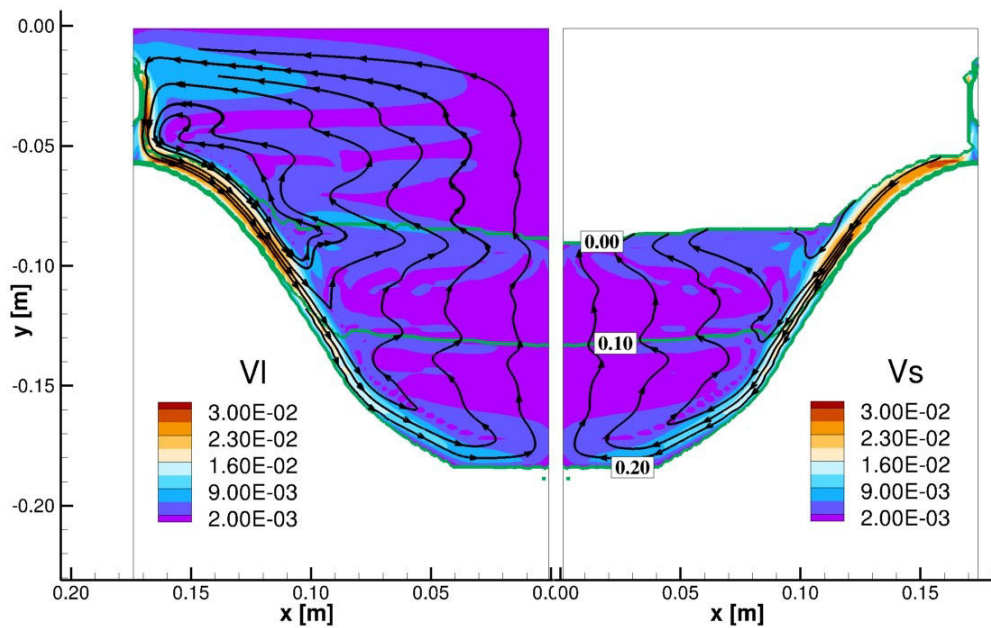


Figure 3.3 : Écoulement de la phase liquide et de la phase solide dans la zone liquide et pâteuse pour une fraction de blocage  $g_{ep} = 0,20$ .

Les figures 3.4 et 3.5 représentent la norme de la vitesse relative et les lignes de courant de la phase solide dans la zone pâteuse pour les différents cas, tableau 3.2, pour deux fractions de blocage, respectivement  $g_{ep} = 0,20$  et  $g_{ep} = 0,55$ .

Dans le cas de figure où la fraction de blocage est égale à 0,20, aucune différence n'est perceptible entre les différents cas. La phase solide descend le long du front de blocage



puis remonte presque verticalement vers le liquidus. La vitesse de la phase solide est maximale lors de la sédimentation, environ  $3 \text{ cm.s}^{-1}$ . Avec une fraction de blocage de 0,20 les interactions entre les grains prévues par le modèle de viscosité solide sont faibles et ne modifient pas l'écoulement. L'inertie de la phase solide est, elle aussi, trop faible pour apporter une modification à l'écoulement.

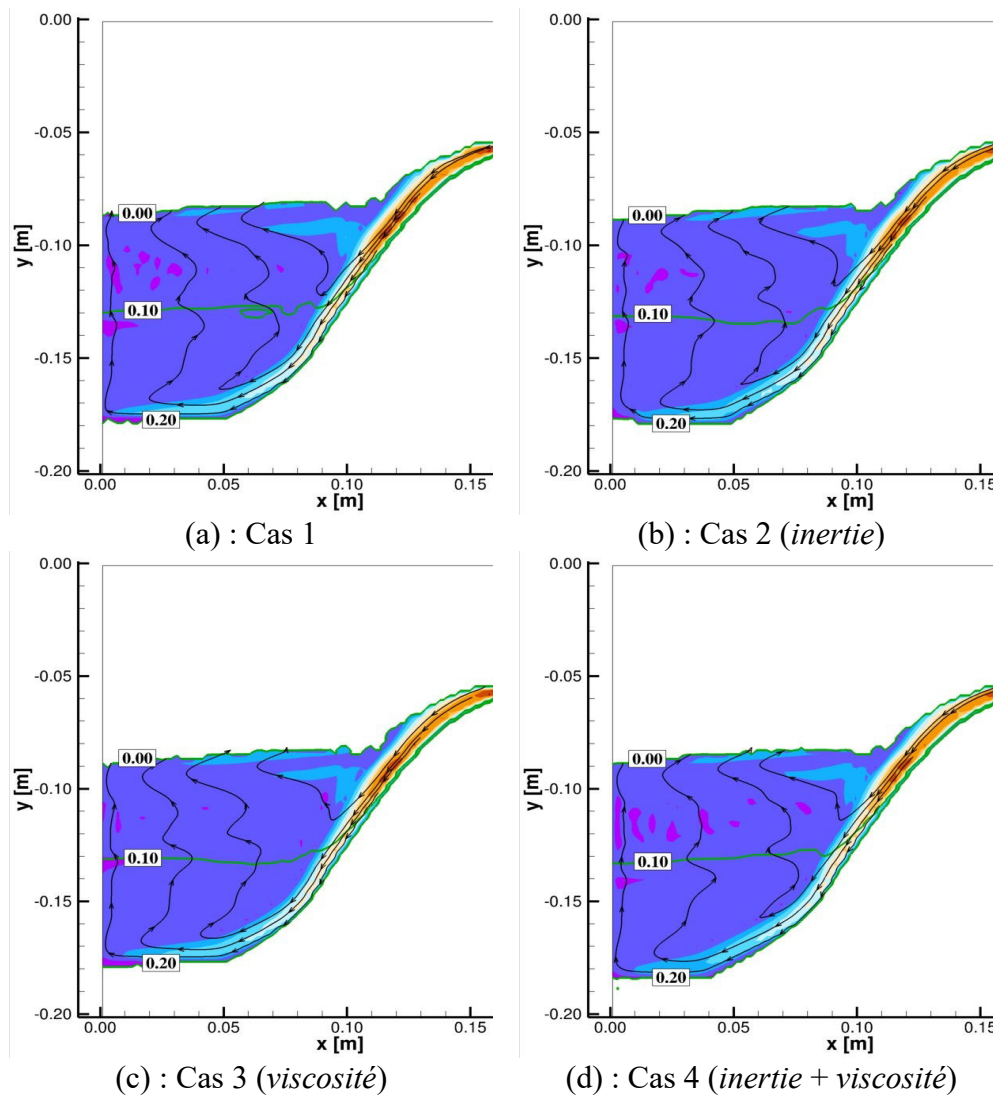


Figure 3.4 : Forme du marais et l'écoulement de la phase solide, dans le repère du produit, représenté par les lignes de courant pour (a) Cas 1, (b) Cas 2, (c) Cas 3 et (d) Cas 4. Résultats obtenus avec une fraction de blocage  $g_{ep} = 0,20$ .

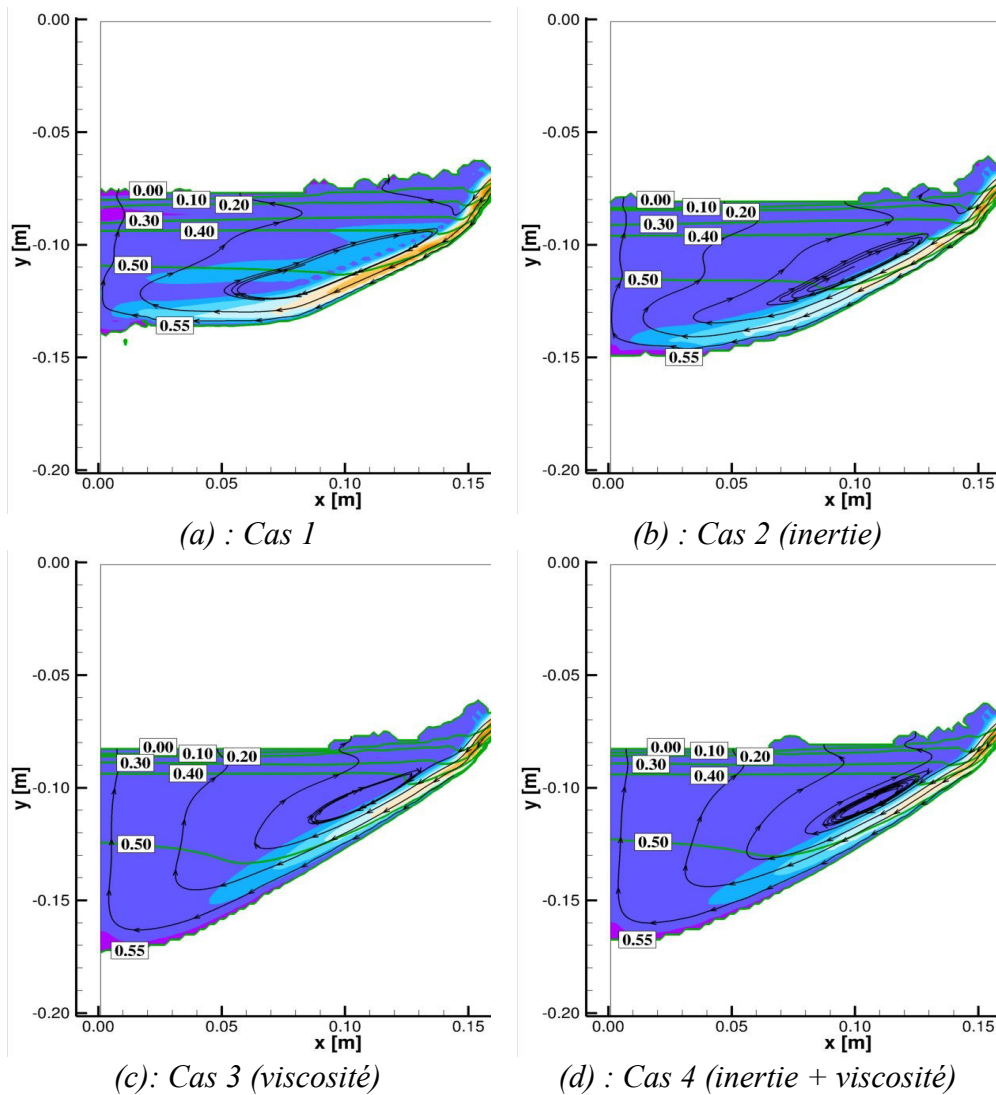


Figure 3.5 : Forme du marais et l'écoulement de la phase solide, dans le repère du produit, représenté par les lignes de courant pour (a) Cas 1, (b) Cas 2, (c) Cas 3 et (d) Cas 4. Résultats obtenues avec une fraction de blocage  $g_{ep} = 0,55$ .

Au contraire, dans le cas où la fraction de blocage est égale à 0,55, figure 3.5, l'influence de chaque terme devient observable. La forme du marais ainsi que l'écoulement sont modifiés même si les principales caractéristiques de l'écoulement sont conservées avec la présence d'une seule boucle de recirculation dans le sens horaire. La vitesse maximale de la phase solide reste quasi-identique, environ  $3 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ , pour chaque cas. Cependant, pour le cas 1 figure 3.5.a, la vitesse de sédimentation reste élevée jusqu'à mi-épaisseur du produit, alors que pour les autres cas la zone de vitesse maximale se concentre plus près de la paroi.

Si l'on compare le cas 1 et le cas 2, les termes d'inertie semblent modifier marginalement la forme du marais avec un marais plus profond. Ils modifient également l'écoulement avec des vitesses plus faibles près du front de blocage, notamment à mi-épaisseur.

Les fortes fractions solides dans la zone pâteuse amenées par cette fraction de blocage donne de l'importance au terme de contrainte modélisé avec une viscosité solide. Les modifications amenées par ce terme sont très sensibles, le marais est sensiblement plus profond et adopte une forme triangulaire. Le champ de vitesse est modifié avec maintenant la présence d'une couche limite près du front de blocage, créée par la forte viscosité. Les similarités entre le cas 3 et cas 4 montrent que le terme de viscosité a plus d'importance dans l'établissement de l'écoulement que les termes d'inertie.

L'approfondissement du marais peut être expliqué par la difficulté des grains à atteindre la zone centrale du lingot, à cause d'une plus faible vitesse moyenne de sédimentation.

Pour le reste de cette étude, nous ne considérerons plus que le modèle comportant l'ensemble des termes dans l'équation de la conservation du mouvement de la phase solide.

### 1.2.2 *Influence du blocage des grains sur la structure de l'écoulement*

En se basant sur le modèle développé nous allons maintenant étudier l'influence de la fraction de blocage sur les écoulements dans la zone pâteuse.

La figure 3.6 montre la forme du marais ainsi que l'écoulement de la phase solide pour quatre fractions de blocage ; (a)  $g_{ep} = 0,1$ , (b)  $g_{ep} = 0,2$ , (c)  $g_{ep} = 0,4$ , (d)  $g_{ep} = 0,55$ . Les lignes de courant ont été calculées avec les vitesses intrinsèques de la phase solide. Nous pouvons directement apercevoir que la fraction de blocage a un fort impact sur la forme de la zone pâteuse ainsi que sur la structure de l'écoulement. La forme de la zone pâteuse passe d'une forme trapézoïdale avec un fond horizontal, figure 3.6.a et 3.6.b, à une forme plus triangulaire, figure 3.6.c et 3.6.d. La profondeur du marais change peu, le marais est plus profond avec la fraction de blocage 0,2 puis diminue pour des fractions de blocage supérieures. Du point de vue de l'écoulement, l'augmentation de la fraction de blocage modifie les recirculations. Alors que les boucles de recirculation sont multiples pour de faibles fractions de blocage, il n'y a plus qu'une boucle de recirculation avec la fraction de blocage maximale. On peut aussi observer que pour la plus forte fraction de blocage,  $g_{ep} = 0,55$ , un saut de fraction solide au liquidus, où la fraction solide passe en moins d'un centimètre de 0 à plus de 0,40.

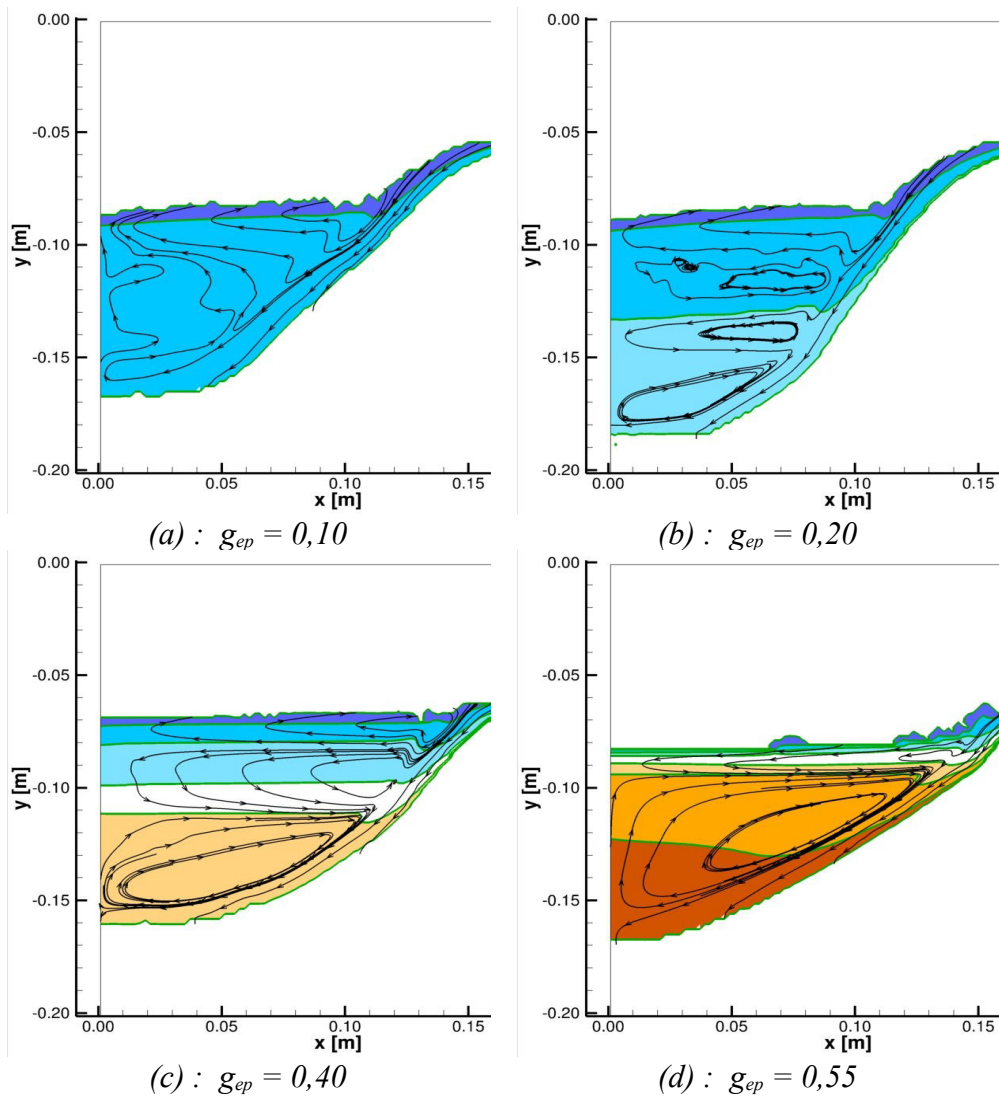


Figure 3.6 : Forme du marais et l'écoulement de la phase solide représenté par les lignes de courants pour (a)  $g_{ep} = 0,10$ , (b)  $g_{ep} = 0,20$ , (c)  $g_{ep} = 0,40$ , (d)  $g_{ep} = 0,55$ .

La figure 3.7.a représente l'évolution de la fraction solide le long de l'axe de symétrie entre le liquidus et le front de blocage des grains. La fraction solide a été normalisée par la

fraction de blocage,  $g_s^* = \frac{g_s}{g_{ep}}$ , et l'altitude par la distance entre le liquidus et le front de

blocage,  $y_s^* = \frac{(y_{(g_s)} + y_{(g_s=0)})}{\Delta y}$ .

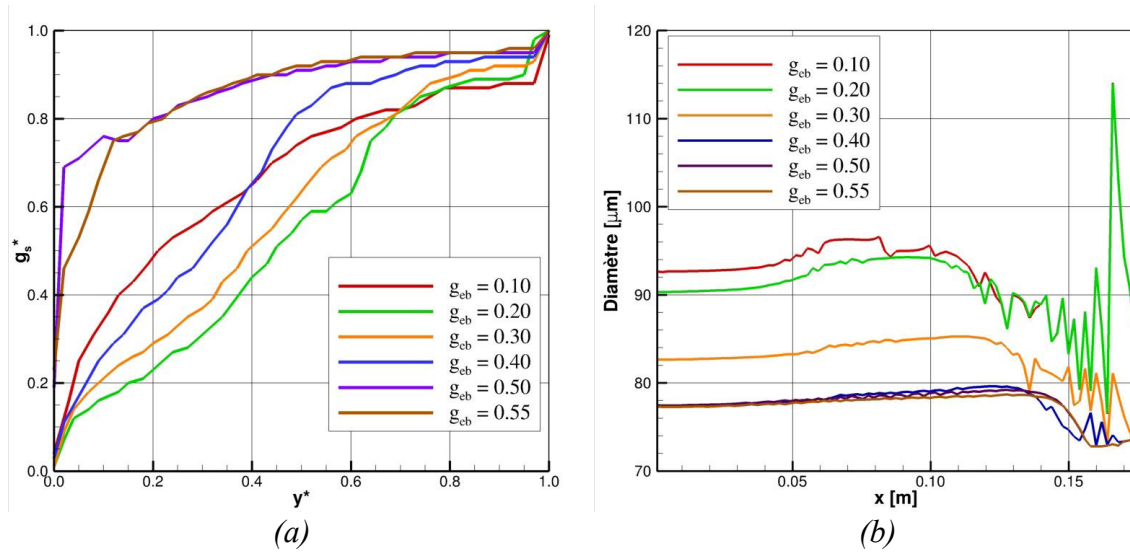


Figure 3.7 : (a) Évolution de la fraction solide entre le liquidus et le front de blocage (b) Diamètre final des grains pour les différentes fractions de blocage étudiées.

Si l'on excepte le cas où  $g_{ep} = 0,10$  les courbes montrent que plus la fraction de blocage augmente, plus la fraction solide est rapidement proche de la fraction de blocage. La modification de l'écoulement provoque ce phénomène, plus précisément la disparition des multiples boucles de recirculation. Ces boucles ont tendance à stratifier la fraction solide. Lorsque ces boucles ne sont pas présentes, dans le cas  $g_{ep} = 0,50$  où bien  $g_{ep} = 0,10$ , l'ensemble des grains remontent directement vers le liquidus, il y a donc plus de phase solide à refondre plus rapidement.

On peut aussi remarquer un saut de fraction solide juste avant d'atteindre la fraction de blocage, consécutif à la sédimentation des grains. Ce saut de fraction solide se réduit avec l'augmentation de la fraction de blocage.

La figure 3.7 (b) représente le diamètre final des grains. L'augmentation de la fraction de blocage a pour effet de diminuer la taille des grains. Plus on augmente la fraction de blocage et plus on a tendance à favoriser la germination sur les particules affines [Bedel 2014]. Cette évolution n'est plus présente pour les fractions de blocages importantes (0,4 à 0,55)

### 1.3. Influence du mouvement de la phase solide sur l'établissement de la macroségrégation

Nous allons maintenant étudier l'influence du choix de la fraction de blocage sur la macroségrégation finale ainsi que son évolution pendant la solidification. Nous allons observer le développement de la macroségrégation dans la zone pâteuse et dans la zone bloquée.

#### 1.3.1 Influence du blocage des grains sur la macroségrégation.

La figure 3.8 représente la macroségrégation pour quatre cas d'études, (a)  $g_{ep} = 0,1$ , (b)  $g_{ep} = 0,2$ , (c)  $g_{ep} = 0,4$  et (d)  $g_{ep} = 0,55$ . La macroségrégation est exprimée de façon relative par rapport à la composition initiale,  $C_m^* = (C_m - C_0)/C_0$ , les couleurs « chaudes » représentent un enrichissement alors que les couleurs « froides » représentent un appauvrissement en soluté. À travers les différents cas on remarque que la zone bloquée est appauvrie alors que la zone pâteuse a tendance à être enrichie. Cependant, plus on augmente la fraction de blocage plus la zone pâteuse s'appauvrit aussi. Pour le cas  $g_{ep} = 0,55$ , la zone pâteuse est presque entièrement appauvrie et on a l'apparition d'un saut de composition près du liquidus où l'on observe des concentrations dans le liquide de plus de 20 % au dessus de la concentration nominale.

La fraction de blocage a un effet macroscopique sur la solidification. En effet, plus la fraction de blocage augmente, plus le solidus remonte en altitude, ce qui signifie une solidification plus rapide de la partie centrale de la plaque. Avec une fraction de blocage plus élevée, plus de grains peuvent circuler avant blocage. Cette augmentation du transport des grains de la surface vers le centre de la plaque induit un refroidissement plus efficace par le transport de la chaleur latente. Avec l'augmentation de la fraction de blocage, plus de grains sont susceptibles de refondre lorsqu'ils sont transportés dans des régions plus chaudes ([Bedel 2014], [Založnik et al. 2011]), et ainsi libérer de la chaleur latente.

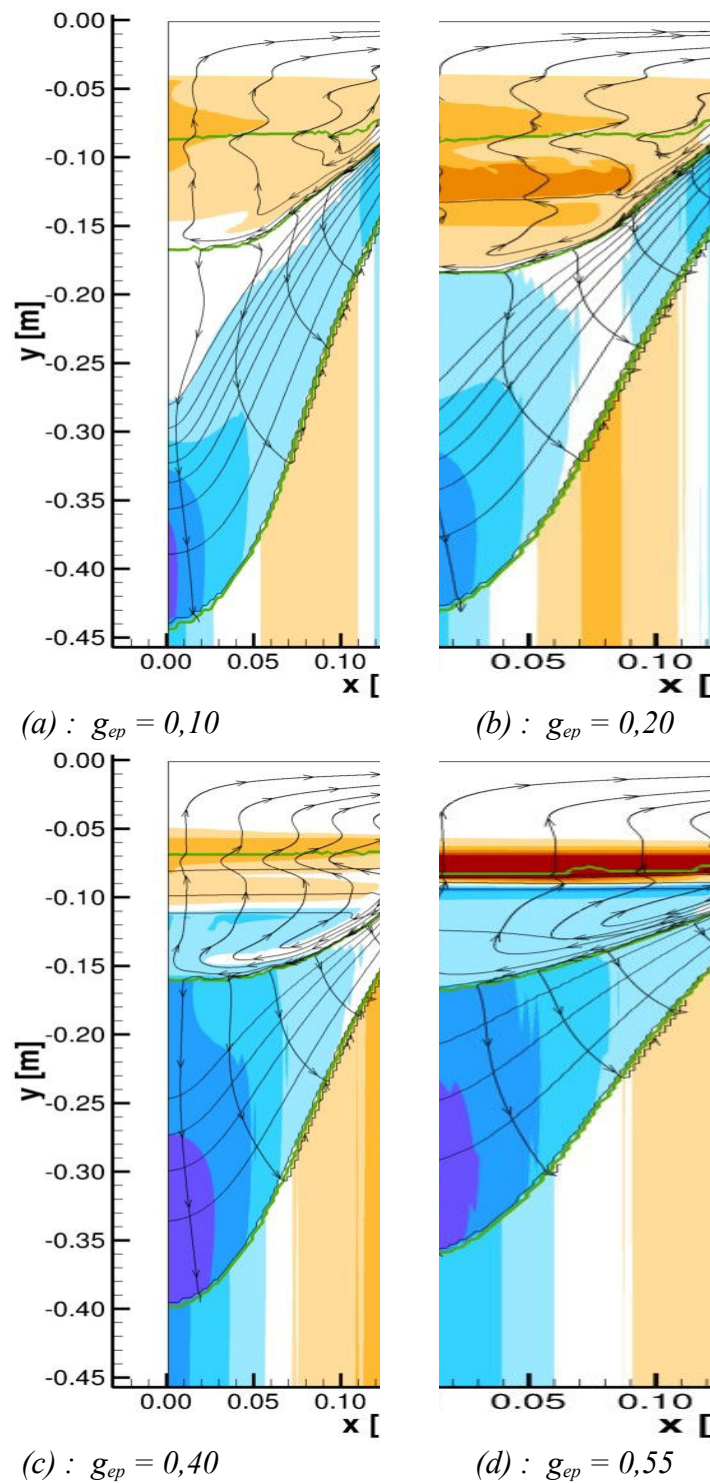


Figure 3.8 : Cartes de macroségrégation relative pour (a)  $g_{ep} = 0,1$ , (b)  $g_{ep} = 0,2$ , (c)  $g_{ep} = 0,4$ , (d)  $g_{ep} = 0,55$ . Les lignes de courants représentent la vitesse de la phase liquide dans le repère du produit. Les iso-fractions (en vert) représentent le début et la fin de solidification ainsi que le front de blocage.

Comme nous l'avons vu précédemment (voir 1.2.2), l'écoulement dans la zone pâteuse est modifié par l'augmentation de la fraction de blocage mais nous pouvons maintenant remarquer que l'écoulement dans la zone bloquée est aussi modifié par la fraction de blocage. Cependant, la modification de l'écoulement est localisée juste après le blocage des grains. L'écoulement dans la zone bloquée devient plus rectiligne lorsque la fraction de blocage augmente. Ce comportement provient de l'évolution de la perméabilité de la zone bloquée. L'augmentation de la fraction de blocage entraîne une fraction solide après le blocage plus importante et donc à un milieu poreux moins perméable. La perméabilité décroît « au carré » avec la fraction solide, équation (1.38). Cette perméabilité moins importante privilégie l'écoulement causé par le retrait par rapport à l'influence d'autres forces, notamment la poussée d'Archimède, et induit ainsi un écoulement plus orthogonal aux iso-fractions solide. D'un point de vue global, on note que la fraction de blocage affecte grandement l'écoulement et la macroségrégation dans la zone pâteuse et modifie sensiblement l'écoulement dans la zone bloquée.

Nous allons maintenant considérer les profils finaux de macroségrégation, relevés le long de l'épaisseur. La figure 3.9 montre ces profils obtenus pour (a)  $g_{ep} = 0,1 - 0,2 - 0,3$  et (b)  $g_{ep} = 0,4 - 0,5 - 0,55$ . La macroségrégation conserve les mêmes caractéristiques indépendamment de la fraction solide avec une ségrégation négative centrale et une ségrégation positive à mi-épaisseur.

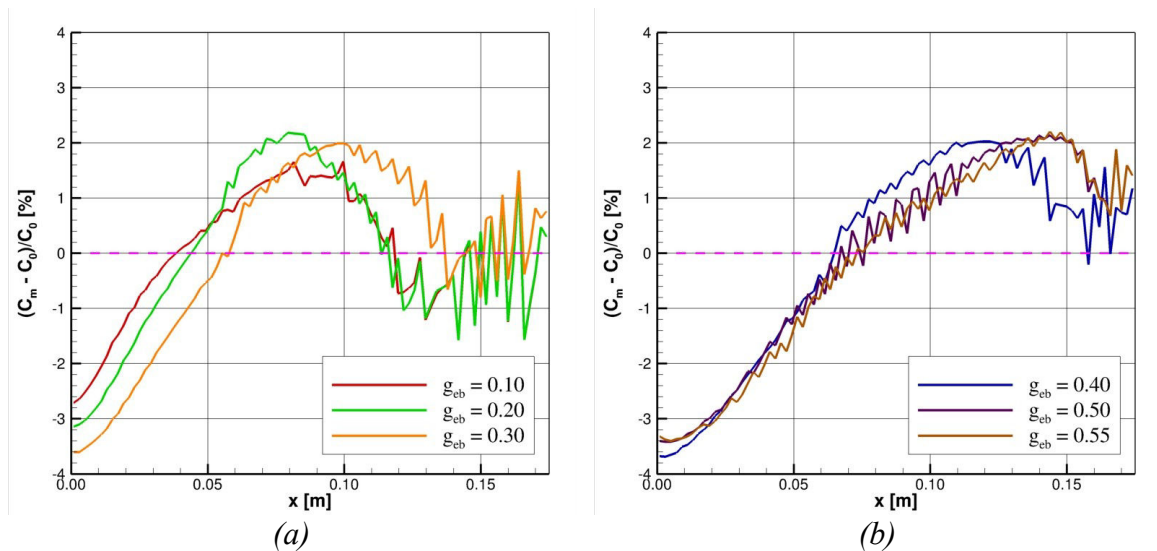


Figure 3.9 : Profils finaux de macroségrégation relatives pour (a)  $g_{ep} = 0,1$ ,  $g_{ep} = 0,2$ ,  $g_{ep} = 0,3$  et (b)  $g_{ep} = 0,4$ ,  $g_{ep} = 0,5$ ,  $g_{ep} = 0,55$ .



L'augmentation de la fraction de blocage déplace la ségrégation positive vers la paroi de la plaque, la valeur de cette ségrégation reste approximativement constante ( $\sim 2\%$ ). Ce déplacement est lié aux changements de l'écoulement qui modifient les boucles de recirculation qui répartissent le soluté. Les grains nouvellement formés possèdent une composition plus faible à cause de la différence de solubilité entre la phase solide et la phase liquide, le liquide va donc s'enrichir en soluté. Puis l'écoulement va répartir ce liquide enrichi dans la plaque. On peut porter l'hypothèse que la suppression des boucles de recirculation intermédiaires, figure 3.6, pour tendre vers une seule boucle de recirculation, amène plus de soluté près de la paroi, d'où le déplacement de la ségrégation positive.

La valeur de la ségrégation négative centrale change peu en fonction de la fraction solide, entre  $g_{ep} = 0,20$  et  $g_{ep} = 0,55$  on observe une variation entre  $-3,2$  et  $-3,6\%$ , alors que l'on a vu que l'écoulement, lui, était fortement influencé. De plus, les profils de ségrégation négative pour,  $g_{ep} = 0,40 - 0,50 - 0,55$  sont quasiment identiques.

La figure 3.10 représente l'évolution de la fraction solide et de la macroségrégation relative selon l'axe  $y$  au centre du produit, sur l'axe de symétrie, pour (a)  $g_{ep} = 0,2$  et (b)  $g_{ep} = 0,4$ . Plusieurs évolutions notables peuvent être observées.

Concernant l'évolution de la fraction solide, deux sauts peuvent être identifiés : un léger saut lors du blocage des grains et un second saut, plus important, en fin de solidification correspondant à la fin de solidification avec une réaction eutectique.

En ce qui concerne le profil de macroségrégation, on peut également observer plusieurs évolutions : un saut de ségrégation consécutif à la sédimentation des grains et un saut au front eutectique.

Nous pouvons mesurer deux grandeurs à partir de l'évolution de la macroségrégation. La première est l'influence de la zone pâteuse ( $\Delta C_m$  Écoulement). Dans cette zone, l'écoulement diphasique (solide/liquide) ainsi que le phénomène du blocage des grains équiaxes sont importants pour la mise en place de la macroségrégation. La deuxième grandeur est l'influence de la zone bloquée ( $\Delta C_m$  Retrait), dans laquelle, c'est principalement l'écoulement induit par le retrait qui est à l'origine de la macroségrégation.

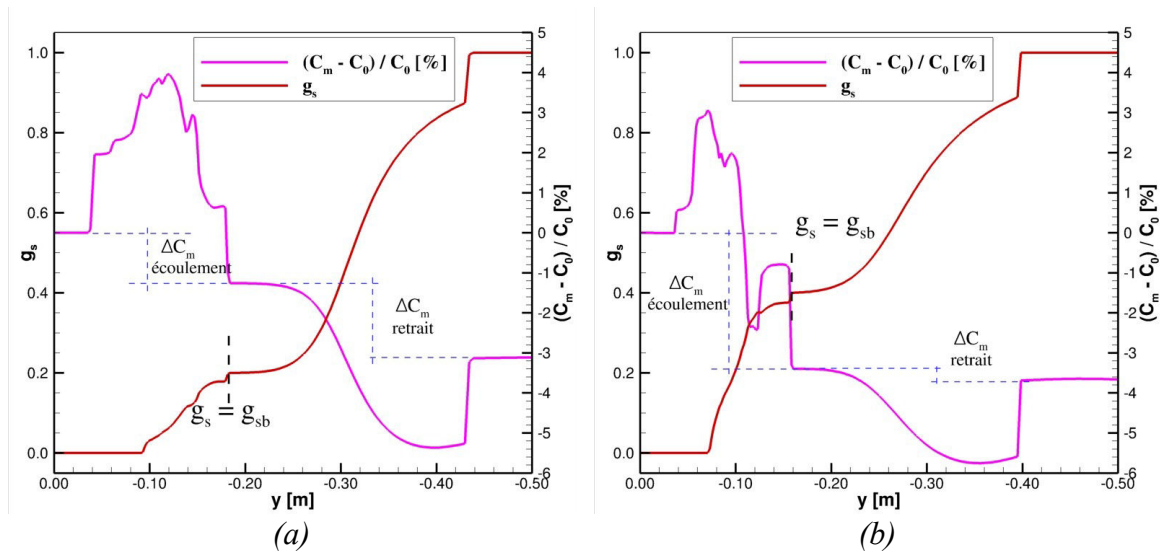


Figure 3.10 : Évolution de la macroségrégation relative (trait magenta) et de la fraction solide (trait rouge) sur l'axe  $y$  au centre du produit pour les cas : (a)  $g_{ep} = 0,2$  et (b)  $g_{ep} = 0,4$ .

Le tableau 3.3 représente ces grandeurs pour les différentes fractions de blocage étudiées. On constate que plus la fraction de blocage augmente plus l'écoulement a un impact important sur la macroségrégation. Cet impact négatif est lié au mouvement des grains. En effet, la convection naturelle a tendance, à l'inverse, à engendrer une ségrégation positive au centre de la plaque [Založnik et al. 2011]. À l'inverse, l'augmentation de la fraction de blocage a un effet positif sur l'impact du retrait. À de faibles fractions de blocage, cet impact est négatif mais il devient positif pour de plus fortes fractions de blocage. La somme de ces deux phénomènes donne une macroségrégation centrale qui n'évolue que très peu dans l'intervalle de fraction de blocage étudié,  $g_{ep} = 0,1$  à  $0,55$ .

Tableau 3.3 : Macroségrégation, sur l'axe  $Y$ , induite par les différents écoulements lors de la solidification.

Fraction de blocage $g_{ep}$	$\Delta C_m$ Écoulement ( $C_m - C_0$ )/ $C_0$ [%]	$\Delta C_m$ Retrait ( $C_m - C_0$ )/ $C_0$ [%]	$\Delta C_m$ Total relatif ( $C_m - C_0$ )/ $C_0$ [%]	$\Delta C_m$ Total absolu $C_m$ [wt.%]
0,10	-0,48	-2,23	-2,71	8,15
0,20	-1,26	-1,87	-3,13	8,11
0,30	-2,67	-0,94	-3,61	8,07
0,40	-3,40	-0,28	-3,68	8,07
0,50	-3,84	0,44	-3,40	8,09
0,55	-4,10	0,78	-3,32	8,10

Nous allons maintenant essayer d'apporter une analyse à la formation de la macroségrégation dans notre cas d'étude. Pour ce faire nous allons nous appuyer sur l'analyse décrite dans la partie 2.3 du chapitre 1.

### 1.3.2 Analyse de la macroségrégation

On rappelle l'équation de conservation du soluté pour la zone pâteuse :

$$\left. \frac{dC_m}{dt} \right|_{v_{cast}^-} = -\frac{1}{m_l} (k_p g_s v_{srel}^{\vec{}} + g_l v_{lrel}^{\vec{}}) \cdot \nabla T + (1-k_p) C_l \nabla \cdot (g_s v_{srel}^{\vec{}}) \quad (3.2)$$

Le premier terme de cette équation peut être relié au changement de phase et à l'écoulement par rapport au gradient thermique. Le deuxième terme est directement lié au mouvement des grains.

Pour la zone bloquée l'équation de conservation peut se réécrire :

$$\left. \frac{d(\rho C_m)}{dt} \right|_{v_{cast}^-} = -\frac{1}{m_l} (g_l \rho_l v_{lrel}^{\vec{}}) \cdot \nabla T - C_l \nabla \cdot (g_l \rho_l v_{lrel}^{\vec{}}) \quad (3.3)$$

La première partie de l'équation peut être rattachée à l'écoulement de la phase liquide par rapport au gradient thermique. Le deuxième terme est lié au déplacement de la phase liquide causé par le retrait.

La figure 3.11 représente les différents termes de l'équation de conservation sur l'axe de symétrie de la zone pâteuse pour notre cas d'étude. La courbe qui représente la variation de la macroségrégation (courbe magenta) a été calculée avec :

$$\left. \frac{d(\rho C_m)}{dt} \right|_{v_{cast}^-} = v_{cast} \frac{d(\rho C_m)}{dy} \quad (3.4)$$

à partir des résultats des simulations présentées précédemment.

On peut vérifier que l'évolution du soluté correspond bien à la macroségrégation obtenue sauf lorsque la fraction solide est très faible. Nous avons écrit la conservation du soluté pour mettre en évidence l'influence du mouvement de la phase solide, équation (3.2), mais lorsque fraction solide est faible l'écriture devrait être reconsidérée. Lors du blocage des grains l'analyse n'est pas précise même si l'ordre de grandeur est respecté. Cela est dû à la difficulté de calculer la dérivé de la fraction solide lors de la discontinuité au front de blocage.

Bien que la macroségrégation soit positive dans la zone pâteuse, on remarque sa tendance à

s'appauvrir. En effet, la courbe représentant l'évolution de la composition moyenne est majoritairement négative, confirmant l'effet appauvrissant de la zone pâteuse. Avec l'analyse des termes de l'équation (3.2), on peut observer que le premier terme est toujours positif alors que le second est toujours négatif. La valeur positive du premier terme est expliquée par le sens de l'écoulement qui est ascendant par rapport à l'orientation du gradient thermique, dirigé vers le haut. Le signe négatif du deuxième terme signifie que la divergence ( $\nabla \cdot (g_s \vec{v}_{srel})$ ) est négative car dans le sens de l'écoulement relatif, les grains ont tendance à refondre et à ralentir. On observe bien le saut de composition engendré par le blocage des grains et ce saut est dû aux changements de vitesse de la phase solide et au saut de fraction solide.

Lorsque la fraction de blocage est augmentée on observe bien une plus grande amplitude dans la valeur des termes de l'équation (3.2), ainsi qu'une tendance plus négative de l'évolution de la macroségrégation.

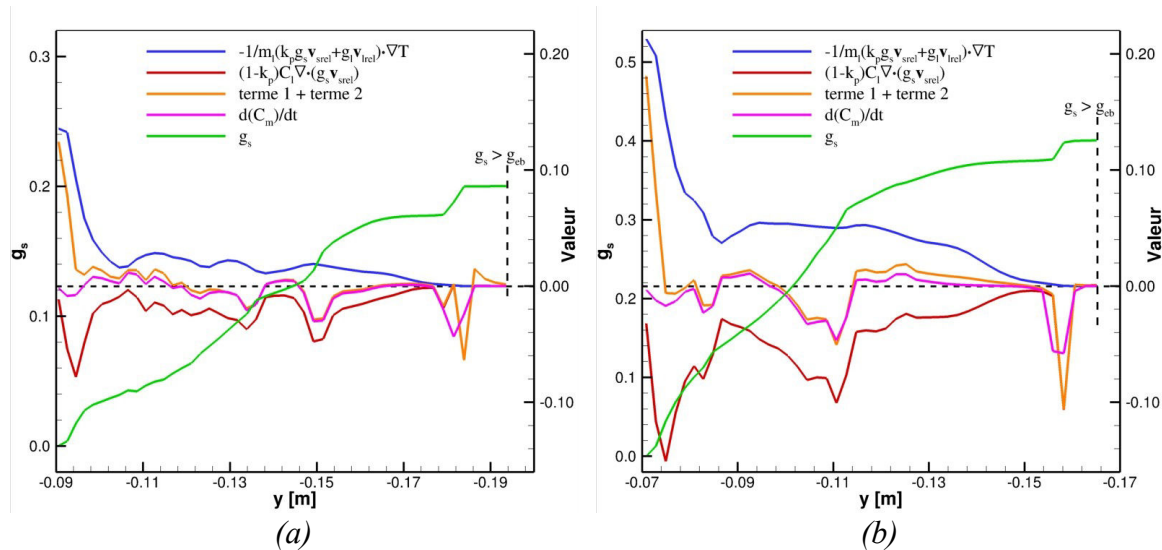


Figure 3.11 : Calcul des termes de la conservation du soluté dans la zone pâteuse sur l'axe de symétrie pour (a)  $g_{ep} = 0,2$  et (b)  $g_{ep} = 0,4$ .

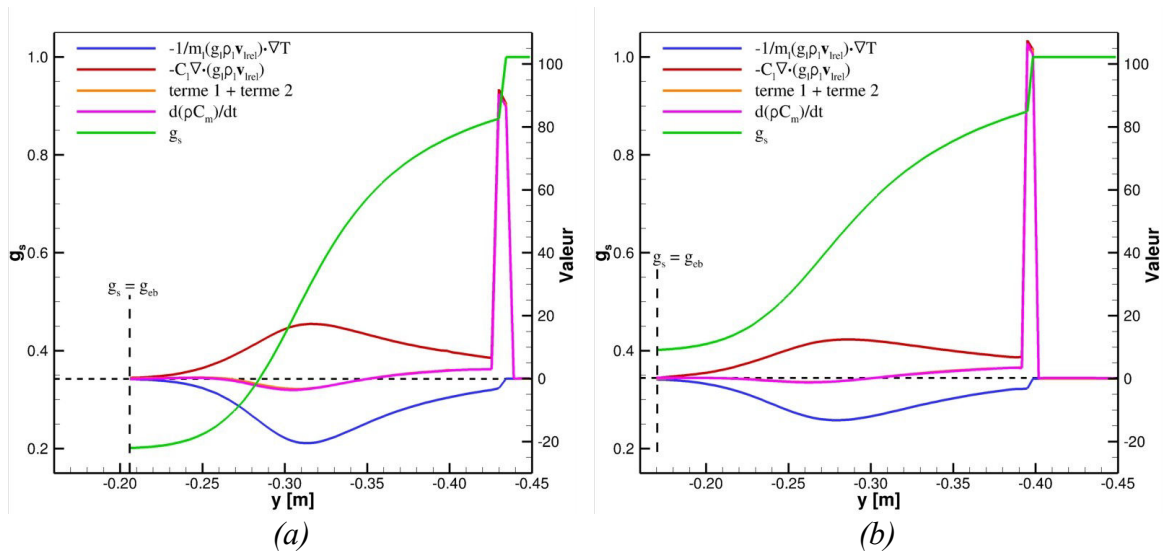


Figure 3.12 : Calcul des termes de la conservation du soluté dans la zone bloquée pour (a)  $g_{ep} = 0,2$  et (b)  $g_{ep} = 0,4$ .

La figure 3.12 montre les termes de la conservation du soluté dans la zone bloquée. Dans cette zone le signe des termes est inversé. Le premier terme est toujours négatif. En effet l'écoulement est dirigé dans le sens opposé au gradient thermique. Le deuxième terme est toujours positif avec un pic en fin de solidification. Ce pic est causé par l'apparition de la fraction eutectique qui a deux effets, un saut de fraction solide et l'annulation de la vitesse additionnelle conférée au liquide par le retrait. Dans la zone bloquée, l'évolution de la macroségrégation subit deux phases. Sur presque deux tiers de la zone la composition s'appauvrit puis s'enrichit dans le dernier tiers. Ce comportement est identique pour les deux fractions de blocage représentées. Cependant l'intensité des ségrégations diminue avec la fraction de blocage.

La diminution de l'intensité des termes avec l'augmentation de la fraction de blocage peut être expliquée par la diminution de la vitesse de la phase liquide dans la zone bloquée. Cette diminution peut être liée à la différence de volume de liquide à solidifier entre les deux cas. En effet, le temps de solidification est identique entre le front de blocage entre les deux cas ( $g_{ep} = 0,20$  et  $g_{ep} = 0,40$ ). Cependant dans le cas où  $g_{ep} = 0,20$ , il reste un volume plus important de liquide à solidifier par rapport au cas où  $g_{ep} = 0,40$ . Ce volume supplémentaire entraîne un retrait plus important, augmentant la vitesse de la phase liquide dans la zone bloquée. Cette vitesse supérieure augmente la macroségrégation liée à l'écoulement dans la zone bloquée.

Nous pouvons dire que l'effet de compensation entre les phénomènes de ségrégation, retrait et mouvement des grains, est lié à la diminution du retrait dans la zone bloquée, engendrée par l'augmentation de la fraction de blocage,  $g_{ep}$ .

#### 1.4. Conclusion sur le mouvement des grains

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons étudié en détail le mouvement des grains en coulée semi-continue. Premièrement nous avons observé l'influence de chaque terme de l'équation de conservation de quantité de mouvement. Dans le contexte de la coulée semi-continue, l'inertie des grains n'a qu'une faible influence sur l'écoulement. La viscosité solide implémentée dans le chapitre 2, modifie l'écoulement dès que la fraction de blocage devient supérieure à 0,4.

Puis nous avons étudié l'influence de la fraction de blocage sur l'écoulement et sur l'établissement de la macroségrégation. Dans ce cas d'étude, alliage 7000, la modification de la fraction de blocage n'a que très peu d'influence sur la macroségrégation finale, bien que l'écoulement et les ségrégations dans le marais soient fortement modifiés avec le front de blocage.

Nous avons donc observé un effet de compensation entre l'effet de l'écoulement avant et après le front de blocage. Cet effet tend à donner une ségrégation finale presque indépendante de l'histoire de la macroségrégation, dans une gamme de fraction de blocage de 0,2 à 0,5.

## 2. Rôle de la morphologie des grains équiaxes dans la mise en place de la macroségrégation

L'objectif de cette partie est d'étudier le rôle de la morphologie des grains sur l'établissement des structures de solidification. La transition morphologique et son influence sur les écoulements et donc sur la formation des ségrégations sont les points importants de cette partie.

Cette étude se base principalement sur les résultats expérimentaux de Vreeman et al. [2002] où des résultats sur deux billettes d'Al-Cu sont présentés. La principale différence entre ces deux billettes est la présence ou l'absence de particules affinantes. Comme déjà indiqué, chapitre 1 page 46, ces particules sont ajoutées afin d'affiner la microstructure finale. L'ajout de ces particules favorise la germination de la phase solide. Cette germination de multiple grains équiaxe a tendance à donner une micro-structure finale plus globulaires. Nous avons donc deux billettes avec des morphologies finales différentes.

### 2.1. Présentation des résultats de l'étude originelle

La figure 3.13 représente schématiquement la billette étudiée. Le diamètre de la billette est de 45 cm et elle est coulée à une vitesse de 60 mm/min. Le moule utilisé pour la coulée est de technologie Wagstaff Airslip™. Ce moule a la particularité de posséder une partie en graphite avec une injection de gaz et de lubrifiant afin de limiter le contact et le refroidissement par la lingotière et de maximiser le refroidissement direct par ruissellement avec l'eau.

Deux billettes ont été coulées dans l'étude et le tableau 3.4 présente les caractéristiques de ces deux coulées. Une billette a été inoculée avec l'affinant Al-3Ti-1B (le taux d'ajout n'a pas été spécifié par les auteurs et n'a pas pu être obtenu) et une billette a été coulée sans affinant. Elles ont été coulées à l'aide du même moule à la même vitesse et à la même surchauffe.

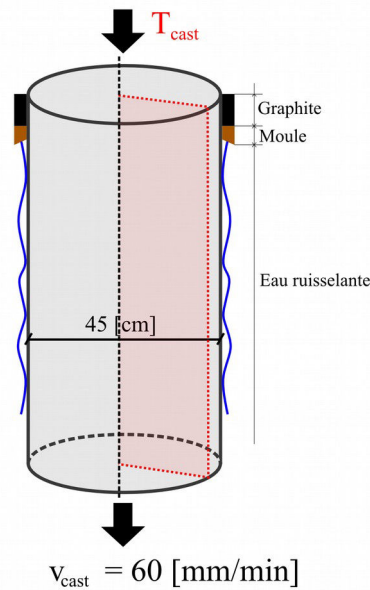


Figure 3.13 : Schéma d de la billette coulée, Vreeman et al. [2002].

Tableau 3.4 : Paramètres de coulée utilisés lors de l'étude de Vreeman et al. [2002].

	<u>Coulée 1</u>	<u>Coulée 2</u>
Composition [wt.%]	Al-6,1 wt.%Cu	Al-5,9 wt.%Cu
Diamètre [cm]	45	45
Vitesse de coulée [mm/min]	60	60
Température de coulée [°C]	670,35	670.35
Inoculation	<b>Avec (Al-3Ti-1B)</b>	<b>Sans</b>

Le profil de macroségrégation a été mesuré pour les deux billettes par spectrométrie de fluorescence X sur 20 échantillons sur chaque billette suivant le rayon. Les résultats expérimentaux ont été modifiés (+0.1/-0.1) pour exprimer les résultats des deux billettes avec une composition nominale de 6wt.%Cu. celle-ci a été utilisée pour les billettes simulées par Vreeman et al. [2002]. La figure 3.14 représente ces profils pour les deux billettes ainsi que les résultats numériques de Vreeman et al. Le principal résultat de la comparaison entre les deux billettes est la relative diminution de la ségrégation lorsque des particules affinantes ne sont pas ajoutées.

Afin de modéliser la solidification des billettes, Vreeman et al se sont appuyés sur un modèle de solidification précédemment proposé [Vreeman et al. 2000], voir page 60. On rappelle ici que ce modèle considère une taille fixe des grains et calcule la fraction solide avec la relation des bras de levier. La sédimentation de la phase solide est prise en compte à travers une formulation de mélange des quantités de mouvement du liquide et du solide.



La figure 3.14.a montre les résultats de Vreeman et al. pour la billette avec affinants. Dans ce cas, les prédictions obtenues par Vreeman et al. montrent une bonne prédiction avec l'expérience, cependant la ségrégation négative centrale reste sous-estimée. Pour simuler le cas affiné, Vreeman et al. ont considéré une fraction solide de blocage,  $g_{sb}$ , de 0,3.

Pour le cas non-affiné, figure 3.14.b, la prédiction de Vreeman et al. n'est pas en accord avec les résultats expérimentaux. Pour simuler ce cas, Vreeman et al. ont considéré une microstructure entièrement colonnaire, sans mouvement des grains ( $g_{sb} = 0$ ).

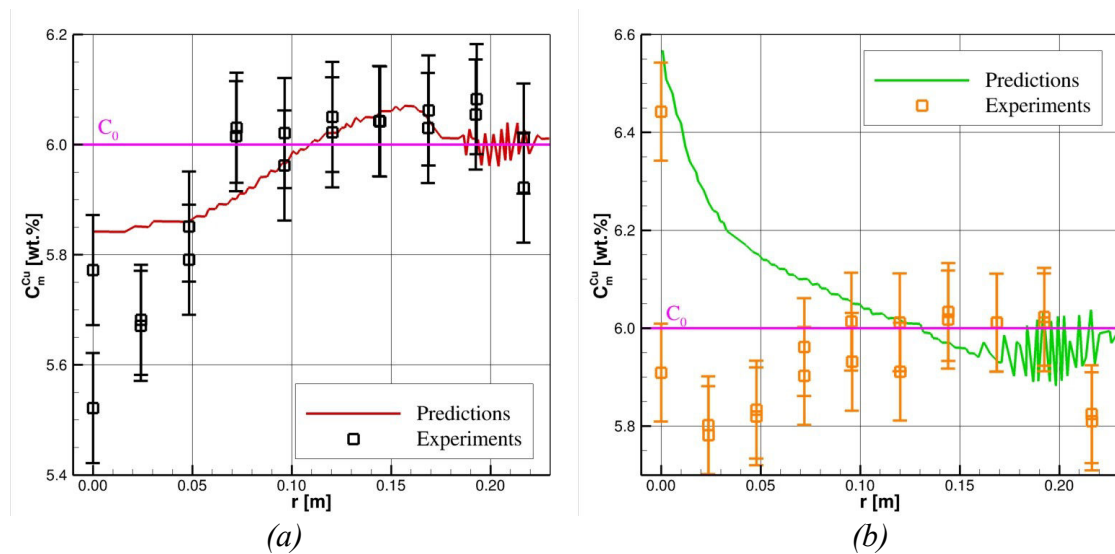


Figure 3.14 : Profil de macroségrégation pour (a) avec affinants et (b) sans affinant. Reproduction colorisée de Vreeman et al. [2002].

Pour le cas de la billette affinée, deux résultats expérimentaux supplémentaires sont disponibles. Une tentative de marquer le marais a été menée par l'introduction d'un mélange d'aluminium et de silicium en cours de coulée. La figure 3.15.a montre une macrographie de la billette affinée. L'introduction du silicium a révélé des interfaces, le solidus ( $g_s = 1$ ) et ce qui semble être le front de blocage des grains ( $g_s = g_{sp}$ ).

Lors de la coulée de la billette affinée, trois thermocouples ont été placés à trois rayons différents (près de la surface, à mi-rayon et sur l'axe de la billette) puis déplacés à la même vitesse que la billette. Ces thermocouples ont relevé l'évolution de la température selon l'axe  $z$ . La figure 3.15.b montre l'évolution de la température dans la billette aux trois positions et indique également le résultat numérique de Vreeman & al.

La microstructure dans les deux billettes n'a pas été rapportée, nous ne disposons donc pas des informations sur la taille et la morphologie des grains. La seule information disponible est la taille des grains fixe ( $75 \mu\text{m}$ ) utilisée dans le modèle de Vreeman et al., qui est représentative de la taille de grain typique dans la billette affinée.

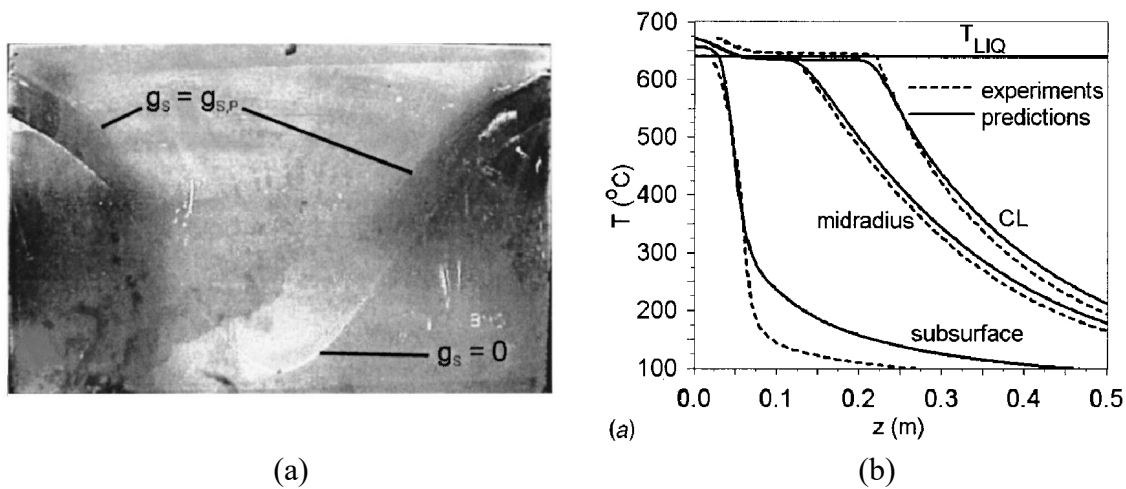


Figure 3.15 : (a) Macrographie de la forme du marais obtenue par l'introduction d'une mixture de silicium et d'aluminium lors de la coulée. (b) profils de température selon  $z$  à trois rayons pour la billette inoculée.

## 2.2. Modélisation et paramètres

Le domaine de simulation est 2D axisymétrique. Le maillage est composé de 60 mailles sur l'axe  $r$  et de 130 mailles sur l'axe  $Y$  afin de garantir des mailles de 4 mm x 4 mm dans la zone pâteuse et liquide. Plusieurs calculs ont été réalisés avec un maillage deux fois plus fin. La comparaison des résultats n'a pas montré d'influence significative du maillage.

La vitesse d'alimentation en aluminium liquide est uniforme sur toute la partie supérieure. Comme pour la partie précédente, cette vitesse est calculée à partir d'un bilan de masse à chaque itération et prend donc en compte le retrait de solidification. Les conditions limites utilisées proviennent de Vreeman et al., sauf après le moule, où la corrélation de Weckman et Niessen [1982] a été préférée. Le tableau 3.5 résume les données utilisées concernant le chemin de solidification, les données thermophysiques et les paramètres du procédé.

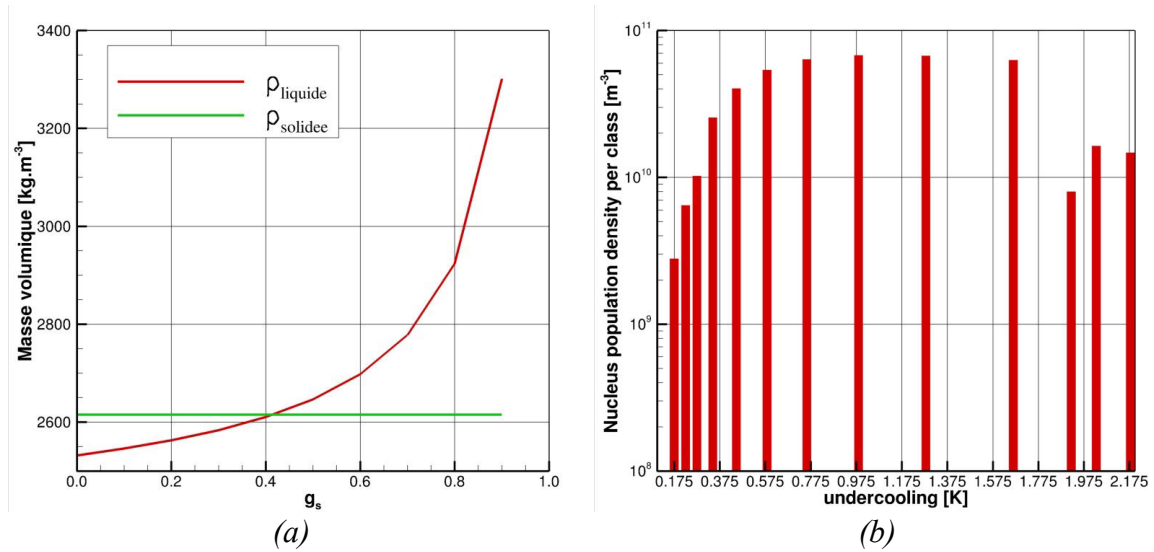


Figure 3.16 : (a) Évolution des masses volumiques du liquide et du solide pour un alliage Al-6wt.%Cu avec le chemin de solidification calculé suivant le modèle de Scheil-Gulliver. (b) Discrétisation de la distribution des tailles des particules affinantes correspondant à la loi déterminée dans Tronche [2001] pour 1 kg/t de Al-5Ti-B.

La distribution des tailles des particules affinantes a été obtenue à partir de la loi établie par Tronche [2001] pour les particules de type Ti-B<sub>2</sub> pour 1 kg.t<sup>-1</sup> d'affinants du type Al-Ti-B. La figure 3.16.b montre la distribution utilisée à partir de la loi, 13 classes ont été discrétisées. La masse volumique de la phase solide est considérée constante ( $\rho_s = 2572 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et l'approximation de Boussinesq est utilisée pour la phase liquide. La masse volumique de la phase liquide est donc considérée constante ( $\rho_{l,ref} = 2490 \text{ kg.m}^{-3}$ ) sauf dans les termes de flottabilité de l'équation de conservation de la quantité mouvement. Les masses volumiques de la phase liquide et solide étant constantes, pour les bilans de masses, le retrait est constant et vaut :  $\beta_{sl} = \frac{\rho_s - \rho_{l,ref}}{\rho_s} = 0,0319$ .

Tableau 3.5 : Données thermophysiques et paramètres utilisés pour l'étude.

<i>Diagramme de phase (binaire Al-Cu)</i>		
Composition nominale en Cu	6	wt. %
Température de fusion de l'aluminium pur	677,8	°C
Température eutectique	547,85	°C
Pente du liquidus	-3,425	°C.wt <sup>0</sup> · <sup>-1</sup>
Coefficient de partition	0,17	-
<i>Données thermophysiques</i>		
Chaleur spécifique	1300	J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le solide	162	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le liquide	95	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Chaleur latente de fusion	3,92 x 10 <sup>5</sup>	J.kg <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	7,3 x 10 <sup>-3</sup>	°C <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$	1,17 x 10 <sup>-4</sup>	Wt <sup>0</sup> · <sup>-1</sup>
Viscosité dynamique	1,3	Pa.s
Coefficient de diffusion du Cu dans le liquide	5,66 x 10 <sup>-9</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de diffusion du Cu dans le solide	4,6 x 10 <sup>-13</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de retrait $\beta_{sl} = (\rho_s - \rho_l) / \rho_s$	3,2	%
Longueur caractéristique pour la perméabilité	75	µm
Coefficient de Gibbs	1,9 x 10 <sup>-7</sup>	K.m
<i>Paramètres du procédé</i>		
Température de coulée	670.35	°C
Vitesse de coulée	60	mm/min
Coefficient de transfert, Contact moule	1500	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, Contact air	0	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
<i>Paramètres numériques</i>		
Taille du domaine (X · Y)	0.225 · 0.9	m·m
Nombre de cellules, Y · Y	60 · 130	-

Le modèle de croissance à trois phases, utilisé dans cette étude, est décrit dans Bedel [2014]. Son couplage avec le modèle de mécanique des fluides est décrit dans le chapitre 2, page 68. Ce modèle permet de tenir compte de la morphologie des grains équiaxes en utilisant la notion d'enveloppe. La figure 3.17 montre schématiquement un grain avec son enveloppe octaédrique et les trois phases hydrodynamiques : le solide, le liquide interdendritique à l'intérieur de l'enveloppe et le liquide extradendritique en dehors. La cinétique de croissance du solide est décrite par des bilans du transfert de soluté et de la chaleur sur une sphère équivalente en tenant compte des trois phases. La croissance de l'enveloppe est donnée par la cinétique de croissance des pointes de bras primaires de la dendrite, décrite soit par un modèle de pointe paraboloidale (LGK), soit par un modèle de

pointe hémisphérique. Dans les équations du transport, à l'échelle macroscopique seulement deux phases sont considérées, la phase liquide, qui se compose du liquide interdendritique et du liquide extradendritique, et la phase solide.

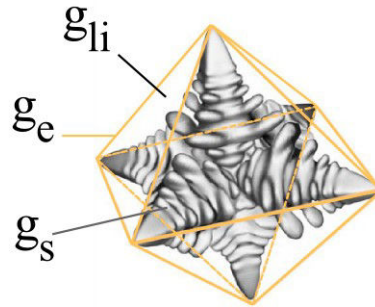


Figure 3.17 : Représentation d'un grain dendritique avec la fraction solide,  $g_s$ , la fraction de liquide interdendritique,  $g_{li}$ , et la fraction d'enveloppe,  $g_e = g_s + g_{li}$ . L'enveloppe du grain dendritique adopte une forme octaédrique, d'après Appolaire et al. [2008] .

Deux modèles de pointe de dendrite, donnant des prédictions différentes, ont été utilisés dans l'étude. Le choix du modèle le mieux adapté n'est pas clair a priori, puisque les hypothèses classiques à l'origine des modèles de pointe ne sont pas nécessairement satisfaites si les structures ne sont pas fortement dendritiques [Nielsen et al. 2001].

A partir des travaux de Vreeman et al. deux études ont été réalisées avec deux objectifs. Le premier objectif était d'étudier l'influence de la morphologie des grains sur la thermique et les ségrégations chimiques. Pour cette étude, nous avons utilisé l'ensemble des résultats expérimentaux concernant la billette affinée.

La deuxième étude consistait à étudier la transition morphologique des grains et son effet sur la macroségrégation. Pour ce faire nous avons fait varier le niveau de particules affinant afin de faire varier la morphologie des grains. L'objectif était d'observer l'influence de l'évolution de la morphologie des grains sur la ségrégation finale et de la comparer à l'évolution observée entre les deux billettes.

## 2.3. Formation de la macroségrégation dans le cas affiné

### 2.3.1 *Thermique et structure de l'écoulement*

Premièrement, considérons la figure 3.18 où les principaux résultats sont présentés pour le cas avec  $g_{ep} = 0,20$ , avec le modèle de pointe paraboloidale. La figure 3.18.a, montre le champ de température et de fraction solide, la figure 3.18.b montre la norme de la vitesse de la phase liquide et de la phase solide. Les deux champs de vitesse sont exprimés dans le repère du produit.

La billette est refroidie par contact avec le moule puis par l'eau ruisselante. L'extraction de chaleur est donc principalement radiale, avec un refroidissement très rapide près de la surface et qui décroît de plus en plus vers le centre. La zone pâteuse au centre de la billette est relativement homogène en température.

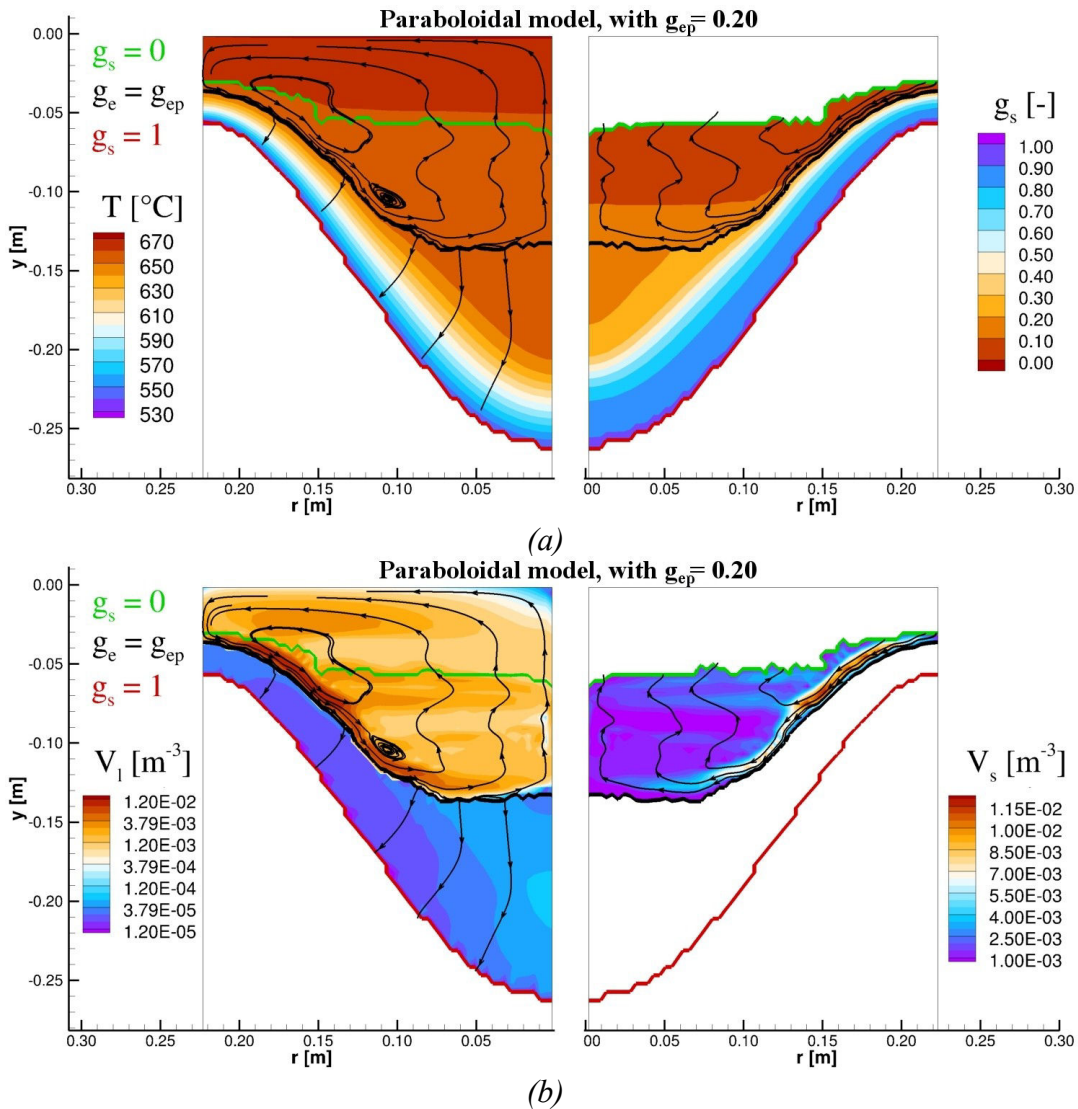


Figure 3.18 : (a) Côté gauche : champ de température. Côté droit : fraction solide. (b) Côté gauche : norme de la vitesse et lignes de courant de la phase liquide. Côté droit : norme de la vitesse et lignes de courant de la phase solide.

L'écoulement développe une forme triangulaire avec une boucle de convection principale et une boucle de convection secondaire pour les plus faibles fractions de blocage. Juste après l'entrée du métal dans la lingotière, l'écoulement commence par aller presque horizontalement vers le moule. Ce mouvement est lié à la forte extraction de chaleur qui induit une boucle de recirculation. Puis, l'écoulement plonge vers le fond de la billette parallèlement au front de blocage. C'est dans cette région que l'écoulement est le plus rapide car la convection naturelle est conjuguée à la sédimentation des grains. Puis le fluide remonte plus lentement au centre de la billette et retourne près de la paroi.

Les grains solides qui sont plus lourds que le liquide sédimentent, mais les grains sont

aussi entraînés par le mouvement ascendant du liquide. Le centre de la billette est caractérisé par des couches de grains empilés avec un front de blocage horizontal. Ce plateau horizontal n'était pas présent dans les simulations de Vreeman et al. [2002].

### 2.3.2 Morphologie des grains équiaxes

L'un des principaux résultats de la première partie de l'étude est la morphologie obtenue des grains pour chaque modèle de pointe et sa variation avec la fraction de blocage. La figure 3.19 montre la fraction interne des grains pour  $0 < g_s < 1$  et pour les deux modèles de pointe avec une fraction de blocage  $g_{ep}=0,20$ . Avec le modèle de pointe paraboloidale (figure de gauche), les grains deviennent quasiment globulaires très rapidement, presque tout de suite après la germination. Avec le modèle de pointe hémisphérique, les grains restent très dendritiques jusqu'au front de blocage.

La morphologie des grains est montrée sur la figure 3.20 où la fraction de solide interne,  $g_i$ , est donnée au front de blocage (caractéristique de la morphologie finale [Appolaire 1999]) pour les deux modèles de pointe et pour toutes les fractions de blocage étudiées. Alors que les grains restent entièrement globulaires avec le modèle de pointe paraboloidale, insensiblement à la fraction de blocage, les grains restent dendritiques avec le modèle de pointe hémisphérique. Pour ce dernier modèle, on a une fraction interne d'environ 0,4 au centre et d'approximativement 0,3 près de la paroi. La fraction interne a tendance à légèrement augmenter avec la fraction de blocage.

La différence de morphologie obtenue entre les deux modèles est cohérente par rapport à la littérature. Le modèle de pointe hémisphérique est connu pour sa tendance à prédire une dendritisation plus prononcée des grains en comparaison avec le modèle de pointe paraboloidale [Nielsen et al. 2001].



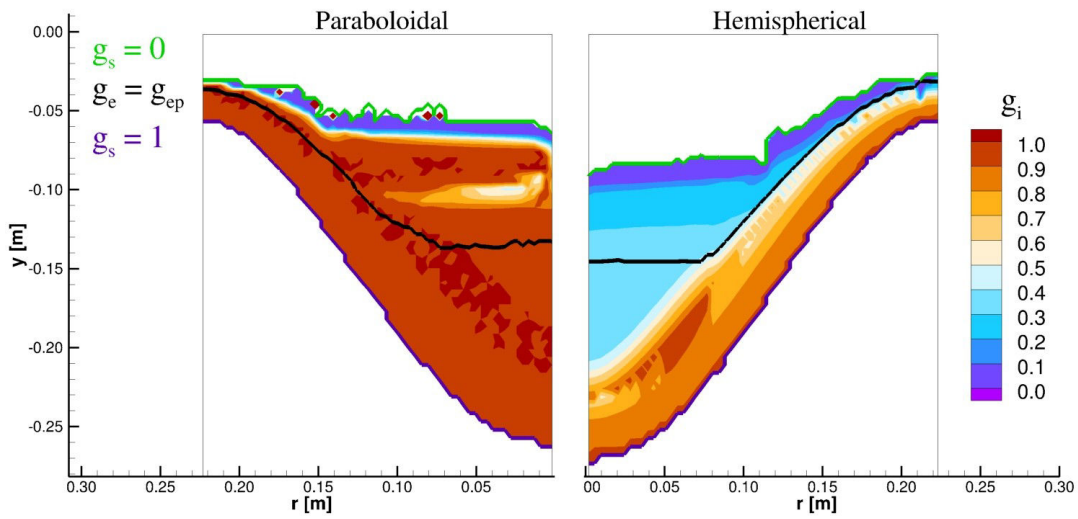


Figure 3.19 : Fraction solide interne obtenue avec les deux modèles de pointe avec  $g_{ep}=0,20$  (figure de gauche pointe paraboloidale et figure de droite pointe hémisphérique).

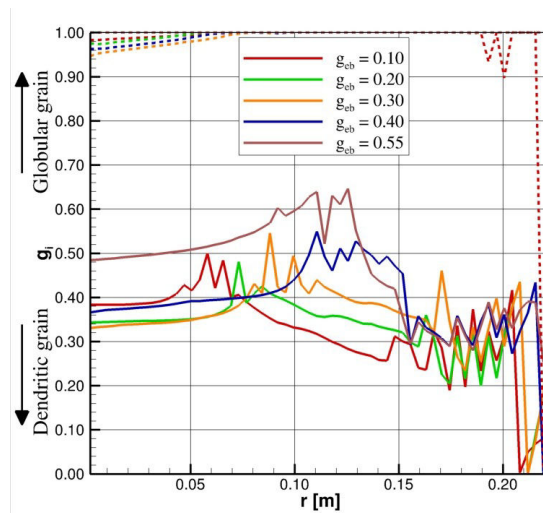


Figure 3.20 : Fraction solide interne ( $g_i$ ) à l'empilement des grains pour les deux modèles de pointe, hémisphérique (traits pleins) et paraboloidale (traits pointillés).

### 2.3.3 Validation de la thermique et de la forme du marais

Avant d'approfondir nos analyses sur les résultats des simulations, il est important de valider le champ thermique obtenu par rapport à l'expérience. Les profils verticaux obtenus avec les thermocouples sont comparés aux profils obtenus par le modèle de Vreeman et par notre modèle (avec les pointes paraboloidales et  $g_{ep} = 0,20$ ) sur la figure 3.21. Les thermocouples étaient placés à environ 2 cm de la surface (subsurface), à environ un quart de rayon (midradius) et sur l'axe central de la billette (Center Line). L'accord entre l'expérience et les profils obtenus est très satisfaisant pour tous les rayons. Le profil près de

la surface est même mieux prédit par rapport au modèle de Vreeman, ce qui conforte notre choix d'adopter la condition limite de Weckman et Niesen.

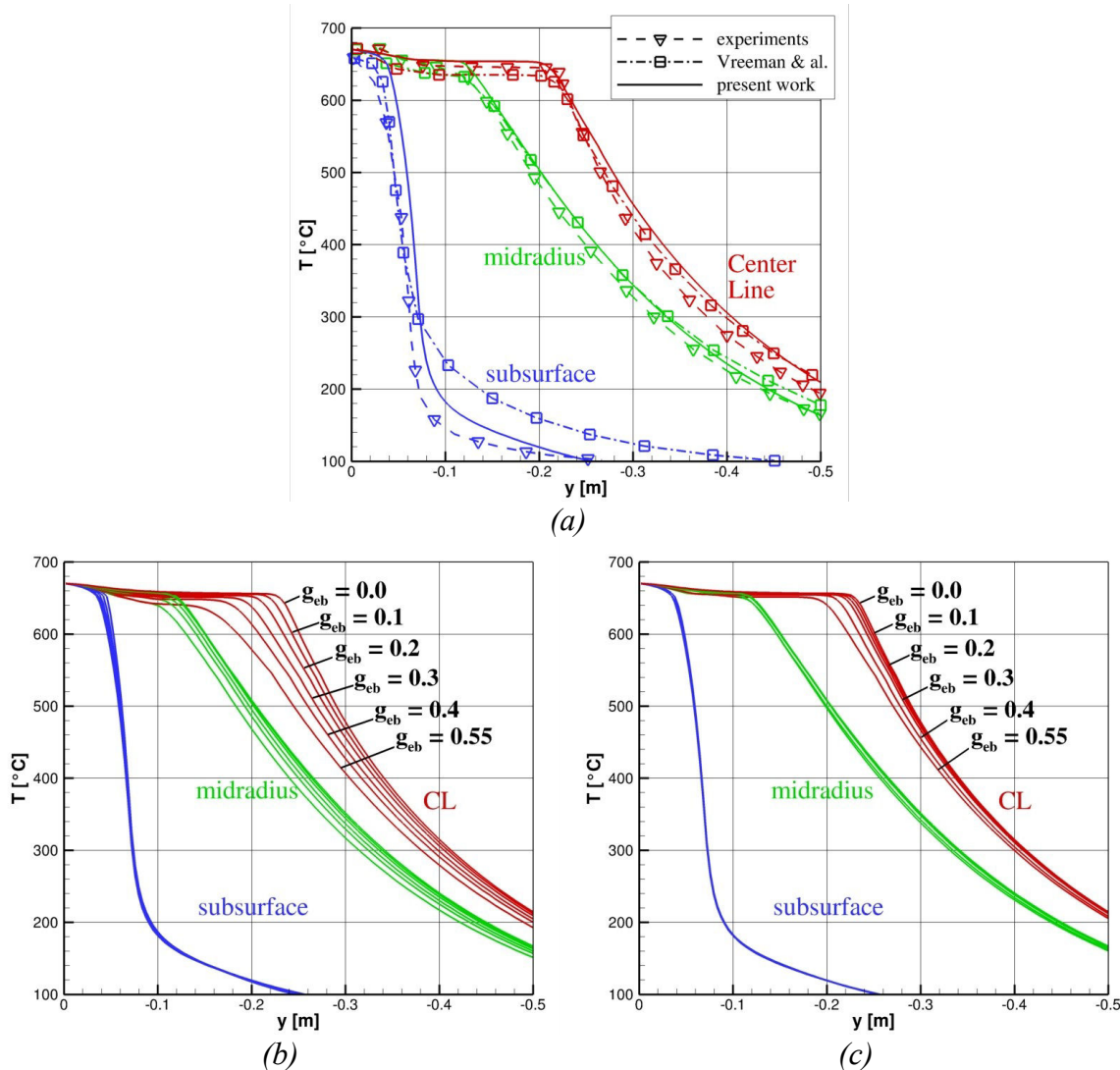


Figure 3.21 : Comparaison entre les profils verticaux de température à trois rayons. (a) Comparaison avec les résultats (expérimentaux et numériques) de Vreeman & al. et notre modèle avec le modèle de pointe parabolicoïdale et  $g_{ep} = 0,20$ . (b) et (c) Comparaison des profils de température pour les différentes fractions de blocage avec respectivement une morphologie globulaire (modèle de pointe parabolicoïdale) et une dendritique (modèle de pointe hémisphérique).

L'effet de la fraction de blocage sur le champ thermique est exposé figure 3.21.b et c pour respectivement le modèle de pointe parabolicoïdale et hémisphérique. L'augmentation de la fraction de blocage a pour principal effet de déplacer les profils vers le haut de la billette, particulièrement le profil au centre de la billette. Ce déplacement correspond à un refroidissement plus rapide du marais. Cet effet est plus significatif lorsque les grains sont

globulaires, figure 3.21.b, que lorsqu'ils sont dendritiques, figure 3.21.c. Ceci est dû au transport plus fort de la chaleur latente par le mouvement des grains.

À partir du profil au centre de la billette, on peut s'apercevoir que le marais est presque isotherme dans ses 20 premiers centimètres. La fin de cette homogénéité, caractérisée par un gradient thermique très faible, ne correspond pas au commencement de la zone bloquée, comme suggéré par Vreeman et al. La fin du faible gradient thermique arrive après plus de la moitié de la zone bloquée. Cette homogénéisation de température est induite par l'écoulement dans la zone bloquée. Lorsque l'intensité de l'écoulement faiblit dans la zone bloquée, la température augmente plus rapidement.

Une comparaison entre la géométrie du marais prédite et expérimentale est réalisée sur la figure 3.22. Sur la figure 3.22.a, la forme du marais obtenue expérimentalement à partir de la macrographie, figure. 3.15.a, est superposée avec la forme prédite avec le modèle (avec l'hypothèse des pointes paraboloidales et  $g_{ep} = 0,20$  ; ligne rouge et verte). Ce modèle de pointe avec cette fraction de blocage a montré la meilleure comparaison, c'est pourquoi ces paramètres sont par la suite utilisés comme cas de référence. D'après les observations expérimentales, deux longueurs caractéristiques ont été sélectionnées. La première longueur, L1, représente la distance entre le solidus et le front de blocage à mi-rayon, ce qui pourrait représenter l'épaisseur de la zone bloquée (expérimentalement,  $L1_{exp} = 5$  cm). La deuxième longueur, L2, est la hauteur du solidus (expérimentalement,  $L2_{exp} = 19.3$  cm). Pour comparer la forme du marais entre l'expérience et le modèle, le point bas du solidus à l'axe de la billette a été superposé comme point de référence commun. Avec le cas présenté figure 3.22.a, la forme du marais est bien décrite, la pente du front de blocage est bien reproduite et la hauteur du solidus est seulement légèrement surestimée.

Afin de pouvoir étudier l'effet des hypothèses du modèle, la figure 3.22.b représente les valeurs L1 et L2 exprimées en terme de déviation par rapport à la valeur expérimentale  $((L(1,2) - L(1,2)_{exp}) / L(1,2)_{exp} \times 100)$  pour toutes les hypothèses modélisées. Concernant la hauteur du solidus, les résultats obtenus montrent un bon accord. Pour l'épaisseur de la zone bloquée, un bon accord est trouvé seulement pour les faibles fractions de blocage ( $g_{ep} = 0,10 \sim 0,20$ ). Pour des fractions de blocage supérieures, l'épaisseur devient fortement surestimée.

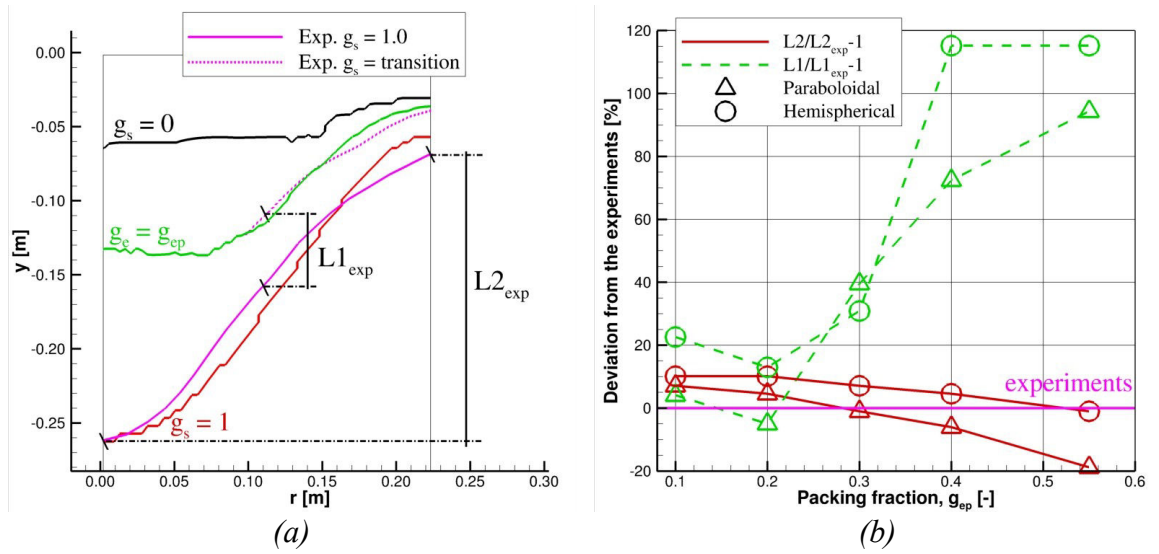


Figure 3.22 : (a) Superposition de la forme du marais obtenue par Vreeman & al. (figure 3.15) et la forme obtenue numériquement avec les pointes paraboloidales et  $g_{ep} = 0,20$ . (b) Comparaison de L1 et L2 pour l'ensemble des fractions de blocage et pour les deux modèles de pointe. Les résultats sont exprimés par déviation par rapport à l'expérience.

L'influence de la fraction de blocage sur la géométrie du marais et sur le champ thermique peut être comprise en prenant en compte l'effet du mouvement des grains. Comme les grains sont plus lourds que le liquide environnant, ils sédimentent vers le centre de la billette. Ce phénomène de transport entraîne une solidification plus rapide au centre de la billette à cause d'un dégagement de chaleur latente et à cause d'un meilleur brassage. Lorsque la fraction de blocage est plus élevée, une plus grande partie de la zone de solidification est affectée et l'influence de ces phénomènes est augmentée. Cet effet est cohérent avec la tendance monotone décroissante de la hauteur du solidus ( $L2$ ) sur la figure 3.22.b. et du déplacement vers le haut des profils de température sur les figures 3.21.b et 3.21.c.

Contrairement à  $L2$ , l'évolution de  $L1$  n'est pas monotone,  $L1$  atteint un minimum à  $g_{ep} = 0,20$ . Après cette fraction de blocage, l'épaisseur de la zone bloquée augmente rapidement. Lorsque  $g_{ep}$  est augmenté, de plus gros grains atteignent le centre de la billette ce qui a pour effet un élargissement du plateau central (figure 3.23). Ce phénomène explique pourquoi l'épaisseur de la zone pâteuse à mi-rayon ( $L1$ ) augmente pour les grandes fractions de blocage.

L'effet de la morphologie des grains est illustré figure 3.22.b à travers son impact sur les valeurs de  $L1$  et de  $L2$ , et par son impact sur le champ thermique sur les figures 3.21.b et c. Même si l'augmentation de la fraction de blocage semble avoir le même effet sur  $L1$  et  $L2$ , des grains globulaires prédisent des longueurs  $L1$  et  $L2$  plus faibles qu'avec des grains dendritiques.

Bien que l'estimation de L2 soit presque identique à  $g_{ep} = 0,10$ , la hauteur du solidus prédite décroît plus rapidement avec l'augmentation de la fraction de blocage pour les grains globulaires. De même, la température au centre de la billette est plus sensible à la fraction de blocage des grains lorsqu'ils sont globulaires, figure 3.21.

Lorsque les grains sont plus dendritiques, le transport de la phase solide est réduit comparé à des grains globulaires ayant la même fraction d'enveloppe. L'influence du mouvement de la phase solide sur la thermique du bain est diminuée. Cela explique la plus faible décroissance de L2 lorsque l'on augmente la fraction de blocage avec le modèle de pointe hémisphérique. À l'opposé, l'épaisseur de la zone bloquée L1 a tendance à être plus importante lorsque les grains sont dendritiques. Plus les grains sont dendritiques, plus ils sont susceptibles de se bloquer rapidement, ce qui explique l'élévation rapide du plateau central.

À travers ces résultats, on peut voir l'importance de l'influence de la morphologie des grains sur la thermique à l'échelle de la billette. Lorsque les grains sont globulaires, le transport de la phase solide est intensifié et il influence fortement le transfert de chaleur dans la coulée. Avec une morphologie dendritique, cette influence est beaucoup plus faible. De plus, nous avons observé que la prédiction de la thermique est fortement influencée par le choix de la fraction de blocage lorsque les grains sont globulaires. La dendritisation des grains diminue l'influence du mouvement des grains, et donc diminue l'influence du choix de la fraction de blocage.

#### 2.3.4 *Écoulement et formation de la macroségrégation*

La figure 3.23 montre la composition moyenne dans la billette, quatre cas sont représentés : deux fractions de blocage ( $g_{ep} = 0,20$  et  $g_{ep} = 0,40$ ) pour les deux modèles de pointe. L'écoulement est présenté à travers les lignes de courant de la phase liquide.

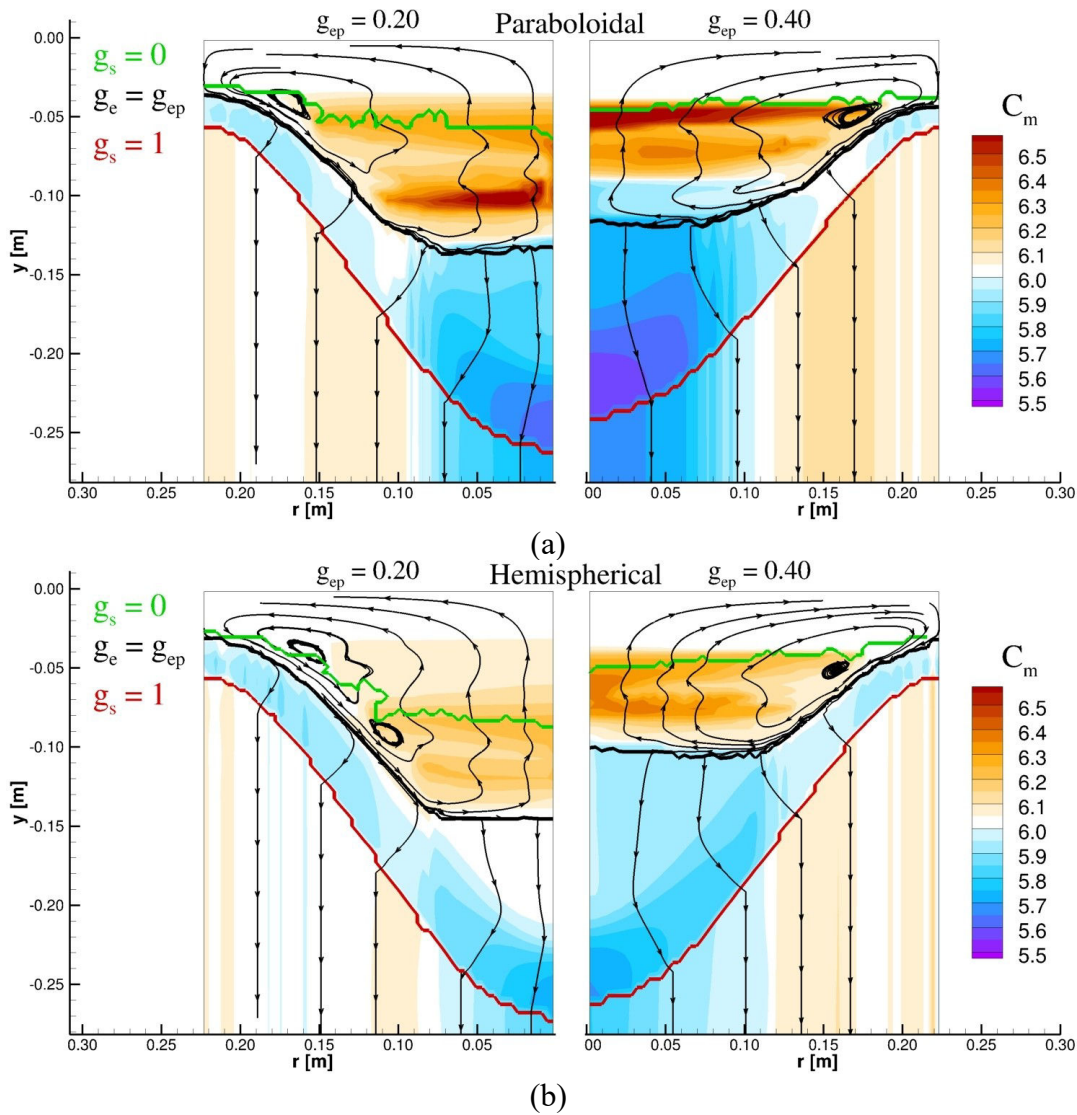


Figure 3.23 : Composition moyenne en cuivre. Pour deux fractions de blocage,  $g_{ep}=0,20$  et  $g_{ep} = 0,40$ . Avec (a) le modèle de pointe paraboloidale (morphologie globulaire) et (b) le modèle hémisphérique (morphologie dendritique).

L'augmentation de la fraction de blocage a deux effets principaux sur l'écoulement. Premièrement, plus de sédimentation de solide entraîne une augmentation des vitesses de la phase liquide par l'effet d'entraînement. La vitesse maximale varie de  $V_{I_{max}} = 1,23 \text{ cm.s}^{-1}$  à  $1,63 \text{ cm.s}^{-1}$  quand la fraction de blocage varie de 0,20 à 0,40 avec le modèle de pointe paraboloidale. De même, la vitesse maximale varie de  $V_{I_{max}} = 0,089 \text{ cm.s}^{-1}$  à  $1,46 \text{ cm.s}^{-1}$  avec le modèle de pointe hémisphérique. L'augmentation de la sédimentation est principalement causée par une taille plus importante des grains, car ils croissent jusqu'à une fraction d'enveloppe plus importante : quand  $g_{ep}$  varie de 0,20 à 0,40, le diamètre équivalent des grains, au front de blocage, varie de 140 à 170  $\mu\text{m}$  avec le modèle de pointe hémisphérique et de 125 à 150  $\mu\text{m}$  avec le modèle de pointe paraboloidale.

Le deuxième effet de la fraction de blocage concerne l'évolution des iso-fractions. Retarder le blocage des grains n'implique pas directement un front de blocage plus profond, notamment au centre de la billette. Au contraire, l'augmentation de la fraction de blocage mène à remonter le front de blocage ainsi que toutes les iso-fractions, comme commenté précédemment. Ce déplacement du marais modifie la structure de l'écoulement dans la zone pâteuse et dans la zone complètement liquide.

L'effet le plus important de la morphologie se retrouve dans l'intensité des vitesses. Les vitesses obtenues lorsque les grains sont dendritiques sont fortement réduites par rapport à celles obtenues lorsque les grains sont globulaires. Même si les grains sont légèrement plus gros lorsqu'ils sont dendritiques, leur morphologie induit une forte réduction de leur vitesse de sédimentation, en accord avec le modèle, voir chapitre 2 page 68.

Malgré la moindre influence sur la thermique lorsque les grains sont dendritiques, un important déplacement du liquidus et du front de blocage est observé figure 3.23.b, lorsque la fraction de blocage varie de 0,20 à 0,40. Le déplacement de ces fronts est beaucoup plus mesuré avec des grains globulaires.

La ségrégation finale, visible sur la figure 3.23, est clairement différente pour les quatre cas présentés. L'augmentation de la fraction de blocage ainsi qu'une globularisation des grains mènent à une plus faible composition moyenne en cuivre au centre de la billette. On peut déduire que la morphologie et le mouvement des grains ont un fort effet sur la macroségrégation finale. Les figures 3.24 et 3.25 montrent la comparaison entre les profils de macroségrégation obtenus et le profil expérimental pour l'ensemble des fractions de blocage étudiées (avec le modèle de pointe paraboloidale figure 3.24 et avec le modèle de pointe hémisphérique figure 3.25). Les résultats numériques obtenus par Vreeman et al. sont également reproduits sur chaque figure.

Les profils de ségrégation obtenus lorsque les grains sont dendritiques semblent proches de celui prédit par Vreeman et al. L'allure de la courbe correspond à l'expérience, mais la ségrégation centrale est sous-estimée. La macroségrégation prédite lorsque les grains sont globulaires semble plus correspondre à l'expérience. En effet, l'intensité et la forme de la ségrégation négative correspondent bien mieux aux observations expérimentales.

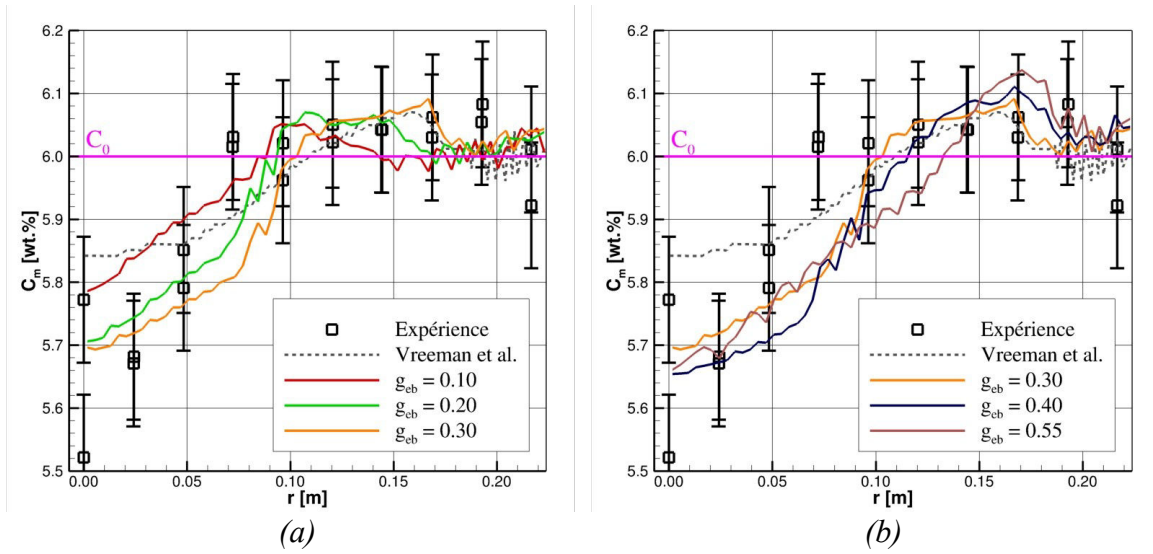


Figure 3.24 : Comparaison des profils de macroségrégation obtenus par Vreeman et al. avec ceux obtenus avec le modèle de pointe paraboloidale, pour différentes valeurs de la fraction de blocage : (a)  $g_{ep} = 0,10 - 0,20 - 0,30$  et (b)  $g_{ep} = 0,30 - 0,40 - 0,55$ .

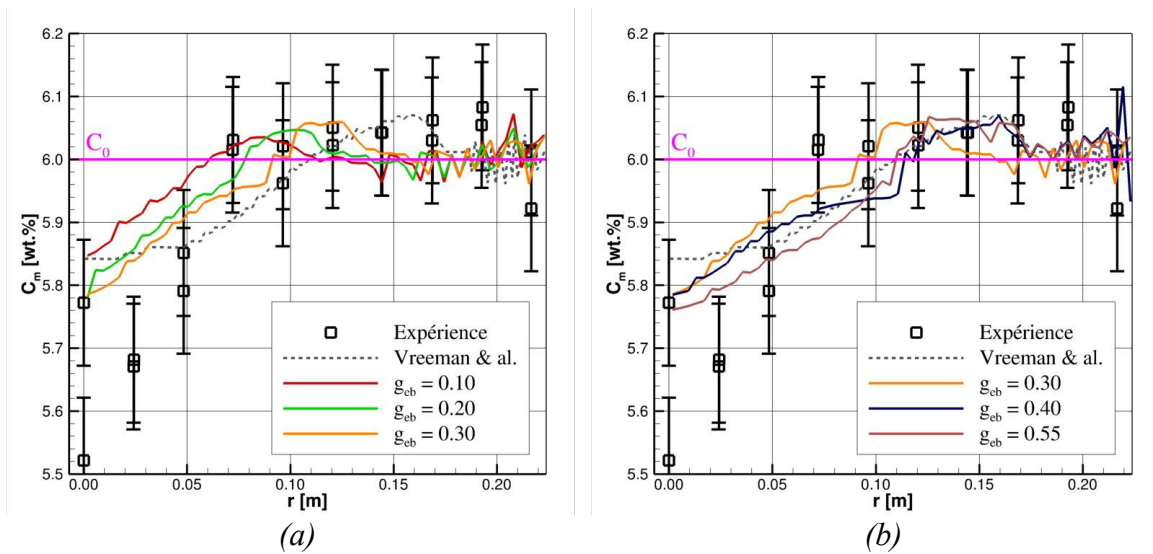


Figure 3.25 : Comparaison des profils de macroségrégation obtenus par Vreeman et al. avec ceux obtenus avec le modèle de pointe hémisphérique, pour différentes valeurs de la fraction de blocage : (a)  $g_{ep} = 0,10 - 0,20 - 0,30$  et (b)  $g_{ep} = 0,30 - 0,40 - 0,55$ .

La sédimentation de la phase solide vers le centre d'un lingot est connue pour favoriser la création d'une zone pauvre en soluté dans la partie centrale. À cause de la différence de solubilité entre la phase liquide et solide, les grains qui viennent de se former ont une composition plus faible que le liquide environnant. La sédimentation de ces grains vers le centre du lingot participe à la formation de la ségrégation négative. Par conséquent, l'augmentation du déplacement de la phase solide, causée par une fraction de blocage



retardée, a un impact direct sur la macroségrégation, comme discuté dans la première partie de ce chapitre. L'effet observé de la fraction de blocage est globalement le même pour les deux modèles de pointe. L'augmentation de la fraction de blocage mène à une amplification de la ségrégation négative centrale et à un déplacement de la ségrégation positive vers la paroi. Avec un blocage retardé et une vitesse de sédimentation plus élevée, la ségrégation négative centrale est amplifiée et par conservation de la masse de soluté, la ségrégation positive dans le reste de la billette est elle aussi augmentée. Cependant, la géométrie cylindrique de la billette limite l'amplification de la positive, et cette évolution est moins présente sur le profil. Le déplacement vers la paroi de la ségrégation positive est lié à la modification de l'écoulement par l'élévation du plateau central qui déplace la recirculation vers la paroi.

Il est intéressant de noter que la fraction de blocage  $g_{ep} = 0,20$  semble fournir les résultats se comparant le mieux aux expériences, tant par l'aspect thermique et la forme du marais que par le profil de macroségrégation. Cette fraction de blocage correspond aux valeurs les plus faibles communément admises pour la modélisation de la coulée continue ( $g_{ep} = 0,20$  à  $0,50$ ) [Flemings & Nereo 1967]. Cette valeur est aussi plus faible que celle utilisée par Vreeman et al. [2002] dans leur étude (i.e.,  $g_{sp} = 0,30$ ), même si la comparaison n'est pas directe car le blocage de Vreeman et al. [2002] se base sur la fraction solide alors que notre modèle se base sur la fraction d'enveloppe.

#### 2.4. La billette non-affinée : influence de la microstructure sur la macroségrégation

Le modèle de croissance considère une nucléation hétérogène et athermique. Les grains sont supposés germer seulement sur des particules affinant qui sont usuellement ajoutées en coulée continue afin d'affiner la microstructure. Par conséquent, la modélisation de la solidification d'une billette non inoculée présente une problématique. Cela nous a amené à étudier l'effet du niveau d'affinant sur la macroségrégation et sur la formation de la microstructure. En effet, un moyen de traiter l'absence d'affinant est de considérer, dans une première approximation, un très faible niveau d'affinant. L'objectif de cette étude n'est pas seulement de vérifier si le modèle est capable de reproduire les observations faites sur la billette non affinée, mais aussi d'une manière plus générale d'analyser l'effet du niveau d'affinant sur la billette, et donc d'étudier l'impact de l'évolution de la morphologie des grains.

Expérimentalement, l'absence de particules affinantes provoque une baisse de l'intensité de la macroségrégation, comme on peut le constater si l'on compare la figure 3.14.a et b. Même si aucune analyse de la microstructure n'a été réalisée, il est clair que la taille des grains est plus importante et leur morphologie plus dendritique dans un alliage non affiné. Le modèle devrait être capable de reproduire ces différences de morphologie et de ségrégation dans une coulée avec et sans particules affinantes.

Dans le but de simuler le cas sans inoculant, Vreeman et al. ont modélisé la solidification sans prendre en compte le mouvement des grains,  $g_{ep} = 0$ , reproduisant ainsi une microstructure complètement colonnaire. Le profil expérimental ainsi obtenu est clairement divergent par rapport au profil expérimental, invalidant de fait cette stratégie. En effet, même si les grains sont plus dendritiques dans le cas d'une coulée sans affinant, ils présentent toujours une morphologie équiaxe. Cependant, le mouvement des grains jouerait toujours un rôle dans la formation de la macroségrégation, même si il est diminuée. Afin d'étudier l'influence du niveau d'inoculation sur notre modèle, nous avons modifié la densité de particules affinantes à partir du niveau nominal de 1kg/t. Quatre niveaux d'inoculation ont été étudiés : 10 kg/t ( $N_0 \times 10$ ), 1 kg/t ( $N_0$ ), 0,1 kg/t ( $N_0/10$ ) et 0,01 kg/t ( $N_0/100$ ). La même loi de nucléation décrite figure 3.16.b a été utilisée, la densité pour chaque classe a été simplement divisée ou multipliée. La bonne correspondance des résultats obtenus avec la fraction de blocage  $g_{ep} = 0,20$ , nous a incité à conserver cette fraction pour cette partie de l'étude.

La figure 3.26.a montre l'effet du niveau d'affinant sur le diamètre moyen des grains et sur la fraction interne moyenne au moment du blocage. Le diamètre moyen des grains est calculé après la solidification comme le diamètre équivalent de l'enveloppe du grain :

$$d_s = \left( \frac{6(1 - g_{eutectic})}{N_s \pi} \right)^{1/3} \quad (3.5)$$

avec  $g_{eutectic}$  la fraction moyenne d'eutectique prédite par le modèle et  $N_s$  la densité moyenne finale des grains.

L'effet du niveau d'affinant est le même pour les deux modèles de pointe, la réduction du niveau mène à un accroissement du diamètre des grains et à une décroissance de la fraction interne, c'est-à-dire, des grains plus gros et plus dendritiques. À l'inverse et logiquement, l'augmentation du niveau d'affinant mène à des grains plus fins et plus globulaires. Pourtant, d'importantes différences persistent concernant la prédiction de la microstructure en fonction du choix du modèle de pointe. Le niveau d'affinant a plus d'impact sur la microstructure lorsque le modèle hémisphérique est considéré, en terme de taille de grain mais aussi de fraction interne.

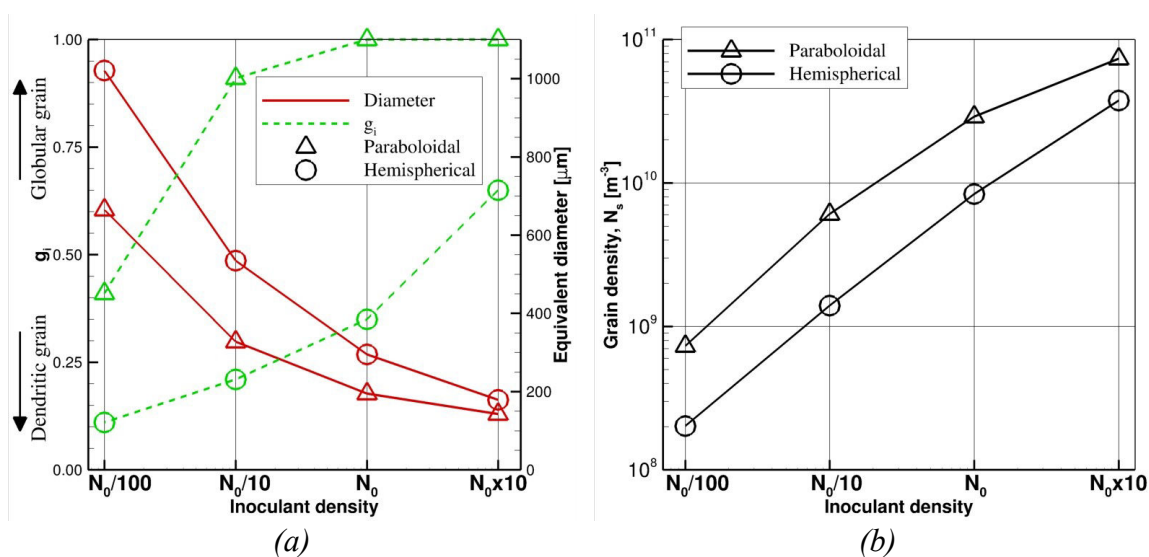


Figure 3.26 : (a) Évolution du diamètre moyen et de la fraction interne au blocage en fonction du niveau d'affinant, (b) Densité moyenne finale des grains en fonction du niveau d'affinant. Symbole cercle  $\circ$  pour le modèle hémisphérique et triangle  $\triangle$  pour le modèle paraboloidal.  $N_0 = 1\text{kg/t}$ .

Avec le modèle de pointe hémisphérique, les grains sont déjà dendritiques même pour le plus fort niveau d'affinant, et deviennent encore plus dendritiques lorsque le niveau diminue. Avec le modèle globulaire, seul le plus faible taux d'affinant mène à une réduction significative de la fraction interne.

Quand on diminue l'inoculation de 10 à 0,01 kg/t, la surfusion maximale dans le lingot augmente de 0,35 K à 0,95 K avec le modèle hémisphérique et de 0,45 K à 2,1 K avec le modèle paraboloidal. C'est une conséquence de la compétition entre germination et croissance. Cependant, même si la surfusion est plus importante, moins de germes sont disponibles, ce qui amène à un nombre de grains moins important et donc à une taille de grains plus grande.

La figure 3.26.b montre l'évolution de la densité moyenne des grains en fonction du niveau d'affinant. La division par 10 du niveau d'affinant n'implique pas une division par 10 de la densité finale des grains. De plus, l'évolution des courbes est légèrement différente pour les deux modèles de pointe. Alors que l'évolution est presque linéaire pour le modèle hémisphérique, lorsque le niveau d'affinant est divisé par 10, la densité des grains est divisée environ par 5 entre chaque palier. L'évolution du modèle paraboloidal est nettement moins linéaire.

Ces résultats mettent en lumière l'importance du couplage entre la germination sur les particules d'inoculant, la cinétique de la croissance des grains et le transport des inoculants et des grains sur l'établissement de la microstructure ([Bedel 2014], [Bedel et al. 2015]).

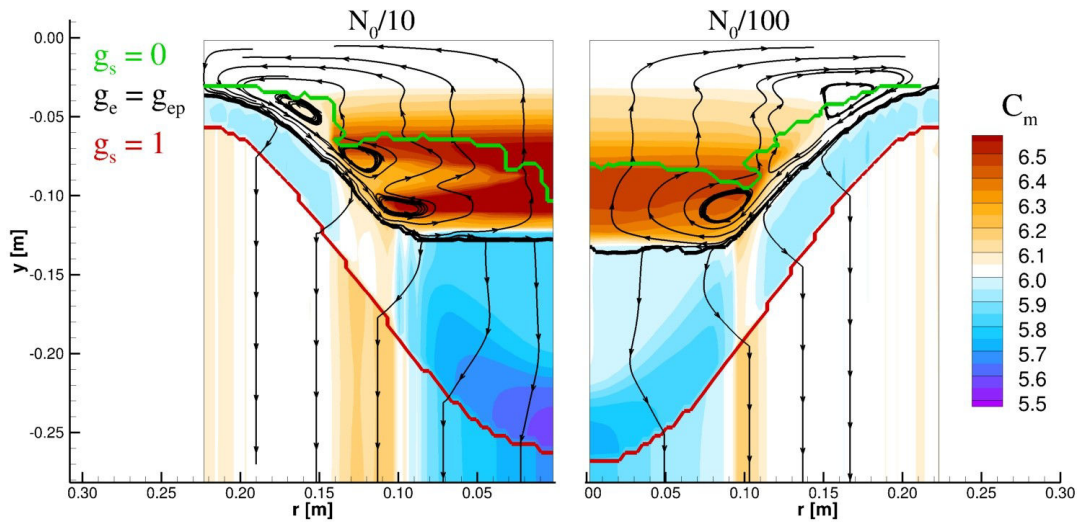


Figure 3.27 : Composition moyenne en cuivre, côté gauche avec  $N_{ino} = N_0/10 = 0,1 \text{ kg/T}$ , côté droit avec  $N_{ino} = N_0/10 = 0,1 \text{ kg/T}$ , obtenue avec le modèle de pointe paraboloidale.

La figure 3.27 montre l'effet de la transition morphologique sur la macroségrégation quand le niveau d'affinant passe de  $N_0/10$  à  $N_0/100$  avec le modèle paraboloidale. Lorsque le niveau d'affinant est égal à  $N_0/10$ , en comparaison avec la figure 3.23.a (cas  $g_{ep} = 0,20$ ), les ségrégations sont accentuées dans toute la billette. Comme les grains sont plus gros et toujours très globulaires ( $\bar{g}_i \approx 0,9$ ), l'effet du mouvement du solide sur la ségrégation est plus important. Mais, dès que les grains deviennent dendritiques, pour le cas où  $N_0/100$   $\bar{g}_i \approx 0,4$ , les ségrégations sont diminuées. L'évolution de la composition selon l'axe  $y$  au centre de la billette à  $r = 0$  est retranscrite sur la figure 3.28. Alors que la ségrégation est déjà négative après le blocage ( $C_m \approx 5,8$ ) quand  $N_0/10$ , figure 3.28.a, la ségrégation devient presque négligeable quand  $N_0/100$ , figure 3.28.b. La transition morphologique a diminué l'influence de l'empilement des grains sur la macroségrégation. Cependant, les structures d'écoulement sont restés relativement proches entre les deux cas.

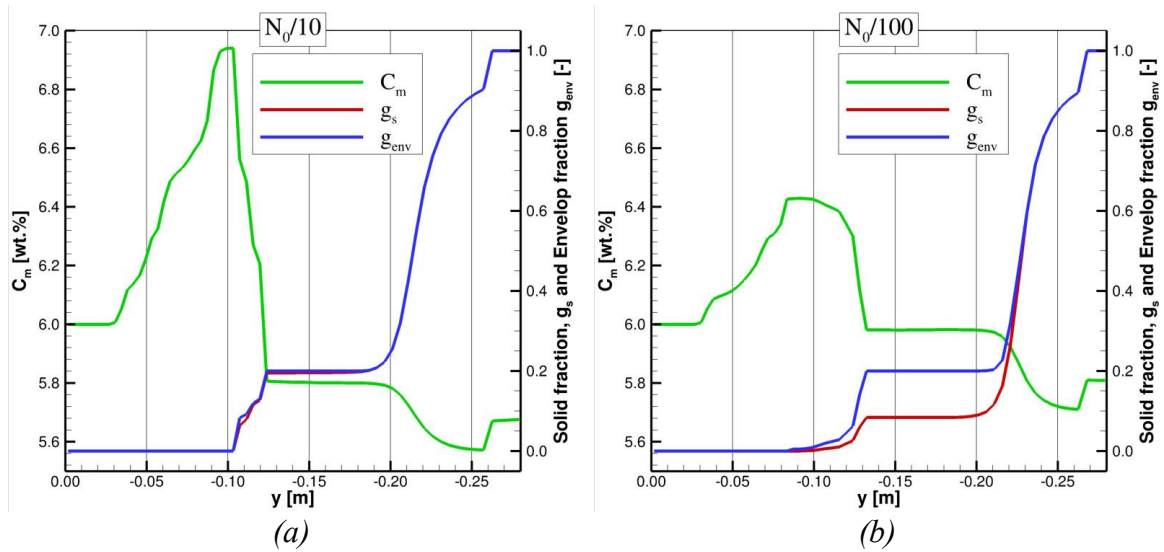


Figure 3.28 : Évolution de la composition moyenne  $C_m$ , de la fraction solide  $g_s$  et de la fraction d'enveloppe  $g_e$  selon l'axe  $y$  à  $r = 0$  m, pour le cas où le niveau d'affinant a été divisé par : (a) 10 et (b) 100. Résultats obtenus avec le modèle de pointe paraboloidale.

L'impact du niveau d'affinant sur le profil de macroségrégation est illustré sur la figure 3.29 pour les quatre niveaux d'affinant et pour les deux modèles de pointe. L'évolution du profil en fonction du niveau d'affinant est cohérente avec l'évolution de la microstructure, figure 3.26.b.

Avec le modèle de pointe paraboloidale, les grains deviennent plus gros et restent globulaires pour  $N_0 \times 10$  à  $N_0/10$ , entraînant une augmentation de la macroségrégation. L'intensité de la ségrégation est diminuée seulement à  $N_0/100$ , lorsque les grains deviennent dendritiques, comme discuté précédemment.

Avec le modèle de pointe hémisphérique, l'intensité des ségrégations est réduite dès que le niveau d'affinant est diminué. La nature très dendritique des grains limite fortement l'influence de mouvement des grains sur la formation de la macroségrégation. Pour le cas avec la plus faible inoculation  $N_0/100$ , la fraction solide lors du blocage est seulement de l'ordre de 1 à 2 %. Pour les plus faibles inoculations,  $N_0/10$  et  $N_0/100$ , la ségrégation est extrêmement faible sur l'ensemble du profil. L'ensemble des phénomènes responsables de la macroségrégation pris en compte dans notre modèle (mouvement des grains, convection naturelle et liée au retrait) s'annule.

La modification de la morphologie des grains, de globulaire à plus dendritique, induit un abaissement de l'intensité des ségrégations dans l'ensemble de la billette. Cette tendance est cohérente avec l'observation des deux billettes de Vreeman et al. et sa prédiction en ordre de grandeur avec notre modèle est correcte en utilisant le modèle de pointe paraboloidale lorsque la densité en particules affinantantes est modifiée de  $N_0$  à  $N_0/100$ .

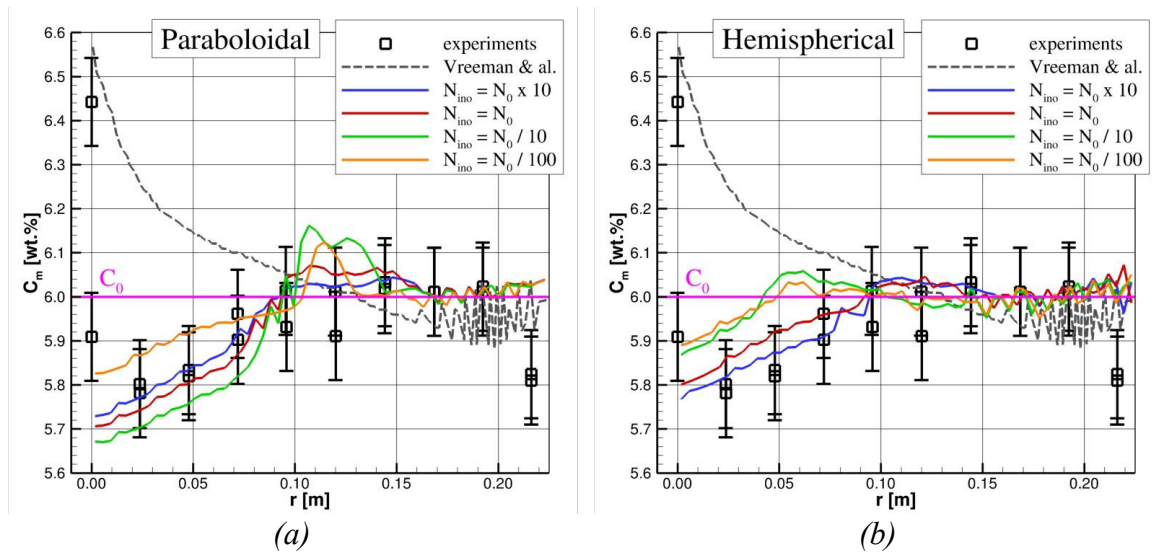


Figure 3.29 : Comparaison entre le profil expérimental et numérique (ligne pointillée) obtenue par Vreeman et al. dans le cas de la billette non inoculée pour (a) le modèle de pointe paraboloidale et pour (b) le modèle de pointe hémisphérique.

## 2.5. Conclusions de l'étude sur l'influence de la morphologie des grains

Nous avons réalisé une étude détaillée sur l'influence de la morphologie des grains équiaxes sur l'établissement de la macroségrégation dans des billettes en coulée semi-continue. Pour parvenir à ce travail, nous nous sommes basés sur des résultats expérimentaux publiés par Vreeman et al. Ces résultats concernaient la macroségrégation dans deux billettes Al-Cu. Ces deux billettes avaient la particularité d'avoir été coulées sous les mêmes conditions, mais avec ou sans affinant. Les deux profils finaux de macroségrégation ont montré une ségrégation plus faible dans le cas où la billette n'était pas affinée.

En comparant les prédictions du modèle aux résultats expérimentaux, dans le cas de la billette affinée, nous avons mis en évidence une meilleure estimation de la ségrégation et du champ thermique lorsque les grains simulés étaient globulaires. Ces grains globulaires étaient obtenus avec le modèle de pointe paraboloidale, alors que le modèle de pointe hémisphérique prédisait des grains dendritiques.

Afin de modéliser la billette affinée, nous avons diminué le niveau d'affinant. Cette diminution d'affinant a eu pour effet une transition morphologique vers des grains plus dendritiques. Cette transition s'est accompagnée d'une réduction de la macroségrégation dans la billette, reproduisant ainsi les observations expérimentales de Vreeman et al. Cette atténuation de la ségrégation s'est révélée être liée principalement à des fractions de solide plus faibles dans la couche des grains empilés et donc à un affaiblissement de l'intensité de la sédimentation de la phase solide.

### **3. Conclusions du chapitre**

Dans ce chapitre nous nous sommes attachés à modéliser la structure de solidification obtenue en coulée semi-continue.

La première partie de ce chapitre s'est attachée à étudier plus particulièrement l'effet de l'amélioration du modèle de mouvement des grains et du choix de la fraction de blocage. L'amélioration du modèle, qui prend maintenant en compte l'inertie des grains ainsi que l'effet des collisions de grains, joue un rôle relativement marginal lorsque la fraction de blocage est faible. Cependant les effets des collisions entre les grains sur le mouvement de la phase solide sont importants lorsque la fraction de blocage est supérieure et modifient l'écoulement dans le marais. La première partie de ce chapitre s'est poursuivie par une étude de l'influence de la fraction de blocage sur l'écoulement et aussi sur la macroségrégation. Nous avons vu que la fraction de blocage modifiait l'écoulement et la macroségrégation dans le marais. Cependant, la macroségrégation finale ne se retrouve que légèrement modifiée par la fraction de blocage. Pour le cas que nous avons utilisé, il y a une compensation entre les différents phénomènes responsables de la macroségrégation.

La deuxième partie de ce chapitre était consacrée à l'étude de la solidification de billettes d'aluminium-cuivre. Nous avons choisi ce cas car des résultats expérimentaux sont disponibles dans la littérature [Vreeman et al. 2002]. Le premier objectif de cette étude était de savoir si le modèle était capable de reproduire la thermique et la macroségrégation relevées expérimentalement. Après confirmation de cette capacité, nous avons étudié l'effet de la modification du niveau de particules affinantes. Cette étude avait pour objectif d'analyser l'effet d'un changement morphologique des grains sur la macroségrégation. Le modèle est capable de reproduire le changement de morphologie (de grains globulaires vers des grains plus dendritiques) ainsi que l'effet diminuant sur la macroségrégation dans la billette lorsque l'on diminue le niveau de particules affinantes.

## Chapitre 4 : La porosité dans les alliages d'aluminium

Ce chapitre est consacré à la compréhension du développement de la porosité en coulée semi-continue. Pour réaliser cette étude nous allons utiliser le modèle de porosité développé précédemment (Chapitre 2 p. 78).

La première partie de ce chapitre a pour objectif une validation qualitative du modèle avec une comparaison par rapport à des résultats, expérimentaux sur une plaque d'alliage Al-4,5wt.%Mg-0,7wt.%Mn. Puis, dans une deuxième partie, l'influence de l'ensemble des paramètres du modèle sera étudiée en détail.

### 1. La porosité dans l'alliage Al-Mg-Mn

L'objectif de cette première partie est de valider qualitativement les résultats du modèle de porosité. Pour cela, nous avons appliqué le modèle au résultat de la solidification d'une plaque d'alliage Al-4,5wt.%Mg-0,7wt.%Mn. Nous disposons de plusieurs résultats expérimentaux qualitatifs pour cet alliage, de plusieurs micrographies ainsi que d'une caractérisation par réponse aux ultrasons.

Les dimensions de la plaque sont les suivantes : 510 mm d'épaisseur pour 2280 mm de largeur. L'expérience a été réalisée avec un alliage inoculé avec du TiC ( $0,4\text{kg.t}^{-1}$ ), la surchauffe était de  $\sim 60\text{ }^{\circ}\text{C}$  et la vitesse de tirage de  $0,7\text{ mm.s}^{-1}$ .

#### 1.1. Présentation des résultats expérimentaux

Deux types de résultats expérimentaux sont disponibles : la figure 4.1 représente une réponse aux ultrasons obtenue à travers une plaque d'alliage Al-Mg-Mn et la figure 4.2 montre trois micrographies obtenues aux trois emplacements indiqués sur la figure 4.1.b (**[C]**, **[B]**, **[D]**). Nous nous intéresserons seulement au régime permanent, figure 4.1.b, et non au pied de coulée.



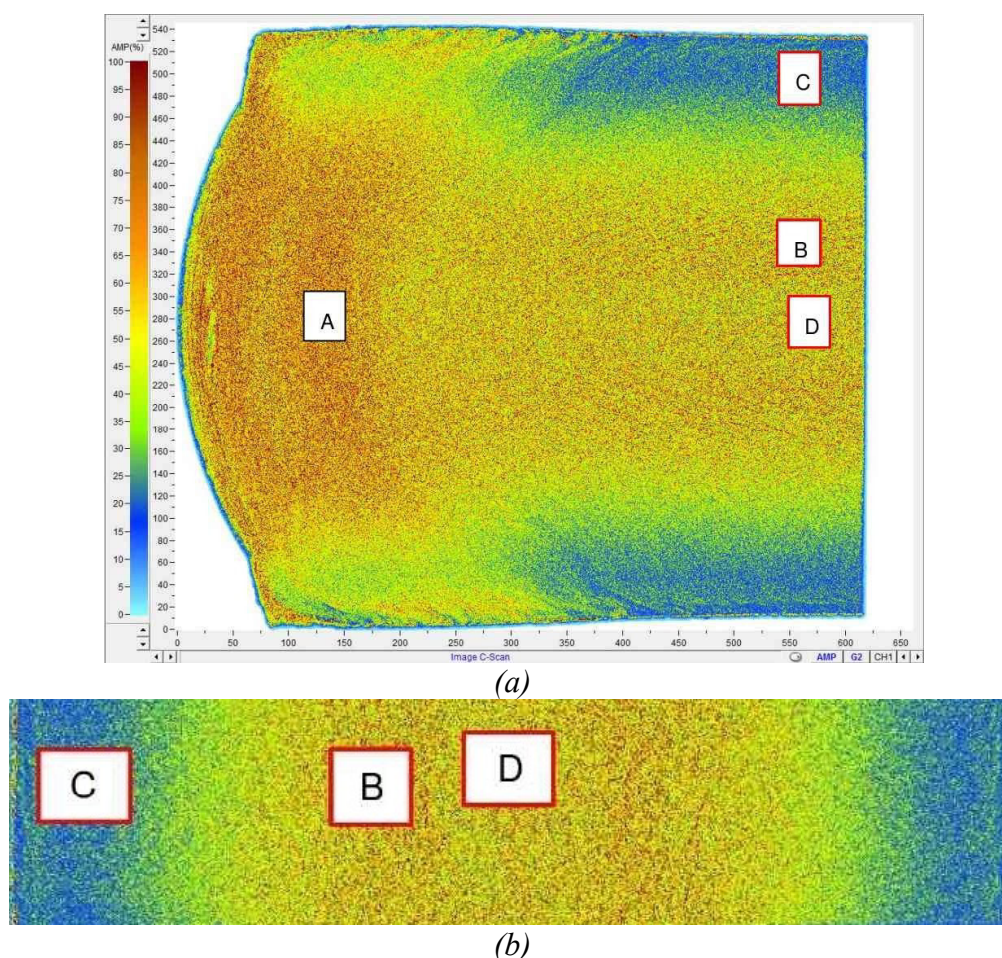
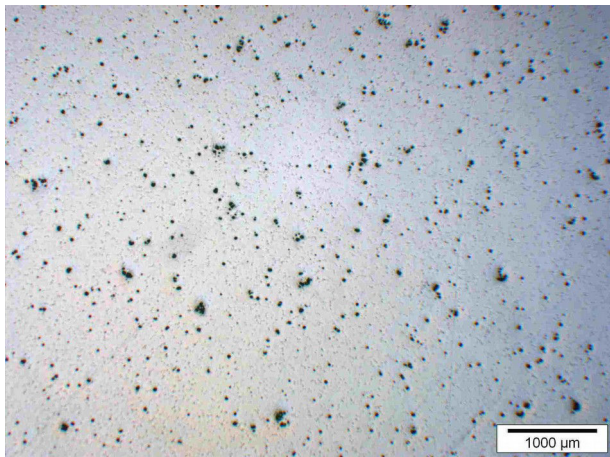


Figure 4.1 : Relevé expérimental d'une réponse aux ultrasons dans une plaque Al-Mg-Mn de 510 mm d'épaisseur, (a) dans les premiers 600 mm de la plaque et (b) lorsque le régime permanent est atteint.

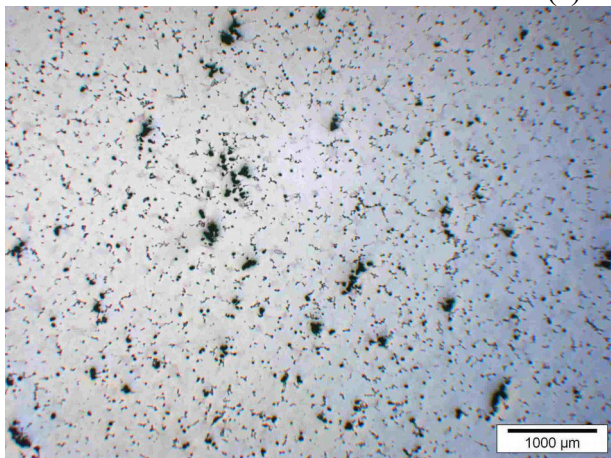
Il a été montré dans plusieurs expériences que l'intensité des réponses aux ultrasons varie en fonction de la quantité de défauts dans la plaque ([Adler et al. 1986] [Chen 2009]). Cependant, plusieurs phénomènes peuvent être à l'origine d'une réponse aux ultrasons, les cavités, comme les pores, mais aussi la présence d'oxydes ou bien de composés intermétalliques. Néanmoins, on a plusieurs fois démontré une relation directe entre fraction volumique de porosité et l'intensité de la réponse aux ultrasons. On remarque sur la figure 4.1 que le signal ultrasons est maximum dans les zones **[A]** (pied de plaque) et **[B]**.

La figure 4.2 vient confirmer la présence de porosité dans l'alliage. On peut observer de la porosité sur les trois micrographies, avec pour chacune des micrographies une porosité différente. La porosité semble plus régulière sur **[C]** et beaucoup plus grossière sur **[B]** et **[D]** avec une porosité qui semble plus importante sur **[B]**.



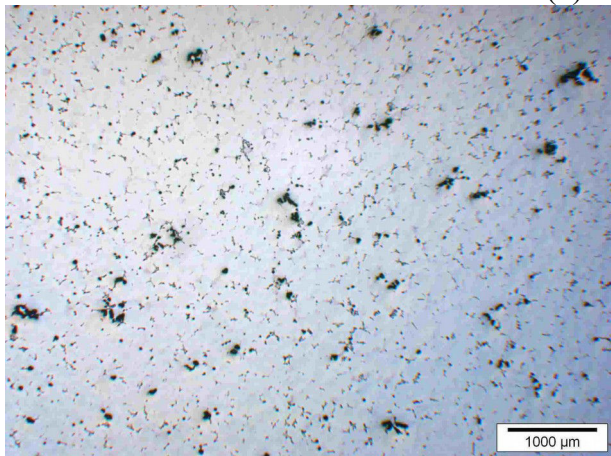
(a)

Emplacement : **[C]**  
Taille maximum des pores : 160 μm



(b)

Emplacement : **[B]**  
Taille maximum des pores : 600 μm



(c)

Emplacement : **[D]**  
Taille maximum des pores : 500 μm

Figure 4.2 : Micrographies aux emplacements, (a) **[C]**, (b) **[B]** et (c) **[D]** indiqués sur la figure 4.1.

## 1.2. Simulation de la solidification

Nous avons utilisé la même stratégie de simulation que celle utilisée dans le chapitre 3. La largeur étant fortement supérieure à l'épaisseur nous prenons l'hypothèse que la solidification est bidimensionnelle, et nous prenons donc un domaine de simulation en 2D.

Le maillage est composé de 67 mailles sur l'axe X et 186 mailles sur l'axes Y afin de garantir des mailles de 2 mm x 2 mm dans la zone pâteuse et dans la zone liquide.

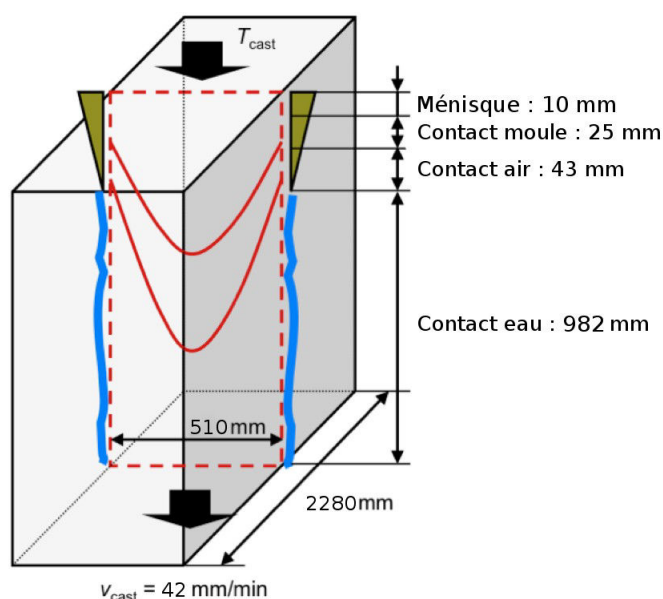


Figure 4.3 : Schématisation de la plaque étudiée, 2280 mm de large pour 510 mm d'épaisseur.

La vitesse d'alimentation en aluminium liquide est uniforme sur toute la partie supérieure. Cette vitesse est calculée à partir d'un bilan de masse à chaque itération et prend donc en compte le retrait de solidification. Les conditions limites utilisées sont de type Fourier,  $\varphi = h(T_{peau} - T_{ext})$ . L'extraction de chaleur par le moule est divisée en trois parties. En dessous du moule, l'extraction de chaleur par l'écoulement d'eau est décrite par la corrélation de Weckman et Niessen [1982]. Le tableau 4.1 résume les données utilisées concernant le chemin de solidification, les données thermophysiques et les paramètres du procédé. Le calcul des données thermophysiques a été réalisé grâce à une modélisation avec un modèle Calphad.

Les grains sont considérés comme globulaires dans cette étude et seulement deux phases sont prises en compte au niveau microscopique.

La distribution en taille des particules affinantes a été obtenue à partir de la loi établie par

Tronche [2001] pour des particules de type TiC pour  $0.4 \text{ kg.t}^{-1}$ . La figure 4.4.b montre la distribution utilisée à partir de cette loi, 10 classes ont été discrétisées avec un pas de surfusion constant et égal à  $0,15 \text{ }^\circ\text{C}$ . La masse volumique de la phase solide est considérée constante ( $\rho_s = 2484 \text{ kg.m}^{-3}$ ) et l'approximation de Boussinesq est utilisée pour la phase liquide, figure 4.4.a. La masse volumique de la phase liquide est donc considérée constante ( $\rho_{l,ref} = 2308 \text{ kg.m}^{-3}$ ) sauf dans le terme de flottabilité ( $\rho_k g_k \vec{g}$ ) des équations de conservation de quantité mouvement. Les masses volumiques de la phase liquide et de la phase solide étant constantes dans les bilans de masse, le retrait est constant et vaut :

$$\beta_{sl} = \frac{\rho_s - \rho_{l,ref}}{\rho_s} = 0,071 .$$

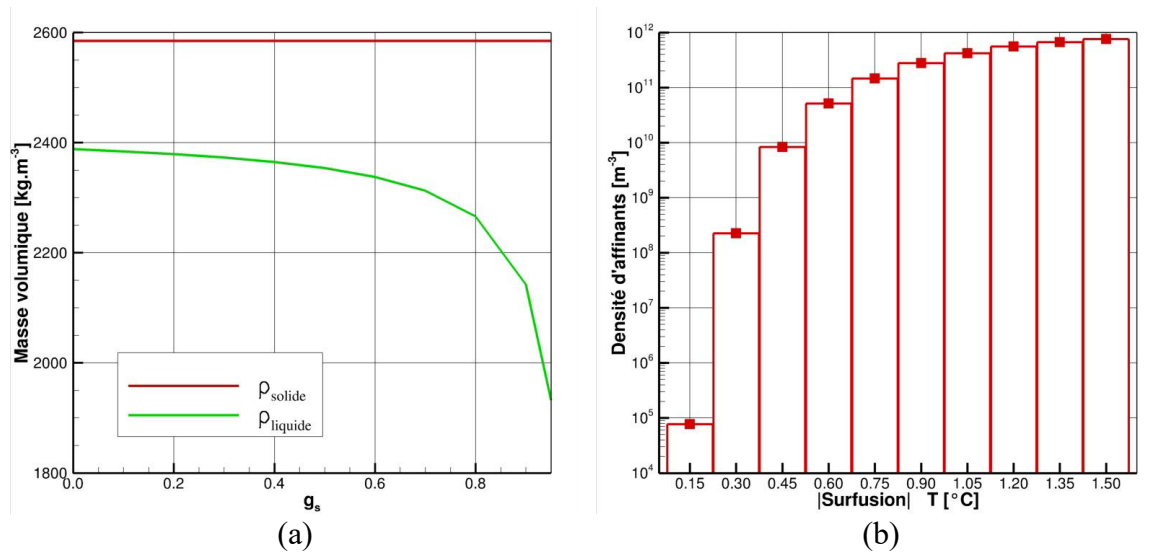


Figure 4.4 : (a) Évolution des masses volumiques du liquide et du solide pour un alliage Al-Mg-Mn avec le chemin de solidification calculé suivant le modèle de Scheil-Gulliver. (b) Discrétisation de la distribution de taille des particules affinantes.

Tableau 4.1 : Données thermophysiques et paramètres utilisés pour l'étude (données obtenues à partir d'une simulation Calphad).

<i>Diagramme de phase</i>		
Température de fusion de l'aluminium pur	677,8	°C
Température eutectique	529,69	°C
Pente du liquidus Mg   Mn	-4,94   -1,67	°C.wt% <sup>-1</sup>
Coefficient de partition Mg   Mn	0,228   0,75	-
<i>Données thermophysiques</i>		
Chaleur spécifique	1184	J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le solide	165	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Conductivité thermique dans le liquide	74,119	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
Chaleur latente de fusion	3,92.10 <sup>5</sup>	J.kg <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion thermique, $\beta_T$	-3,877.10 <sup>-5</sup>	°C <sup>-1</sup>
Coefficient d'expansion solutale, $\beta_C$ Mg   Mn	-4,63.10 <sup>-3</sup>   -6,57.10 <sup>-3</sup>	Wt% <sup>-1</sup>
Viscosité dynamique	1,2.10 <sup>-3</sup>	Pa.s
Coefficient de diffusion dans le liquide, Mg   Mn	7,7.10 <sup>-9</sup>   7,0.10 <sup>-10</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de diffusion dans le solide, Mg   Mn	1,8.10 <sup>-12</sup>   7,0.10 <sup>-16</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
Coefficient de retrait $\beta_{sl} = (\rho_s - \rho_l) / \rho_s$	7,61	%
Longueur caractéristique pour la perméabilité	50	µm
Coefficient de Gibbs-Thompson	1,9.10 <sup>-7</sup>	K.m
<i>Paramètres du procédé</i>		
Température de coulée	700	°C
Vitesse de coulée	0,7	mm.s <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, ménisque	0	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, Contact moule	5000	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Coefficient de transfert, Contact air	30	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
Wekman & Niesen, $Q^{eau}$	1,11.10 <sup>-2</sup>	m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup>
Fraction de blocage, $g_{ep}$	0,2	-
<i>Paramètres pour la porosité</i>		
Tension interfaciale, $\gamma_{llg}$	0,9	J.m <sup>-2</sup>
Coefficient de partage de l'hydrogène, $k_H$	0,07	-
Facteur de morphologie, $m$ (voir Éq. (2.63), Chap. 2, p.82 )	2	-
Coef. de diffusion. de $\underline{H}$ dans le liquide, $D_{\underline{H}}^l$	2,44.10 <sup>-7</sup>	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
<i>Paramètres numériques</i>		
Taille du domaine (X · Y)	0,255 · 1,1	m · m
Nombre de mailles, X · Y	67 · 186	-

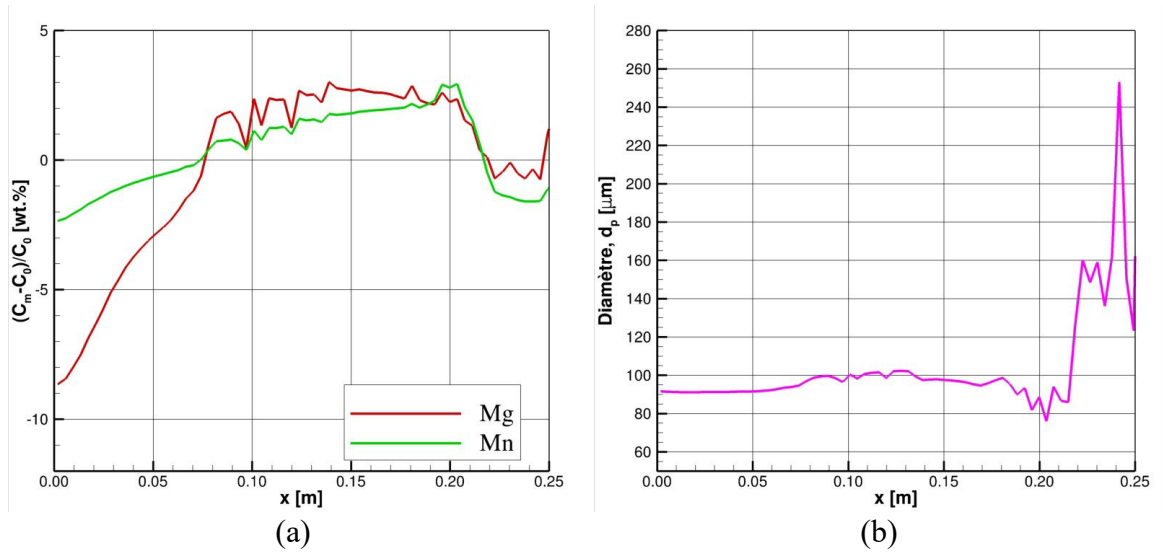


Figure 4.5 : (a) Profil de macroségrégation de l'alliage Al-Mg-Mn modélisé comme un ternaire (Al-Mg-Mn). (b) Diamètre équivalent des grains pour l'alliage Al-Mg-Mn.

La figure 4.5 montre le résultat de la simulation de la solidification obtenu avec le logiciel SOLID, avec la figure 4.5.a la macroségrégation et la figure 4.5.b la taille des grains.

La figure 4.5.a représente la macroségrégation radiale, le magnésium ségrège plus que le manganèse, ce qui est logique car le magnésium a un coefficient de partage plus faible. La courbe de ségrégation montre une zone appauvrie au centre de la plaque ( $0 \rightarrow 0,7$  m), une zone enrichie positivement ( $0,7 \rightarrow 0,21$ ) et une zone faiblement appauvrie près de la paroi.

La courbe, figure 4.5.b, montre l'évolution du diamètre équivalent des grains sur l'épaisseur. On observe une taille de grains beaucoup plus importante près de la paroi. Sur le reste du profil, la taille des grains est relativement homogène et oscille entre 90 et 110  $\mu\text{m}$ . La taille plus importante des grains près de la paroi provient vraisemblablement d'une surestimation par le logiciel Solid. En effet, près du moule, la solidification est très rapide, ce qui rend difficile la description de la solidification. La taille des mailles doit être trop grossière ou bien les pas de temps de calcul trop importants pour capturer les phénomènes rapides qui se produisent près de la surface.

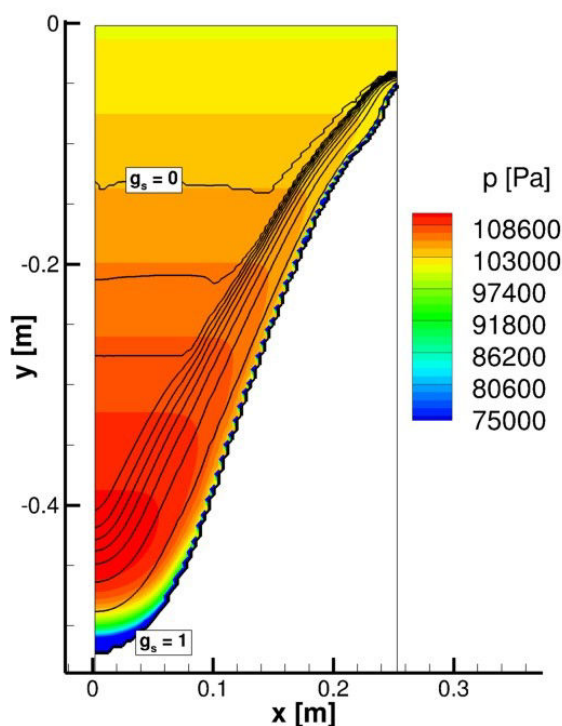


Figure 4.6 : Champ de pression totale lors de la coulée de la plaque de Al-Mg-Mn.

La figure 4.6 montre le champ de pression totale pendant la solidification de la plaque d'alliage Al-Mg-Mn. Pendant la solidification, la pression totale augmente avec la pression métallostatique, puis diminue près de la fin de la solidification avec la perte de charge engendrée par l'écoulement dans le milieu poreux. Cette perte de charge est significative seulement vers le solidus et au centre de la plaque. Cependant, la variation de pression maximale reste faible,  $\sim 30000$  Pa, et n'est pas assez significative pour influencer le développement de la porosité.

### 1.3. Simulation de la porosité

#### 1.3.1 Évolution de la solubilité

La figure 4.7 montre l'évolution de la solubilité en fonction de la fraction solide. Le chemin de solidification a été calculé à partir de la loi de Scheil-Gulliver. La pression est considérée comme constante pour ce calcul. Le magnésium a tendance à augmenter la solubilité de l'hydrogène, alors que le manganèse a tendance à la baisser, comme l'indique le tableau 1.5 page 17. L'évolution de la composition de l'hydrogène dissout est aussi indiquée pour une composition initiale,  $C_H^0$ , de  $4,5 \cdot 10^{-5}$  wt. %. L'évolution de la

composition en hydrogène dissout a été calculée en utilisant la loi des bras de levier.

La figure 4.7 montre aussi la composition d'équilibre calculée par rapport à trois rayons critiques de germination, 10, 25 et 50  $\mu\text{m}$ . Plus le rayon de germination est important, plus la germination est avancée dans la solidification. Pour une composition initiale en hydrogène dissout,  $C_H^0$ , de  $4,5 \cdot 10^{-5}$  wt. %, la fraction solide au moment de la germination se déplace de 0,36 à 0,56 lorsque le rayon de germination diminue de 50 à 10  $\mu\text{m}$ .

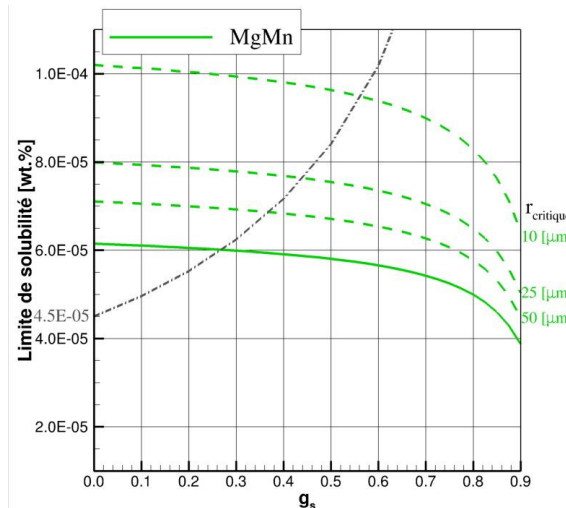


Figure 4.7 : Évolution de la solubilité (ligne verte pleine), de la condition de germination pour différents rayons critiques (lignes vertes pointillées) et de la composition en hydrogène dissout dans la phase liquide (lignes noires pointillées). Calculs obtenus avec la loi de Scheil-Gulliver pour le chemin de solidification et la relation des bras de levier pour l'évolution de l'hydrogène dissout.

### 1.3.2 Résultat relatifs à la porosité

Les germes pour la porosité représentent le potentiel de germination dans le liquide. Le modèle développé considérant la germination comme un dirac, la densité de pore finale est donc directement reliée à ce paramètre, comme précisé dans le chapitre 2 section 2.1.3 page 80. Dans la première partie de ce chapitre, les germes se déplacent avec la phase liquide et sont injectés sur toute la partie supérieure du lingot.

Afin d'obtenir la macroségrégation de l'hydrogène, figure 4.8, nous avons réalisé un calcul sans germination de la porosité. On peut voir que la macroségrégation de l'hydrogène suit relativement la même tendance que pour les éléments d'alliage, figure 4.5.a, avec une plus forte ségrégation négative au centre et une ségrégation positive sur le reste du profil. Cependant, la macroségrégation en hydrogène est trop faible pour



influencer la prédiction de la porosité.

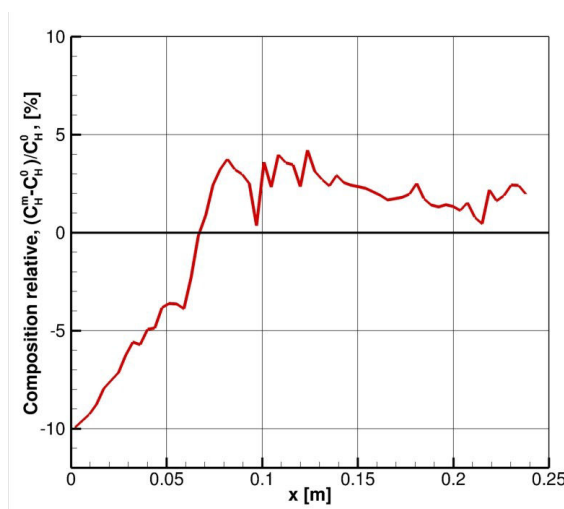


Figure 4.8 : Profil de macroségrégation de l'hydrogène (calcul réalisé sans apparition de la porosité).

La figure 4.9 montre l'évolution de la porosité dans la plaque. Nous avons à gauche la fraction de pore et à droite le diamètre équivalent des pores en prenant comme paramètres pour les calculs,  $N_{\text{gmr}} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ ,  $r_{\text{crit}} = 25 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $C_{\text{H}}^0 = 4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ . Cette concentration initiale en hydrogène dissout correspond à une concentration que l'on peut retrouver dans la littérature pour un alliage Al-Mg [Nagaumi 2001].

On peut directement observer que la fraction de pores n'est pas homogène sur la plaque. Elle évolue d'environ 0,5 % près de la paroi à près de 1,2 % à  $x \sim 0,1 \text{ m}$ . Le diamètre des pores suit la même tendance avec une évolution du diamètre de 300 à 600  $\mu\text{m}$ . La porosité commence à se former lorsque la fraction solide,  $g_s$ , atteint 0,50. Cette valeur de fraction solide est invariant sur l'épaisseur. Dans les mêmes conditions, la figure 4.7 aurait prévu une germination de la porosité à une fraction solide inférieure, environ 0,44.

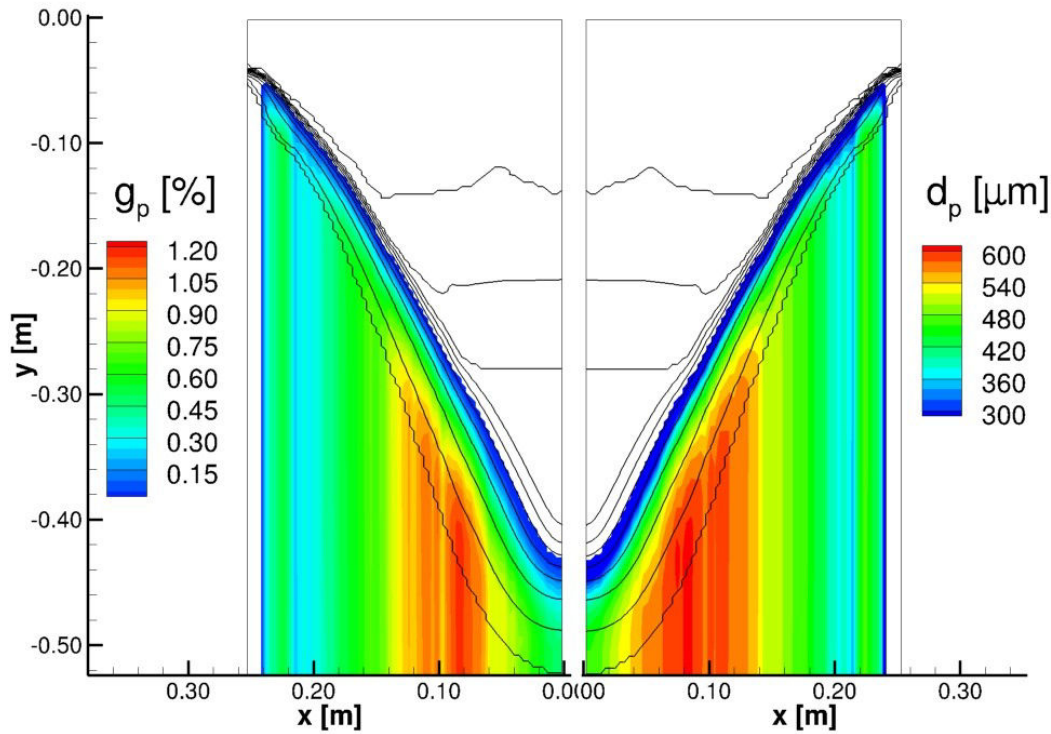


Figure 4.9 : Carte de fraction volumique de porosité,  $g_p$  et carte du diamètre équivalent des pores.  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ ,  $r_{crit} = 25 \text{ } \mu\text{m}$ ,  $C_H^0 = 4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ .

La figure 4.10 montre les profils finaux provenant des cartes de la figure 4.9. Les diamètres des pores révélés par les micrographies, figure 4.2, ont été ajoutés sur le profil figure 4.10.a. Bien que ces diamètres correspondent aux diamètres maximums révélés, on retrouve la bonne tendance avec un diamètre des pores plus important à  $x \sim 0,10$ , un peu moins important au centre et plus faible près de la paroi.

Le profil de réponse aux ultrasons a également été superposé aux figures 4.10.a et b. Pour superposer les profils, nous avons considéré que la réponse maximum aux ultrasons correspondait au maximum de fraction de pores, figure 4.10.a, ou au maximum du diamètre des pores. Le rôle de la taille des pores pour une même fraction volumique peut modifier la réponse aux ultrasons. Si l'on observe la figure 4.10.a, on peut observer que le profil de porosité est bien retranscrit, sauf au centre de la plaque où la porosité prédite par le modèle serait significativement surestimée. Si l'on considère la figure 4.10.b, dans laquelle réponse aux ultrasons est comparée aux diamètres des pores, on observe une bonne prédiction de la tendance sur la taille des pores au centre de la plaque, avec cependant une surestimation de la taille des pores plus près de la paroi.

L'évolution de la morphologie de la porosité est représentée sur la figure 4.10.c. La morphologie prédite des pores est plus sphérique près de la paroi et plus tortueuse au centre de la plaque. Comme pour l'évolution de la taille des pores, ces observations sont cohérentes avec les observations expérimentales.

À travers ce premier résultat on peut observer que le modèle a tendance à prédire une diminution de la porosité au centre de la plaque. Cette diminution est aussi observée sur les résultats expérimentaux. Nous verrons que ce profil de porosité résulte d'une situation où l'hydrogène contenu dans les pores n'est pas à l'équilibre par rapport à l'hydrogène dans la phase liquide. Dans cette situation, la diffusion de l'hydrogène et le temps de croissance des pores jouent un rôle très important dans la formation de la microporosité.

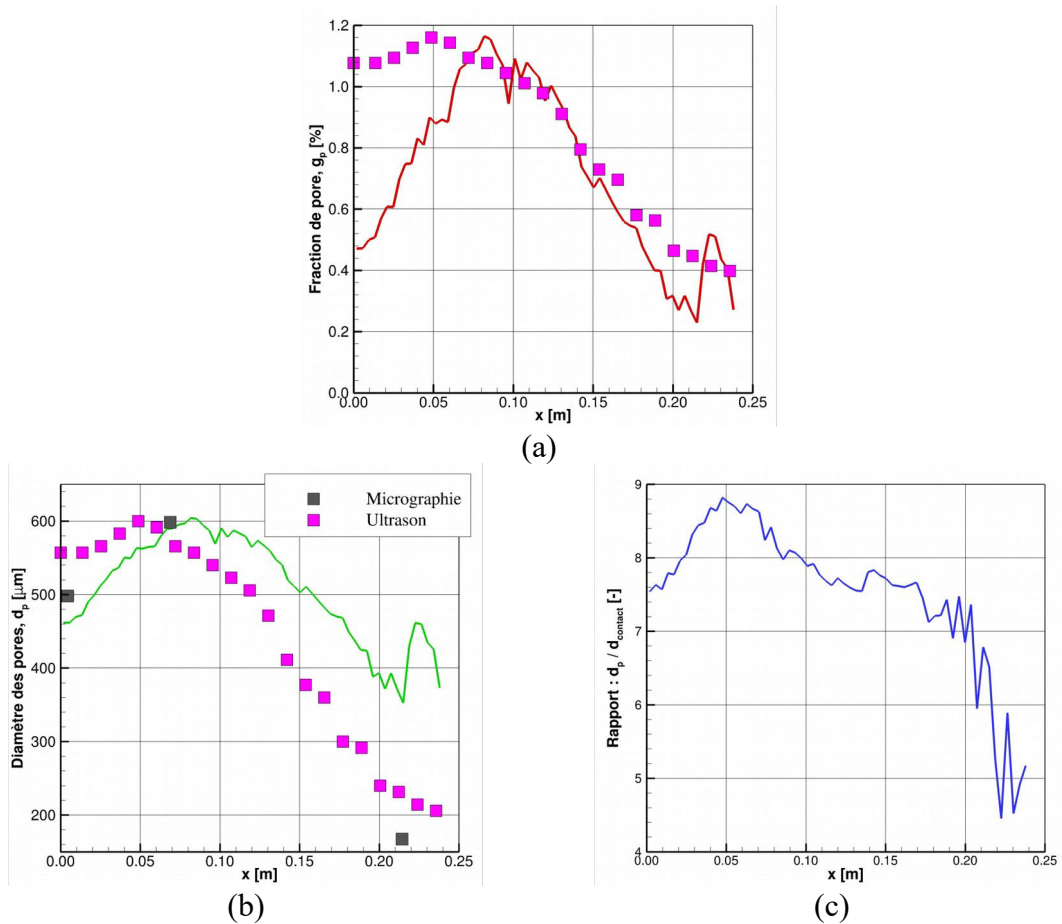


Figure 4.10 : Profils finaux pour ; (a) fraction de pore  $g_p$ , (b) diamètre équivalent sphériques des pores  $d_p$ , et (c) rapport morphologique.  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ ,  $r_{crit} = 25 \mu\text{m}$ ,  $C_H^0 = 4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ .

La figure 4.11 présente une première étude en fonction des différents paramètres du modèle de porosité. Les figures 4.11.a et b montrent l'évolution de la porosité pour trois concentrations initiales en hydrogène dissout. Les figures 4.11.c et d montrent l'évolution de la porosité pour trois densités de germes. Les figures 4.11.e et f. montrent l'évolution de la porosité pour trois rayons critiques de germination. Pour chaque étude, un paramètre est modifié en conservant les deux autres identiques.

La concentration initiale a un impact très important sur la porosité finale. Cependant, le

profil de porosité a la même allure entre les trois concentrations initiales bien que l'effet d'échelle du graphique donne au cas  $C_H^0 = 1,5 \cdot 10^{-5}$  wt. % une apparente homogénéité.

L'augmentation du nombre de germes, donc du nombre de pores, modifie le profil de porosité. Une augmentation du nombre de pores tend à rendre le profil plus homogène. Cette tendance est particulièrement visible sur les profils du diamètre équivalent. On peut aussi noter qu'une augmentation du nombre de germes a tendance à faire augmenter la fraction de pore finale. Nous verrons dans la deuxième partie de ce chapitre que l'inhomogénéité du profil est liée à la diffusion de l'hydrogène dans les pores. Lorsque la densité de pores est faible, l'hydrogène dans les pores n'est pas à l'équilibre par rapport à l'hydrogène dissout dans la phase liquide. Lorsque la densité de pore est importante,  $N_{\text{gmr}} > 10^9 \text{ m}^{-3}$ , la diffusion de l'hydrogène est favorisée et il y a équilibre entre l'hydrogène dans les pores et dans la phase liquide. Dans cette situation, le profil de porosité tend à être plus homogène.

Le rayon critique de germination ne modifie pas le profil de porosité. Cependant, une faible valeur de celui-ci diminue globalement la porosité. Avec un rayon critique plus faible, la porosité apparaît plus tard pendant la solidification, les pores ont donc moins le temps de se développer.

Une étude plus approfondie de l'influence des paramètres et leurs implications physiques est réalisée dans la partie suivante de ce chapitre.

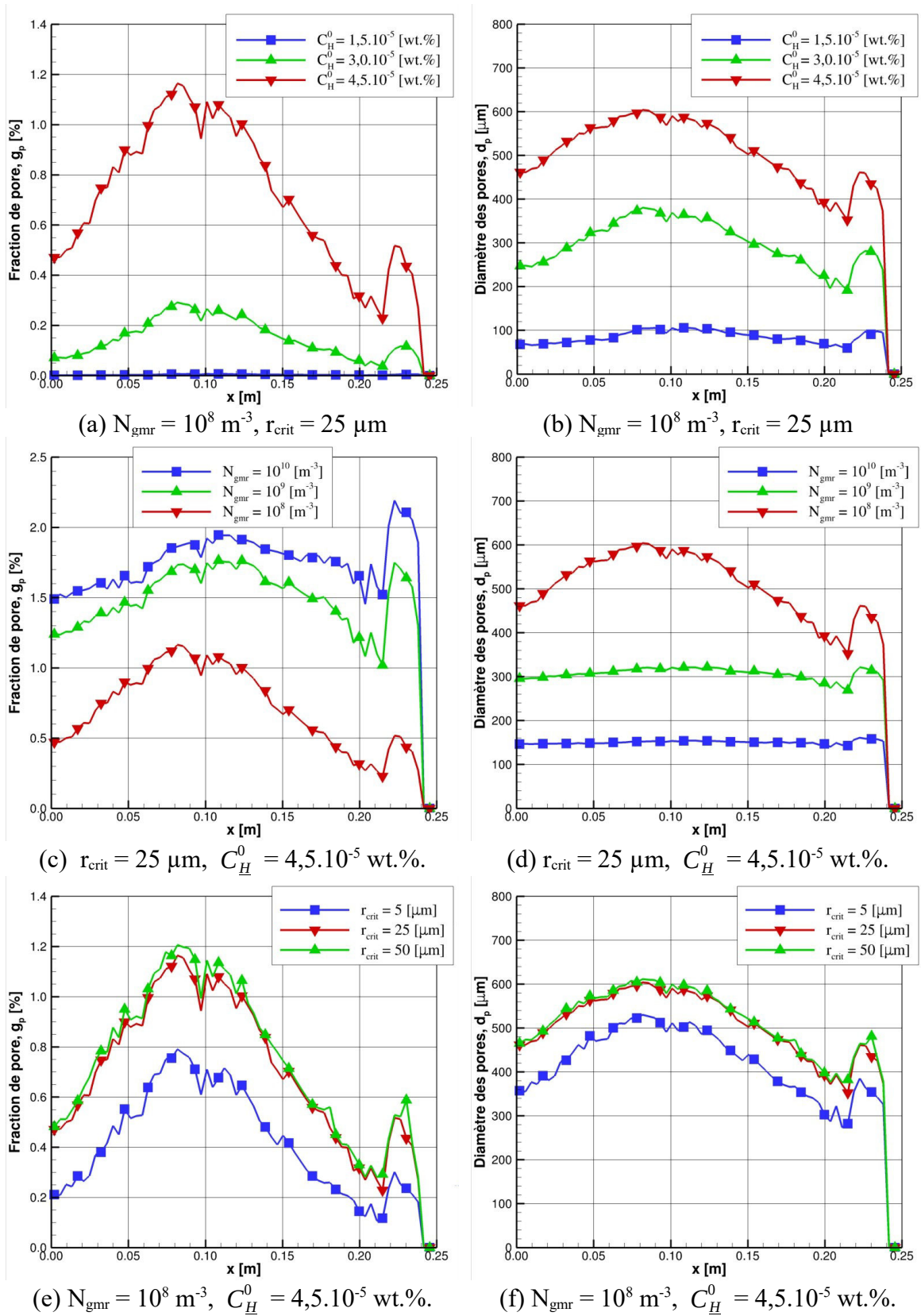


Figure 4.11 : Évolution de la porosité pour différents paramètres du modèle de porosité.

#### 1.4. Conclusion sur la validation du modèle

Dans la première partie de ce chapitre, nous nous sommes attachés à valider qualitativement le modèle de porosité que nous avons développé dans le chapitre 2. Pour réaliser cette validation nous avons comparé les résultats d'une première étude par rapport aux résultats expérimentaux que nous avons à notre disposition. Ces résultats concernaient un alliage Al-Mg-Mn avec une carte de réponse aux ultrasons ainsi que des micrographies.

Le modèle s'est révélé capable de reproduire les tendances observées expérimentalement, avec une répartition non homogène de la porosité. En effet, expérimentalement, on observe une porosité qui décroît près de la surface avec un maximum au  $2/3$  demi-épaisseur et non pas au centre de la plaque. Le modèle est capable de reproduire cette tendance de la porosité, avec néanmoins une surestimation de la porosité au centre de la plaque.

Ce profil particulier de porosité est lié au temps de diffusion de l'hydrogène dans les pores. La variation du temps de solidification dans l'épaisseur de la plaque induit une variation du temps de croissance des pores.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous verrons l'influence des paramètres du modèle sur la cinétique de croissance des pores.

## 2. Étude numérique de la formation de la porosité

Dans cette partie, nous allons étudier le développement de la porosité dans l'alliage Al-Mg-Mn de manière approfondie. Nous avons réalisé une étude complète sur les paramètres et les hypothèses du modèle. Cette étude a pour objectif une meilleure compréhension du comportement de la porosité en fonction des conditions de croissance des pores.

### 2.1. Étude paramétrique

Nous allons étudier l'effet de deux paramètres cruciaux du modèle développé,  $N_{\text{gmr}}$  et  $r_{\text{crit}}$ . Ces deux paramètres représentent le potentiel de germination présent dans le liquide. Les sources pour la germination des pores sont méconnues, mais le rôle des oxydes présents dans le liquide a été plusieurs fois mis en évidence.

$N_{\text{gmr}}$  représente la densité volumique de ces germes, le modèle développé considérant la germination comme un dirac, la densité de pores finale est donc directement reliée à ce paramètre.  $N_{\text{gmr}}$  ne représente pas la densité totale des germes mais la densité qui s'activerait lorsque la condition de germination obtenue avec  $r_{\text{crit}}$  est atteinte.

$r_{\text{crit}}$  représente la facilité de germination offerte par les germes. Plus ce rayon est faible, plus la sursaturation nécessaire à l'activation des germes est importante, et donc plus la germination apparaît tard dans la solidification. Plus la germination s'activera tardivement plus la porosité sera réduite. En effet, le temps de croissance disponible pour les pores sera plus faible.

Dans les alliages où la porosité est une préoccupation majeure, un dégazage est effectué afin d'amener la composition initiale en hydrogène dissout à la valeur la plus faible possible. Lors de cette première étude nous fixerons la composition initiale,  $C_{\text{H}}^0$ , à  $4,5 \cdot 10^{-5}$  wt.%. Ce choix de composition initiale est arbitraire, mais représente une valeur relativement importante de gazage.

La plage de variation des paramètres du modèle est décrite dans le tableau 4.2. Nous avons choisi des paramètres en fonctions de leur usage dans la littérature et afin de faire ressortir les différents comportements du modèle de porosité.

Tableau 4.2 : Plage de variation des paramètres du modèle.

$N_{\text{gmr}}$ [ $\text{m}^{-3}$ ]	$10^{10}$	$10^9$	$10^8$	$10^7$	$10^6$
$r_{\text{crit}}$ [ $\mu\text{m}$ ]	5	10	25	50	

### 2.1.1 Descriptions de cas

Nous allons dans un premier temps décrire de manière approfondie la porosité obtenue pour deux cas de l'étude : un cas avec une forte densité de germes,  $N_{gmr} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ , et un rayon critique faible,  $r_{crit} = 5 \text{ }\mu\text{m}$ , (figures 4.12, 4.13, 4.14) puis un cas avec une moins forte densité,  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ , et un rayon critique important,  $r_{crit} = 50 \text{ }\mu\text{m}$ , (figure 4.14, 4.15, 4.16). Nous avons modifié deux paramètres afin de représenter deux conditions extrêmes de germination de la porosité. Nous avons la situation d'une germination tardive d'un très grand nombre de germes et la situation d'une germination précoce d'un plus faible nombre de germes.

La figure 4.12 montre la carte de la fraction de pores et du diamètre équivalent sphérique. La figure 4.13 montre les profils finaux pour les différentes valeurs caractéristiques de la porosité ( $g_p$ ,  $N_p$ ,  $d_p$ , Morphologie). La figure 4.14 représente l'évolution de la porosité suivant l'axe  $y$  à  $x \sim 0,10 \text{ m}$ . La figure 4.14.a représente l'évolution de la fraction de pores ainsi que de la fraction solide, et la figure 4.14.b, l'évolution du diamètre équivalent et des compositions d'équilibres.

Les figures 4.14, 4.15, 4.16 montrent ces mêmes valeurs pour le second cas.

#### Description du cas 1 :

Le cas 1 se distingue par une relative homogénéité du profil de la fraction de porosité et du diamètre équivalent des pores, visible sur la figure 4.13. Le profil de porosité évolue entre 1,25 % et 1,7 % sur l'ensemble de l'épaisseur. Cette homogénéité est confirmée par la figure 4.12.

On peut voir, figure 4.13.a, que la répartition de la densité de pores sur l'épaisseur du produit n'est pas homogène avec moins de pores au centre du lingot. Cependant la différence relative à la valeur moyenne n'excède pas 10 %. Pour cette étude, les germes sont admis par la totalité de la surface supérieure et ils se déplacent avec le liquide. Ce mode d'injection des germes et le mouvement de la phase liquide résultent en une certaine homogénéité de la densité de germes puis de la densité de pores sur l'ensemble de l'épaisseur.

Comme la densité des pores évolue peu, le diamètre équivalent des grains est lui aussi homogène, avec  $d_p \sim 145 \text{ }\mu\text{m}$ . L'indicateur de morphologie reste lui aussi presque homogène sur l'ensemble de l'épaisseur, figure 4.13.b, avec des pores relativement sphériques, l'indice de morphologie est d'environ 2,5.



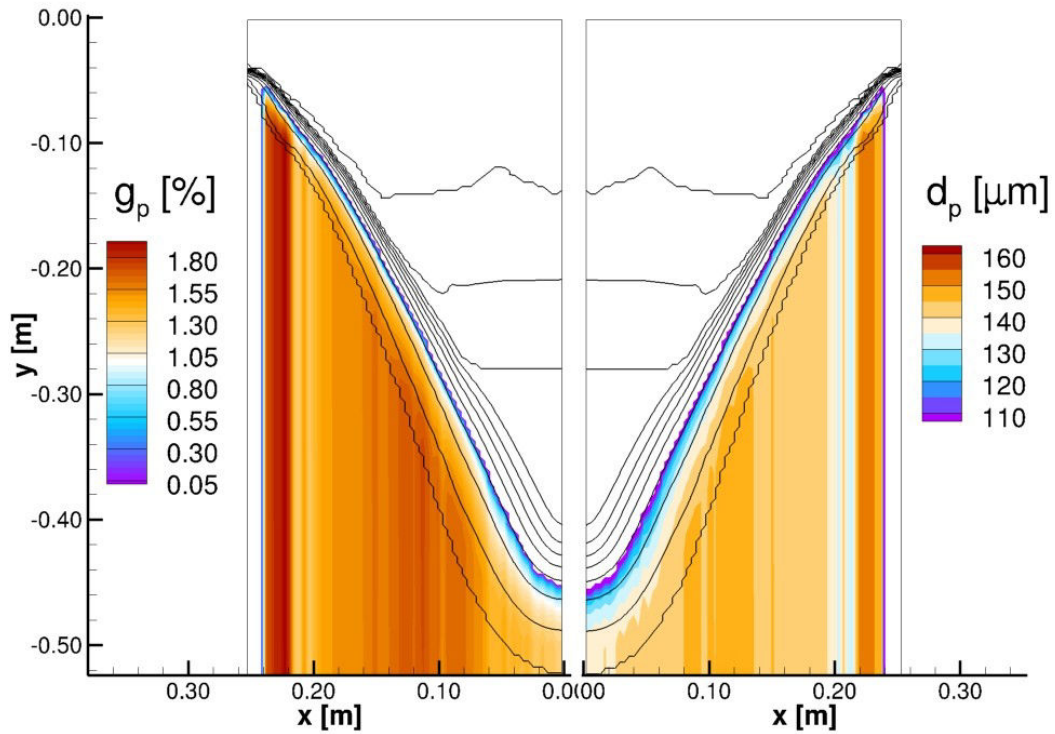


Figure 4.12 : Carte de la fraction de pores  $g_p$  et du diamètre équivalent sphérique  $d_p$  pour  $r_{crit} = 5 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^{10} \text{m}^{-3}$ .

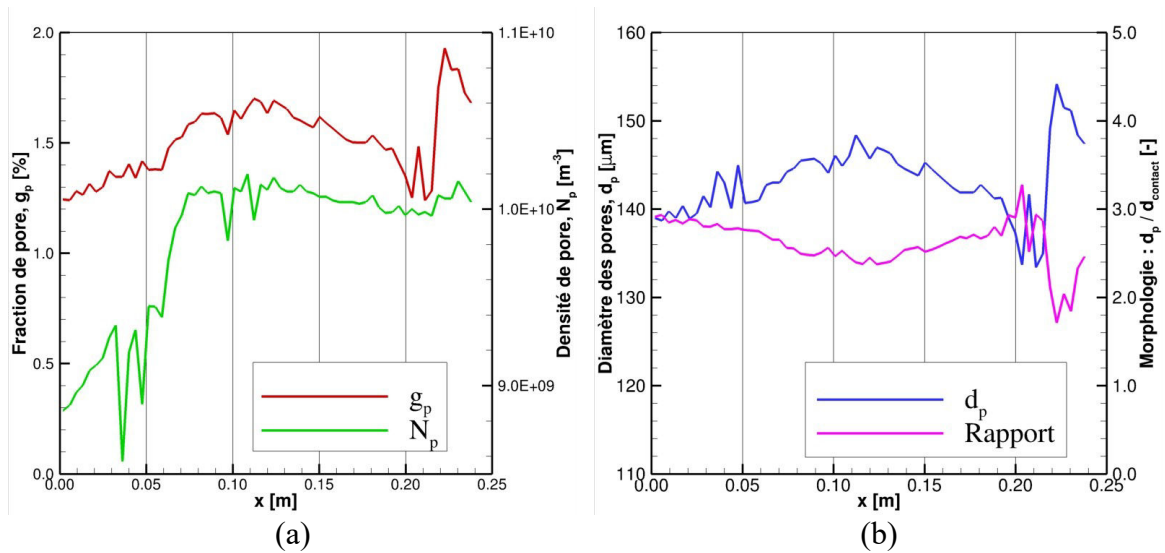


Figure 4.13 : Profils selon  $x$  pour  $r_{crit} = 5 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^{10} \text{m}^{-3}$  ; (a) de la fraction de pores  $g_p$  et de la densité de pores  $N_p$  et (b) du diamètre équivalent sphérique  $d_p$  et du rapport morphologique.

L'évolution de la porosité selon l'axe  $y$  est décrite par la figure 4.14 (à  $x = 0,1 \text{ m}$ ). La figure 4.14.b montre l'évolution de la concentration en hydrogène dissout dans la phase liquide,

$C_H^l$ , et la composition d'équilibre  $X_H^l$ . Lorsque la porosité ne s'est pas encore développée, la composition d'équilibre est calculée par rapport aux germes. Lorsque la concentration en hydrogène dissout devient supérieure à la composition d'équilibre, il y a germination de la porosité et dans ce cas la germination se forme à  $g_s = 0,7$ . Après la germination de la porosité, la composition d'équilibre  $X_H^l$  est calculée par rapport aux pores. Le saut de composition d'équilibre enregistré après la nucléation est lié à la croissance très rapide des pores. Cette rapidité est liée à la mise en équilibre entre la composition en hydrogène dissout et la composition d'équilibre. La courbe  $C_H^l - X_H^l$ , figure 4.14.b, reste très proche de 0. Dans les conditions correspondant à ce cas, avec une densité de pores élevée, la croissance des pores n'est pas limitée par la diffusion de l'hydrogène.

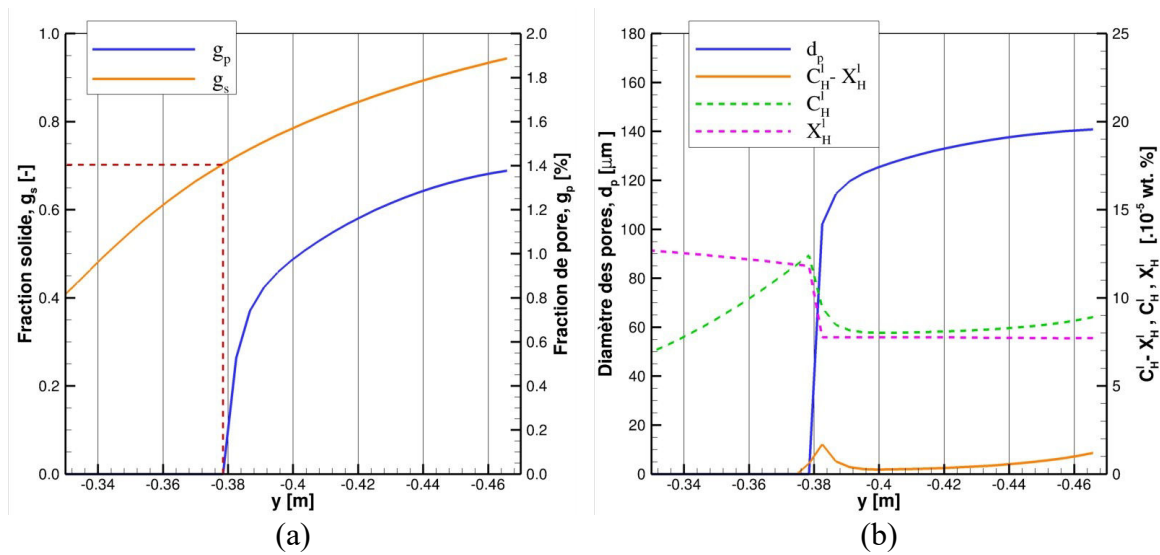


Figure 4.14 : Profils selon  $y$  à  $x = 0.1$  cm pour, (a) la fraction solide  $g_s$  et la fraction de pore  $g_p$  et (b) le diamètre équivalent sphérique des pores  $d_p$ , la composition d'équilibre  $X_H^l$ , la composition en hydrogène dissout dans le liquide  $C_H^l$  et la différence entre chaque :  $C_H^l - X_H^l$  pour  $r_{crit} = 5 \mu m$  et  $N_{gnr} = 10^{10} m^{-3}$ .

Description du cas 2 :

Le cas 2 se distingue du cas 1 par la non homogénéité de la fraction de porosité sur l'épaisseur de la plaque, voir figure 4.15, et les profils de la figure 4.16. Cependant, il est à noter que la répartition de la densité de pores reste identique au cas précédent, les paramètres de germination de la porosité ne modifiant pas la répartition des pores. La fraction de pores passe par un maximum,  $g_p = 1,2$  %, à environ  $x \sim 0,1$  m avec une fraction de pores  $g_p = 0,3$  % près de la paroi et de  $g_p = 0,5$  % au centre. Naturellement, l'évolution du diamètre équivalent des pores suit la même évolution avec un maximum à  $x \sim 0,1$  m.

Le rapport morphologique montre l'évolution suivante : les pores plus tortueux au centre de la plaque (morphologie  $\sim 8$ ) que près de la paroi (morphologie  $\sim 4$ ).

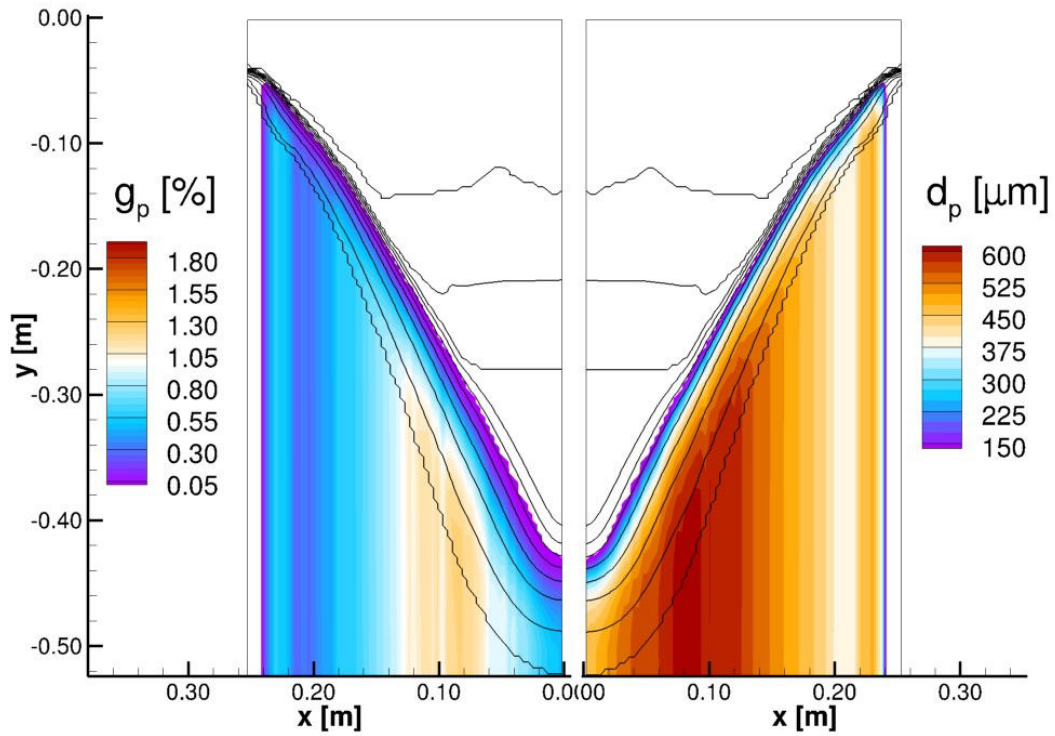


Figure 4.15 : Carte de la fraction de pores  $g_p$  et du diamètre équivalent sphérique  $d_p$  pour  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ .

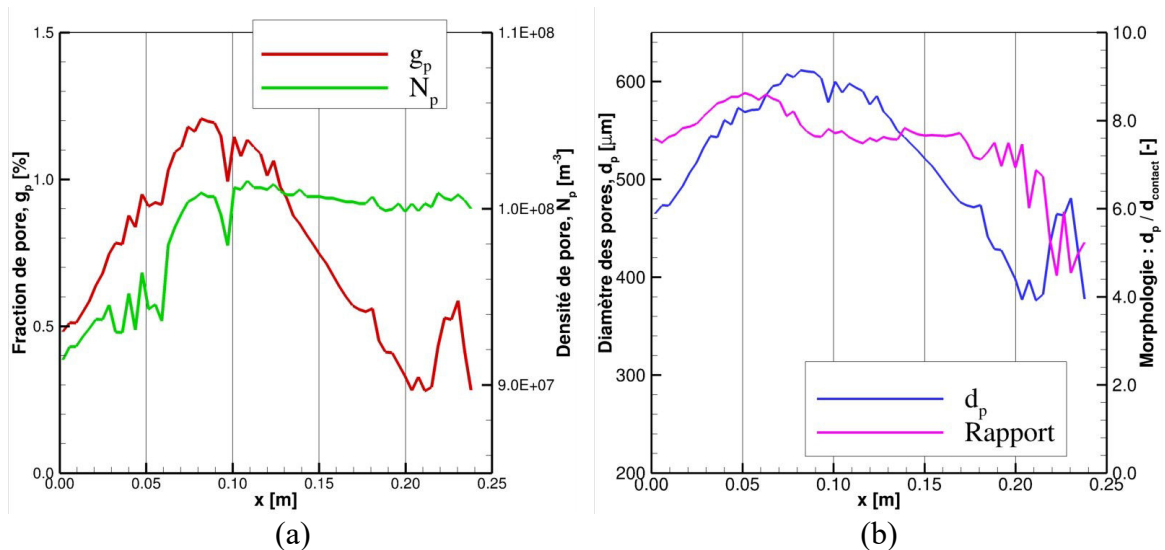


Figure 4.16 : Profils selon  $x$  pour  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$  : (a) de la fraction de pores  $g_p$  et de la densité de pores  $N_p$ , et (b) du diamètre équivalent sphérique  $d_p$  et du rapport morphologique.

La figure 4.17 montre une évolution de la porosité différente par rapport au cas précédent.

D'une part, la porosité intervient plus tôt dans la solidification, à  $g_s \sim 0,5$ . Cette précocité est logique car le rayon critique de germination dans ce cas est plus important, favorisant ainsi la germination.

D'autre part, il n'y a pas d'équilibre entre la composition d'équilibre par rapport aux pores  $X_H^l$  et la composition en hydrogène dissout dans le liquide  $C_H^l$ , la croissance des pores y est donc plus lente. La composition dans le liquide continue d'augmenter, même après la germination des pores. On peut voir que la courbe  $C_H^l - X_H^l$  reste positive et continue de croître après la germination.

La majorité de la courbe  $X_H^l$  de la figure 4.17 est identique à la courbe de la figure 4.14. Dans les deux cas décrits, la pression à l'intérieur des pores est identique. En effet, la pression à l'intérieur des pores est calculée à partir du rayon de courbure par la loi de Laplace. Lorsque les pores sont contraints par la microstructure, ce rayon de courbure dépend exclusivement de la microstructure. La solidification est identique pour les deux cas, donc la courbe  $X_H^l$  est identique lorsque les pores sont contraints par la microstructure. Cette contrainte par la microstructure arrive très tôt, dès les premiers instants de la croissance des pores pour les deux cas décrits.

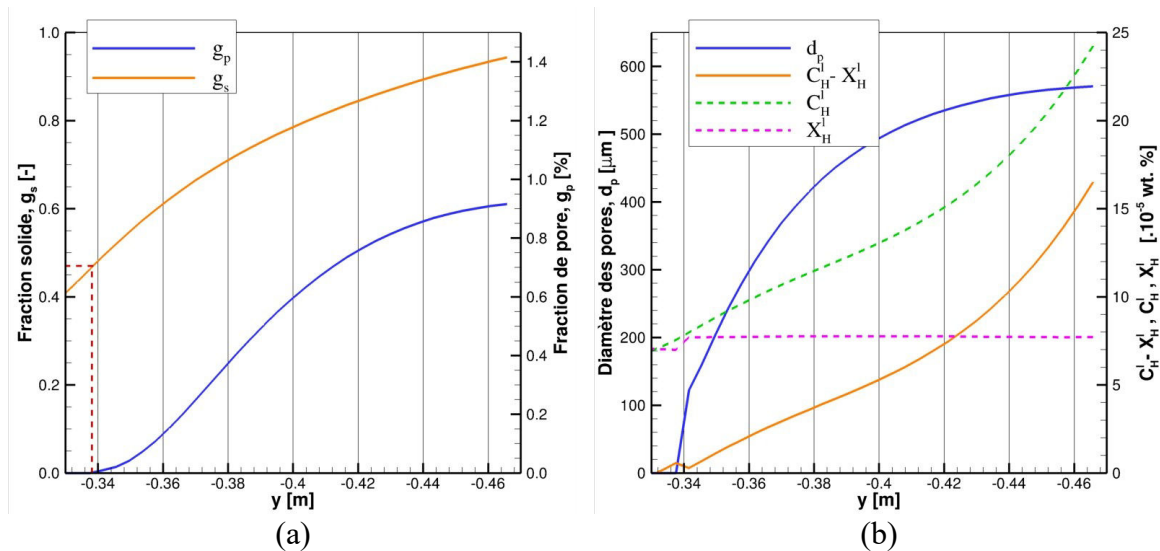


Figure 4.17 : Profils selon  $y$  à  $x = 0,1$  cm pour, (a) la fraction solide  $g_s$  et la fraction de pores  $g_p$  et (b) le diamètre équivalent sphérique des pores  $d_p$ , la composition d'équilibre  $X_H^l$ , la composition en hydrogène dissout dans le liquide  $C_H^l$  et la différence entre les deux  $C_H^l - X_H^l$  pour  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ .

Tableau 4.3 : Comparaison entre les deux descriptions (*premier cas en bleu et deuxième cas en rouge*).

	$g_p$ [%]	$d_p$ [ $\mu\text{m}$ ]	Morpho.	$N_p$ [ $\text{m}^{-3}$ ]
Moyenne	1,52   0,75	143   517	2,6   7,5	$1.10^{10}$   $1.10^8$
Minium	1,24   0,28	133   376	1,5   4,5	$0,85.10^{10}$   $0,92.10^8$
Maximum	1,90   1,21	154   611	3,2   8,6	$1,05.10^{10}$   $1,05.10^8$

Nous avons observé en décrivant ces deux cas d'étude une différence de comportement du modèle de porosité. Pour le premier cas, il y a une répartition homogène de la porosité dans l'épaisseur de la plaque, alors que dans le second cas on observe une inhomogénéité.

Le tableau 4.3 récapitule les différences entre les deux descriptions de cas. On peut observer clairement que la prédiction de la porosité est fortement influencées par les paramètres d'entrée du modèle.

Dans le premier cas, la porosité semble moins sensible aux différences de conditions de solidification, alors que dans le second cas, elle semble y être plus sensible. Le phénomène responsable de cette différence est lié à la diffusion de l'hydrogène vers le liquide. Dans le premier cas, les pores sont à l'équilibre alors qu'ils ne le sont pas dans le deuxième cas.

### 2.1.2 Influence de la vitesse de croissance

Nous venons de voir que le choix des paramètres mène à une modification de la prédiction de la porosité et à une évolution du comportement du modèle. Afin d'étudier cette évolution, nous avons analysé l'influence de la vitesse de croissance des pores. Pour ce faire, nous nous sommes concentrés sur l'évolution de la porosité sur la maille centrale de la simulation de la solidification pour la plaque d'alliage Al-Mg-Mn.

L'équation qui gouverne la croissance des grains (Chap. 2, Éq. (2.62) p. 82) s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) = \frac{S_p^{ech} \rho_l D_H^l (C_H^l - X_H^l)}{l_p (1 - X_H^l)} \quad (4.1)$$

Si l'on remplace la surface d'échange et la longueur de diffusion par leurs modèles respectifs :

$$S_p^{ech} = 4 \pi N_p (r_{equi}^{sph})^2 (1 - g_s)^m, \quad l_p = r_{equi}^{sph} \quad \text{et} \quad r_{equi}^{sph} = \left( \frac{3 g_p}{N_p 4 \pi} \right)^{1/3} \quad (4.2)$$

On obtient pour le calcul de la croissance une équation qui dépend de la densité de pore :

$$\frac{\partial}{\partial t}(g_p \rho_p) = 4 \pi^{2/3} (3g_p)^{1/3} (1-g_s)^m \rho_l N_p^{2/3} D_H^l \frac{(C_H^l - X_H^l)}{1 - X_H^l} \quad (4.3)$$

Nous avons donc manipulé la croissance en modifiant la densité de pores et la valeur de la diffusion. On s'intéresse alors au couple :

$$N_p^{2/3} D_H^l \quad (4.4)$$

Si l'on multiplie ce terme par l'intervalle de temps de croissance des pores  $\Delta t_p^{gr}$  on obtient un nombre adimensionnel de Fourier, qui est représentatif du potentiel de croissance de la porosité par diffusion :

$$Fo = N_p^{2/3} D_H^l \Delta t_p^{gr} \quad (4.5)$$

Dans cette expression, on peut remarquer que  $N_p^{1/3}$  représente la distance entre le centre de chacun des pores.

Nous avons réalisé une série de calculs en modifiant individuellement la densité de pores et le coefficient de diffusion. La figure 4.18 montre la fraction de pores finale en fonction du nombre de Fourier. La courbe montre une forme en escalier avec un palier bas, un palier haut et une forte pente entre les deux.

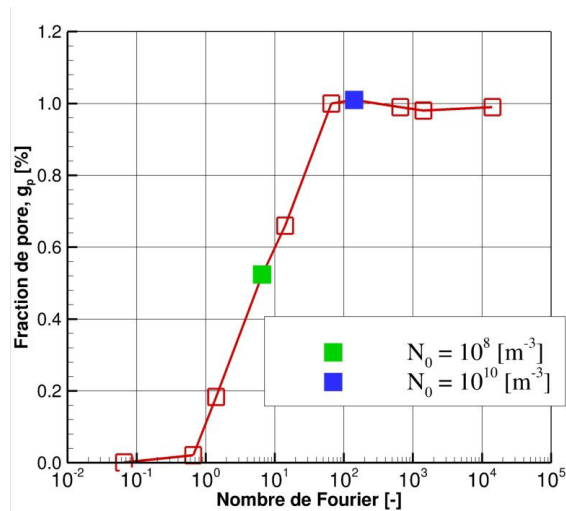


Figure 4.18 : Fraction de porosité en fonction du nombre de Fourier calculé. Le symbole vert représente le nombre de Fourier calculé avec  $N_p = 10^8 m^{-3}$  et le symbole bleu avec  $N_p = 10^{10} m^{-3}$ .

Les deux plateaux tendent à montrer deux régimes de croissance, un régime à l'équilibre et un régime hors équilibre entre la concentration en hydrogène dissout et la composition d'équilibre. Lorsque  $N_p=10^{10} \text{ m}^{-3}$ , comme pour la première description, la fraction de pores obtenue est sur le plateau haut. Dans ce cas, une modification du nombre de Fourier n'entraîne pas une modification sensible de la porosité, au contraire de la fraction de porosité obtenue avec  $N_p=10^8 \text{ m}^{-3}$ , correspondant, au deuxième cas, qui est sur la pente qui sépare les deux plateaux. Dans ce cas une légère modification du nombre de Fourier mène à une modification sensible de la porosité. Ce résultat montre qu'avec une densité de pore,  $N_p=10^8$ , la porosité est très sensible à l'inhomogénéité des conditions de croissance des pores.

En coulée semi-continue, la vitesse de solidification n'est pas identique sur l'épaisseur. Le temps de croissance des pores est donc différent dans la largeur de la plaque. La figure 4.19 montre le nombre de Fourier pour la deuxième description de cas de la section 2.1.1. On peut voir que le nombre de Fourier évolue entre presque 0 et 11 avec un maximum à environ  $x \sim 0,1 \text{ m}$ . Si l'on se réfère à la figure 4.18, ces nombres de Fourier se situent sur la pente qui sépare les deux régimes.

La figure 4.19.b remontre le profil de fraction de porosité déjà illustré sur la figure 4.16.a. On remarque tout de suite la similarité entre le maximum de porosité et le maximum de nombre de Fourier.

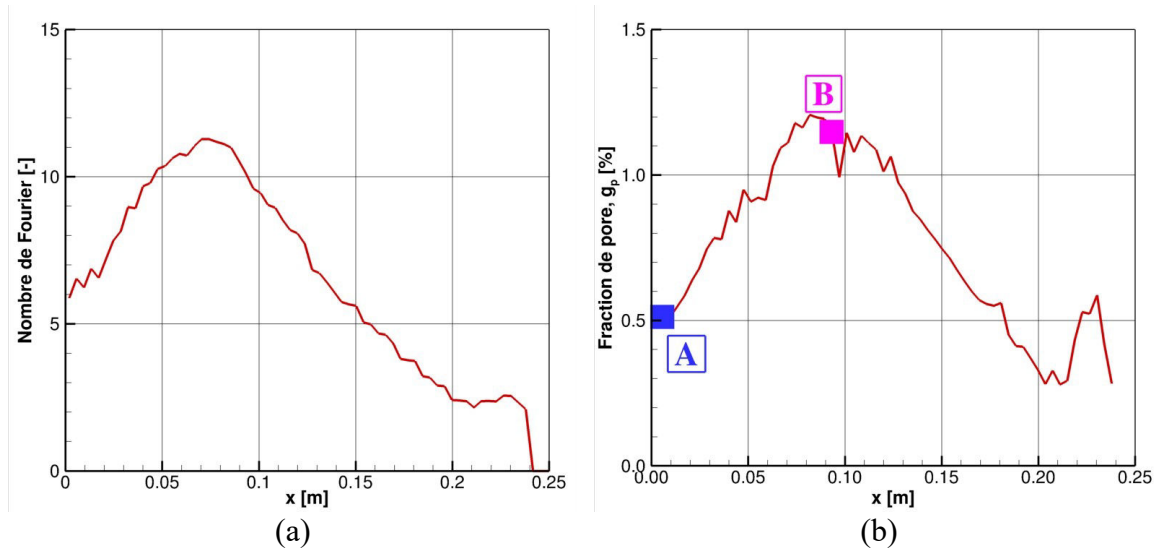


Figure 4.19 : (a) nombre de Fourier calculé avec l'équation (4.5) et (b) fraction de pores, pour  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ .

La figure 4.20 montre l'évolution selon  $y$  de la porosité aux points **A** et **B** de la

figure 4.19.c. En comparant les figures 4.20.a et 4.20.b, nous pouvons facilement voir que le temps de croissance des pores au point **B** est presque doublé par rapport au point **A**, alors que les pores germent à la même fraction solide ( $g_s \sim 0,41$ ). Ce temps de croissance plus faible limite la diffusion de l'hydrogène dissout dans le liquide vers les pores. On peut voir, sur les figures 4.20.c et 4.20.d, que la courbe qui représente la saturation en hydrogène dissout dans le liquide la  $C_H^l - X_H^l$  (courbe orange) monte de façon plus importante au point **A** qu'au point **B**. Le liquide au point **A** est plus saturé en hydrogène dissout car le temps de croissance des pores est plus faible. On peut aussi remarquer que pour le cas où  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ , la porosité n'est pas à l'équilibre, même au point **B**.

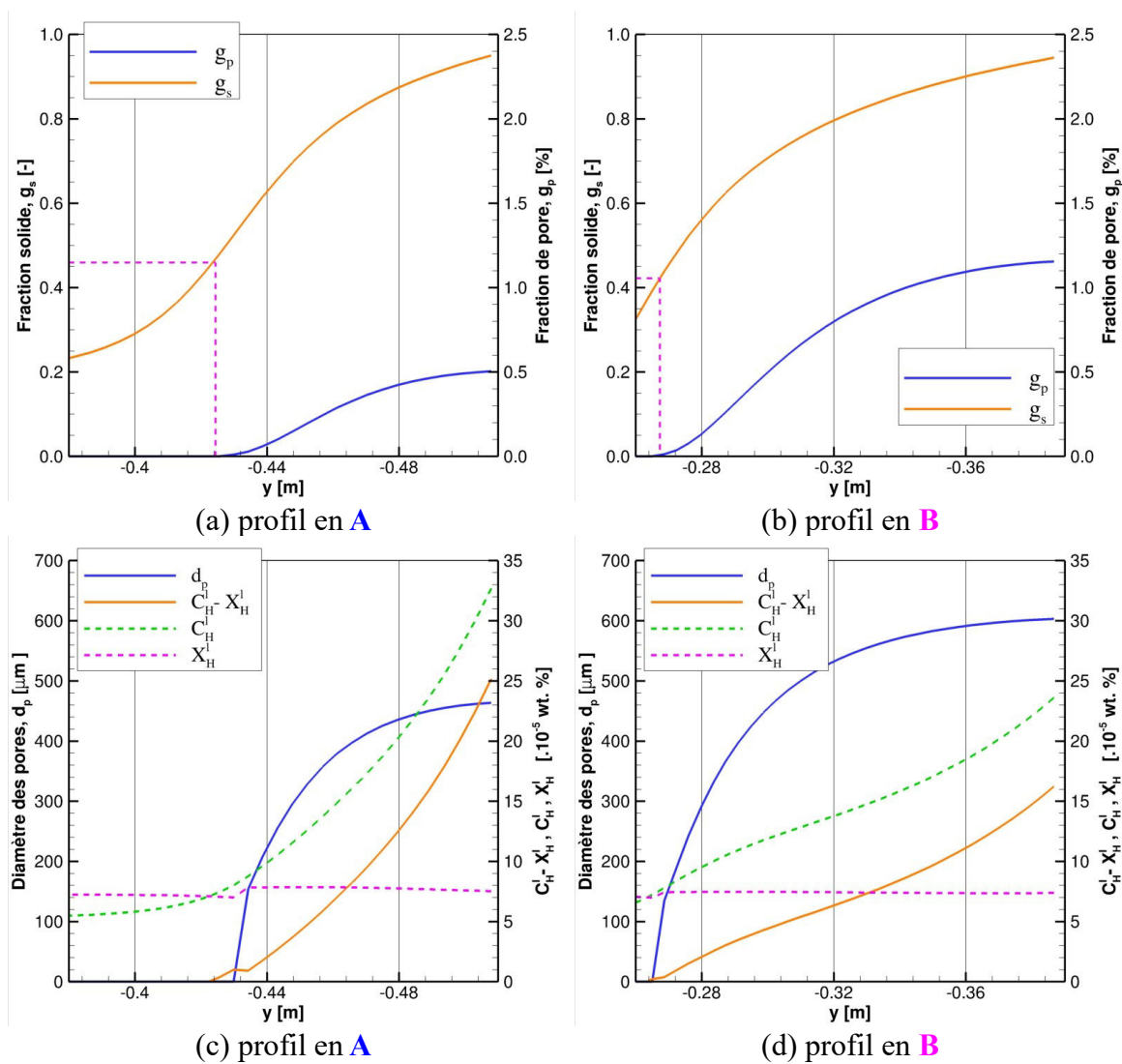


Figure 4.20 : Profils selon  $y$  à **A** et **B** selon la figure 4.19, (a) et (b) la fraction solide  $g_s$  et la fraction de pores  $g_p$  et (c) et (d) le diamètre équivalent sphérique des pores  $d_p$ , la composition d'équilibre  $X_H^l$ , la composition en hydrogène dissout dans le liquide  $C_H^l$  et la différence entre les deux  $C_H^l - X_H^l$ , pour  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ .



Nous allons maintenant étudier en détail l'évolution de la prédiction de la porosité en fonction des trois paramètres principaux du modèle : le rayon critique, la densité de pores et la composition initiale en hydrogène dissout.

### 2.1.3 *Influence sur la porosité en fonction du rayon critique*

La figure 4.21 montre l'évolution de la porosité en fonction du rayon critique,  $r_{crit}$ , pour deux densités de germes initiales,  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$  et  $N_{gmr} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ . La composition initiale,  $C_H^0$ , est toujours fixée à  $4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ . Sur la figure 4.21, les symboles nablans bleues ( $\nabla$ ) représentent la valeur maximale enregistrée sur le profil final, et de la même manière les triangles verts ( $\triangle$ ) représentent le minimum. Les symboles carrés rouges ( $\square$ ) représentent la valeur moyenne et les « barres d'erreurs » représentent deux fois l'écart type par rapport à la moyenne. Ainsi, les courbes représentent la valeur de la porosité mais donnent également des informations sur l'homogénéité du profil. Un faible écart type et un minimum\maximum proche de la valeur moyenne représente un profil homogène sur l'épaisseur de la plaque, alors qu'un écart type important représente un profil inhomogène. Les figures 4.21.a et b donnent des informations sur la fraction de pores et les figures 4.21.c et d informent sur le diamètre équivalent des pores.

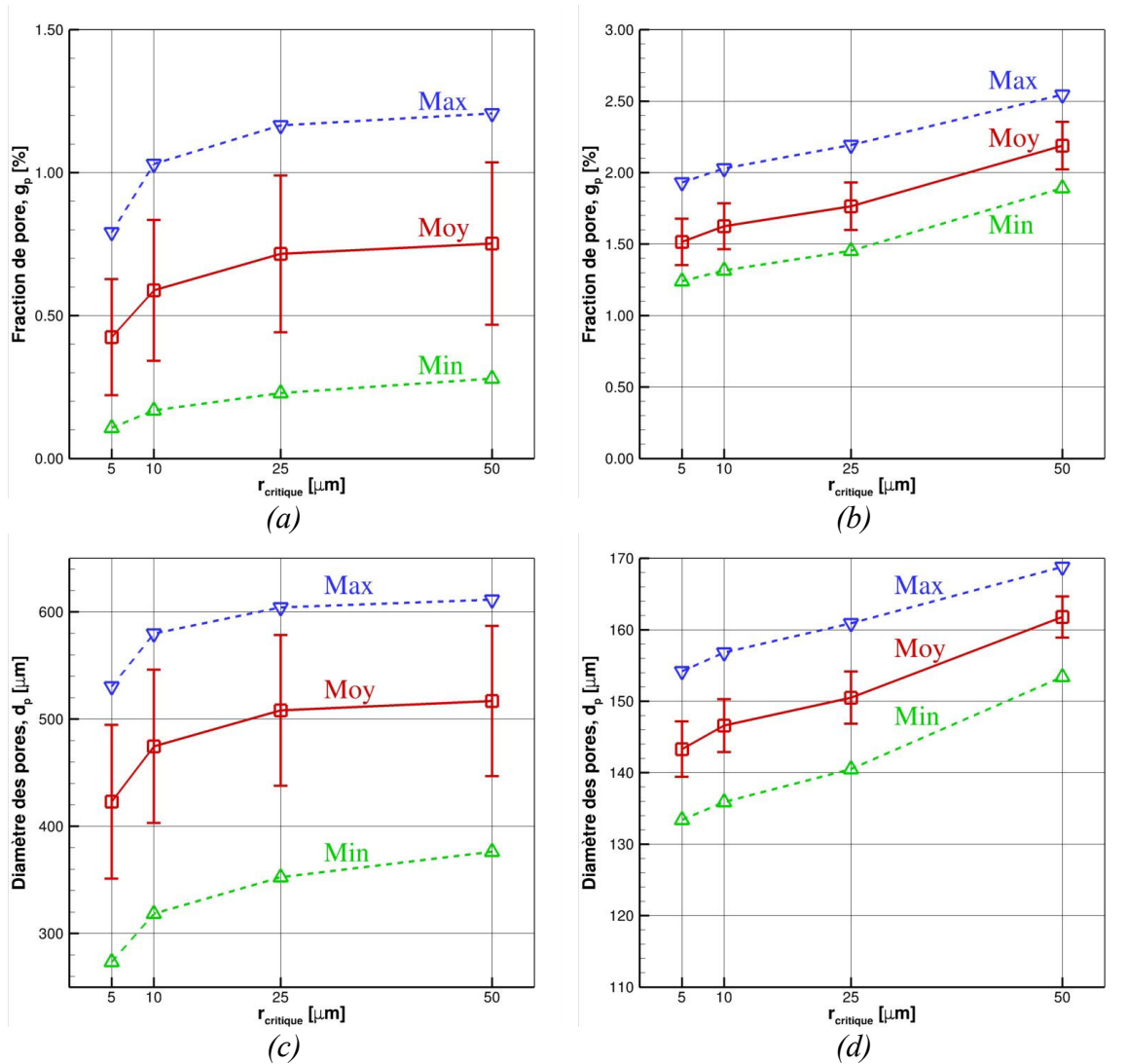


Figure 4.21 : Évolution de la fraction de pores et du diamètre des pores en fonction du rayon critique de germination pour (a),(c)  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$  et (b),(d)  $N_{gmr} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ .

Les cas précédemment discutés, voir 2.1.1, correspondent à  $N_{gmr} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  avec  $r_{crit} = 5 \mu\text{m}$  et  $N_{gmr} = 10^8 \text{ m}^{-3}$  avec  $r_{crit} = 50 \mu\text{m}$ . Dans le premier cas, l'homogénéité de la porosité est retranscrite à travers le faible écart type et une valeur rapprochée de la moyenne, du minimum et du maximum. De même, l'inhomogénéité de la porosité du second cas apparaît avec un écart type important et une forte différence entre la valeur moyenne, minimum et maximum.

D'après l'évolution générale des courbes, un rayon critique de germination faible diminue la taille et la fraction volumique porosité. Cet effet est facilement compréhensible car plus les pores germent tardivement pendant la solidification, moins ils ont de temps pour croître. L'écart type reste relativement invariant en fonction du rayon critique pour

chaque densité de germe. Le moment d'apparition des pores modifie seulement de façon marginale le profil final de porosité.

La figure 4.22.a montre la fraction solide moyenne de germination avec  $N_{\text{gmr}} = 10^8$ . La fraction solide de germination évolue entre environ 0,5 pour le rayon critique le plus important à plus de 0,7 lorsque le rayon critique de germination est le plus faible ( $5\mu\text{m}$ ).

La figure 4.22.b montre l'évolution du rapport morphologique en fonction du rayon critique de germination, pour  $N_{\text{gmr}} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ . Le sens de l'évolution du rapport est logique, cependant l'évolution reste très limitée entre 7,5 et 8. Lorsque les pores germent plus tôt, ils adoptent une morphologie légèrement plus globulaire. Le rayon de contact est plus important car la microstructure est moins établie. La faible évolution de la morphologie est liée à la compensation entre la diminution du rayon de contact et un diamètre final moins important.

Les mêmes conclusions peuvent être apportées avec  $N_{\text{gmr}} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ .

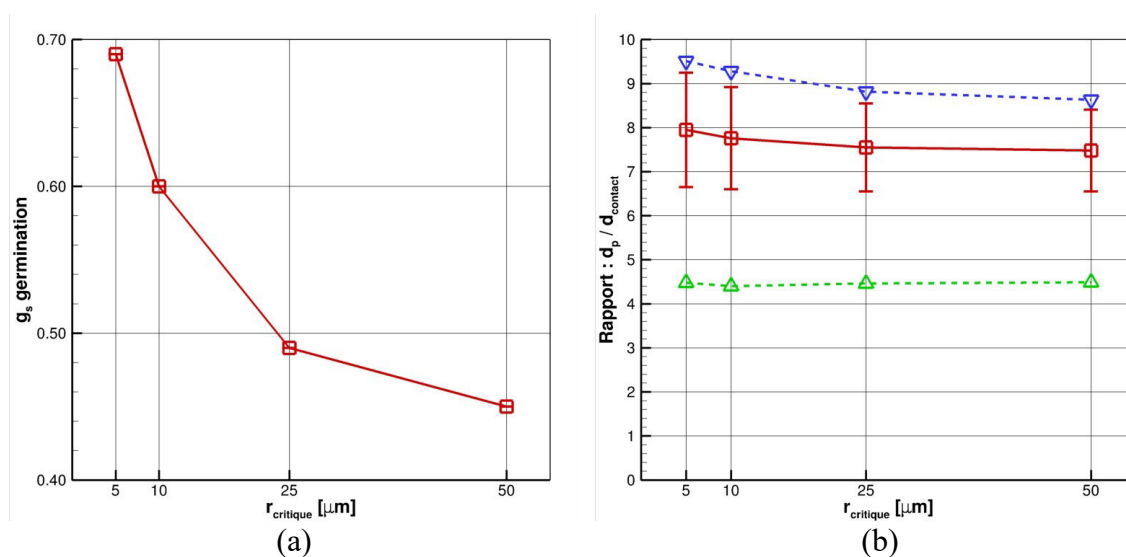


Figure 4.22 : (a) Fraction moyenne de germination (b) Évolution du rapport morphologique pour  $N_{\text{gmr}} = 10^8 [\text{m}^{-3}]$ .

D'après cette étude sur le rayon de germination, on voit que son effet n'est pas déterminant pour la porosité. Un décalage du moment de germination d'une fraction solide de 0,5 à 0,7 diminue marginalement la porosité. Pour une diminution importante de la porosité, il faudrait encore davantage retarder son apparition.

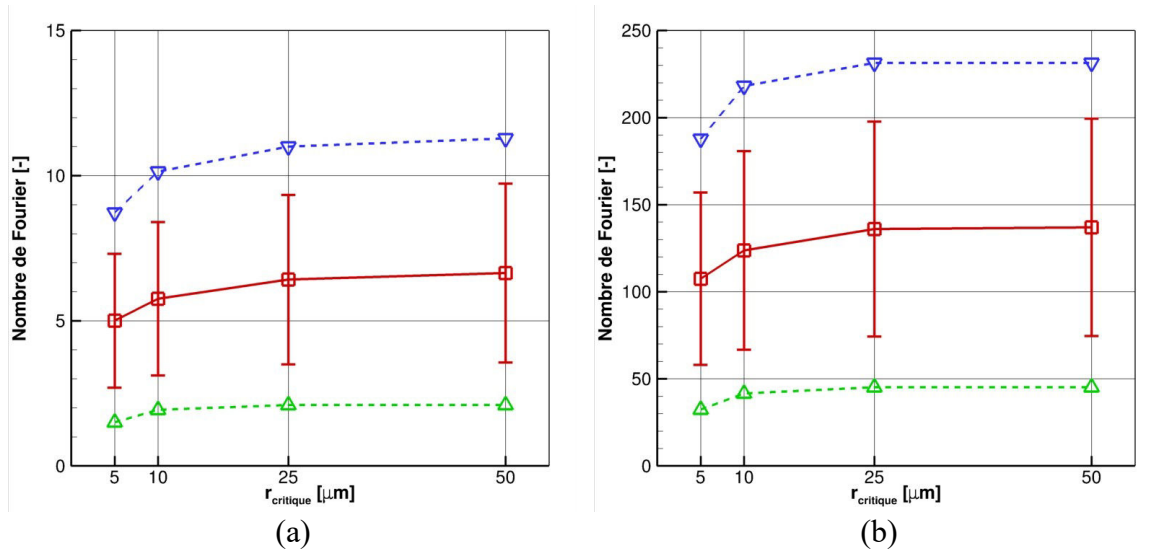


Figure 4.23 : Évolution du nombre de Fourier en fonction du rayon critique de germination pour (a)  $N_{\text{gmr}} = 10^8 \text{ m}^{-3}$  et (b)  $N_{\text{gmr}} = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ .

La figure 4.23 montre l'évolution du nombre de Fourier en fonction du rayon critique. On peut voir que le nombre de Fourier varie peu, ce qui cause la faible variation de la porosité finale en fonction du rayon critique de germination.

#### 2.1.4 Évolution en fonction de la densité de germes

Nous allons maintenant étudier l'influence de la densité de germes. Pour cette étude, le rayon critique de germination,  $r_{\text{crit}}$ , est fixé à  $25 \mu\text{m}$  et la concentration initiale,  $C_H^0$ , toujours à  $4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ . La figure 4.24 montre l'évolution de la porosité (a) et du diamètre des pores (b) en fonction de la densité de germes. La même symbolique que pour la figure 4.21.a est utilisée, les symboles nablans bleus ( $\nabla$ ) représentent la valeur maximale enregistrée sur le profil final, de même les triangles verts ( $\triangle$ ) représentent le minimum. Les symboles carrés rouges ( $\square$ ) représentent la valeur moyenne et les « barres d'erreurs » représentent deux fois l'écart type par rapport à la moyenne.

Les courbes montrent une forte évolution en fonction de la densité de germes. Cette forte influence est liée aux explications portées dans la partie 2.1.2, sur la variation du nombre de Fourier. Concernant la figure 4.24.a, l'augmentation de la densité a pour effet une augmentation de la porosité. Lorsque la densité de pore est forte,  $\geq 10^{10} \text{ m}^{-3}$ , l'écart type est faible (profil homogène sur l'épaisseur). Il l'est également aussi lorsque la densité de pores est faible,  $\leq 10^7 \text{ m}^{-3}$ . On retrouve le comportement remarqué précédemment. Lorsque la densité de germes  $N_{\text{gmr}} = 10^8 \text{ m}^{-3}$ , l'écart type est maximum car la croissance des pores est très influencée par les différences de conditions de solidification.

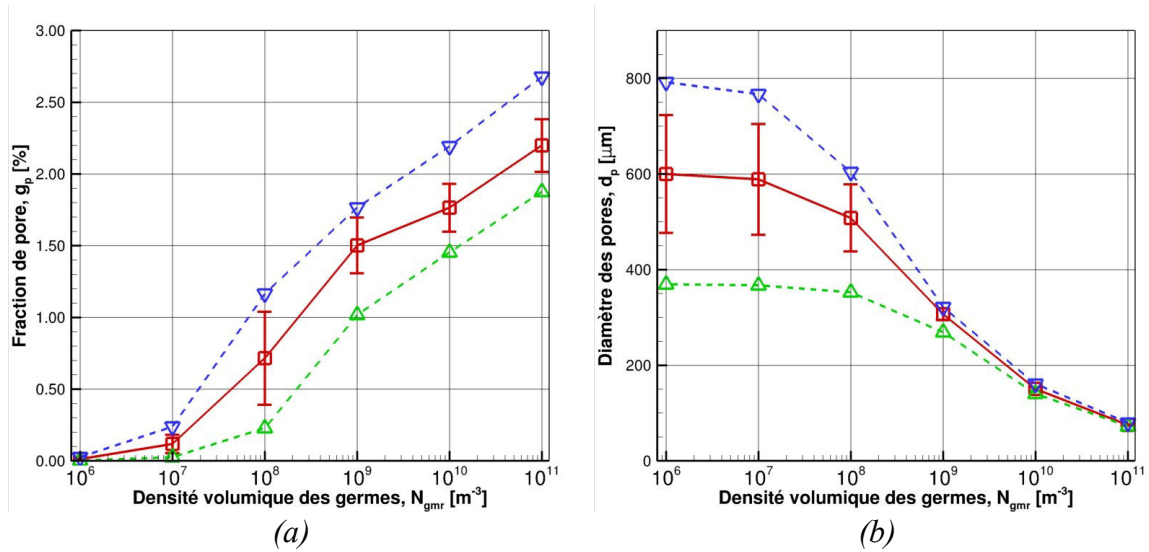


Figure 4.24 : Évolution de la fraction de porosité (a) et du diamètre des pores (b) en fonction de la densité de germes,  $r_{crit} = 25 \mu m$ .

Plus la densité de pores est importante, plus les pores ont un diamètre faible. Pour les plus faibles densité de pores ( $N_{gmr} = 10^8 m^{-3}$  et  $N_{gmr} = 10^6 m^{-3}$ ), il n'y a presque plus d'évolution du diamètre des pores. Lorsque il y a une faible densité, nous avons vu que l'on se trouvait dans un régime de croissance hors équilibre entre la composition d'équilibre par rapport aux pores et la composition en hydrogène dissout dans le liquide. Pour ces faibles densités de pores, la croissance d'un pore n'influence pas la croissance des autres. On se retrouve dans un régime de croissance équivalent à la croissance d'un pore dans un milieu infini.

La figure 4.25.a représente l'évolution de la morphologie des grains. Comme la densité des germes n'a qu'une très faible influence sur le moment de germination et que le début de la croissance des pores est relativement rapide, la morphologie suit la même évolution que le diamètre équivalent des pores.

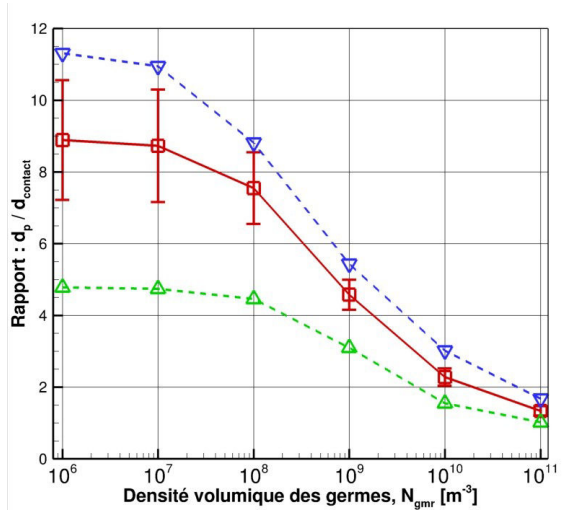


Figure 4.25 : Évolution du rapport morphologique en fonction de la densité de germes.

La figure 4.26 montre l'évolution du nombre de Fourier de la même manière que précédemment. Conformément à l'équation (4.5), l'évolution du nombre Fourier est linéaire avec  $N_{gmr}$ . On peut voir que dès  $N_{gmr} = 10^9 m^{-3}$ , le nombre de Fourier moyen,  $\overline{Fo} \approx 50$ , est suffisant pour garantir une croissance non limitée par la diffusion.

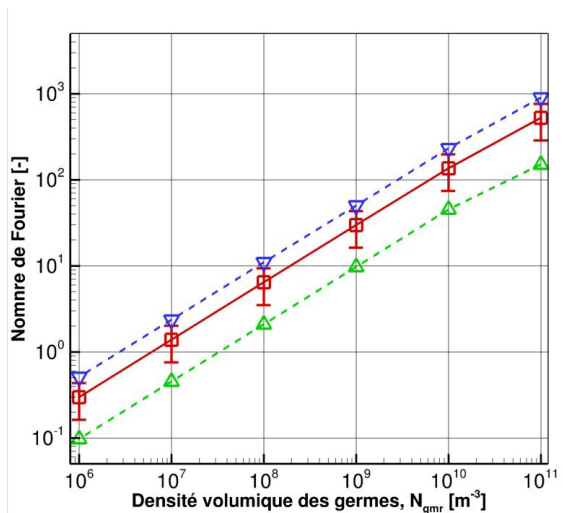


Figure 4.26 : Évolution du nombre de Fourier en fonction de la densité de germe,  $r_{crit} = 25 \mu m$ .

On peut remarquer que lorsque le nombre de Fourier devient très important, les courbes qui caractérisent la figure 4.24.b et la figure 4.25 se rejoignent (le minimum devient égal au maximum qui devient égal à la moyenne). Les variations de temps de croissance des pores n'influencent plus la porosité finale. De plus, le nombre très important de pores

donne un diamètre équivalent très faible. Dans cette situation, la microstructure n'influence plus la porosité car il n'y plus de contact entre la microstructure et les pores. C'est pourquoi, lorsque  $N_{gmr} = 10^{11} \text{ m}^{-3}$ , le rapport morphologique tend vers l'unité sur l'ensemble du profil, la microstructure ne contraint plus les pores.

### 2.1.5 Évolution en fonction de la concentration initiale

La composition initiale en hydrogène est critique pour la porosité. La figure 4.27 montre l'évolution de la porosité en fonction de la composition initiale en hydrogène et la figure 4.28 montre l'évolution du diamètre équivalent des pores. L'évolution de la fraction de pores est quasiment linéaire entre la concentration initiale et la fraction volumique de porosité. Comme l'évolution de la fraction volumique est linéaire, le diamètre équivalent suit une loi en puissance 1/3. Nous ne commenterons pas plus l'influence de la concentration initiale car ses effets sont facilement compréhensibles.

Vu son importance, la concentration initiale en hydrogène doit être la plus faible possible, que ce soit par la réalisation d'un dégazage ou par la limitation des sources d'absorption d'hydrogène.

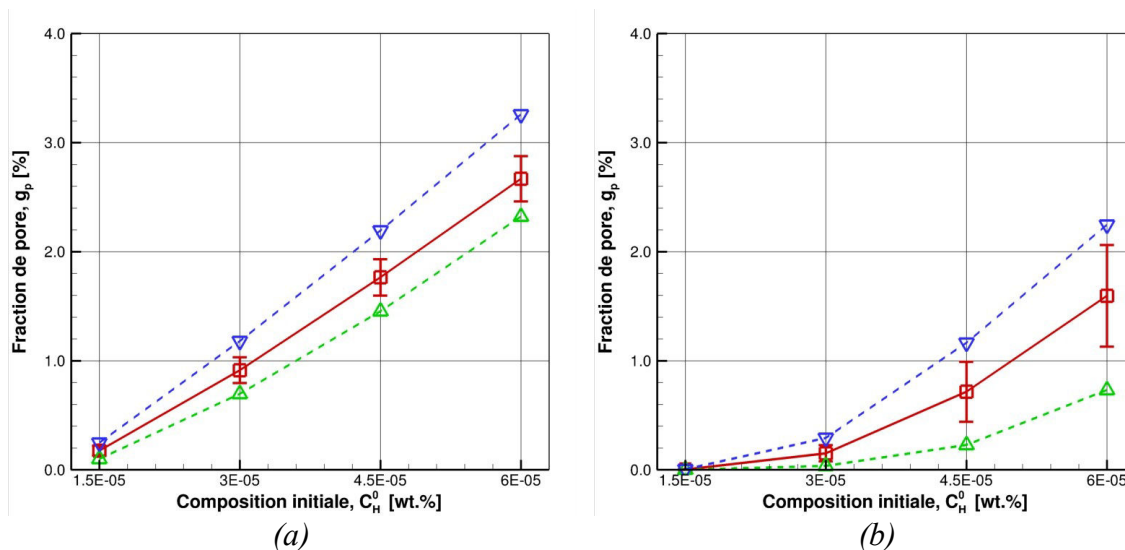


Figure 4.27 : Évolution de la fraction de pores en fonction de la composition initiale en hydrogène dissout pour (a)  $N_{gmr} 10^{10} \text{ [m}^{-3}\text{]}$  et (b)  $N_{gmr} 10^8 \text{ [m}^{-3}\text{]}$ ,  $r_{critique} = 25 \text{ [}\mu\text{m]}$ .

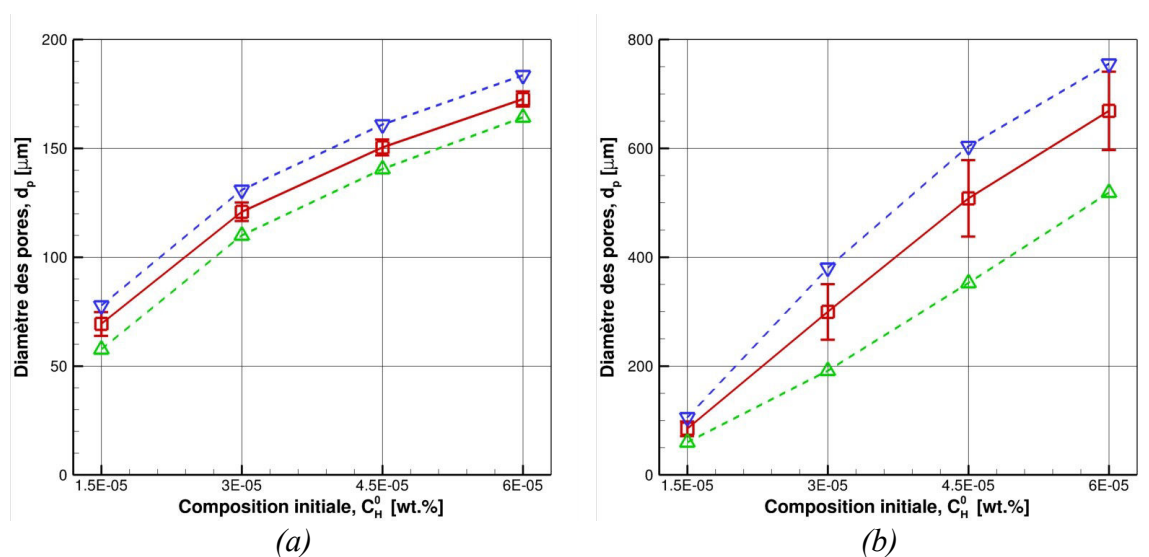


Figure 4.28 : Évolution du diamètre des pores en fonction de la composition initiale en hydrogène dissout pour (a)  $N_{gmr} 10^{10} [m^{-3}]$  et (b)  $N_{gmr} 10^8 [m^{-3}]$ ,  $r_{critique} = 25 [\mu m]$ .

### 2.1.6 Influence de la densité des particules affinantes sur la porosité

La figure 4.29 montre l'évolution de la fraction volumique de porosité en fonction de la densité des particules affinantes. Deux densités de germes ont été considérées,  $N_{gmr} = 10^{10} [m^{-3}]$  et  $N_{gmr} = 10^8 [m^{-3}]$ , pour  $r_{crit} = 25 \mu m$ ,  $C_H^0 = 4,5 \cdot 10^{-5} wt.\%$ . La modification de la densité d'affinants permet de modifier la prédiction de la microstructure. Une augmentation de la densité favorise une structure plus fine et à l'inverse une diminution tend à donner des grains plus gros.



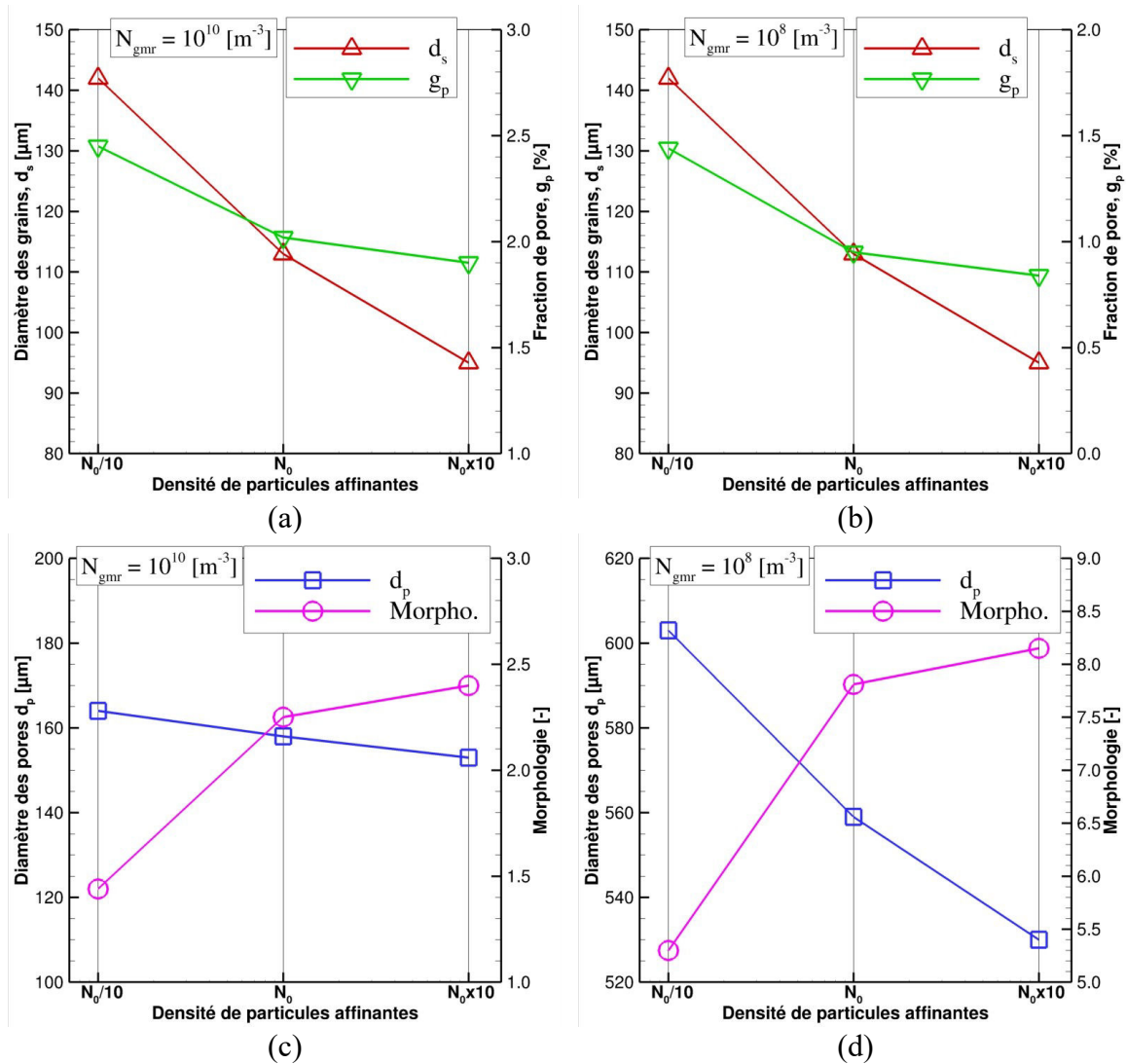


Figure 4.29 : Évolution de la porosité en fonction de la densité de particules affinantes pour deux densités de germes pour la porosité,  $N_{\text{gmr}} = 10^{10}$  et  $N_{\text{gmr}} = 10^8 [\text{m}^{-3}]$ . Pour  $r_{\text{crit}} = 25 \mu\text{m}$ ,  $C_{\text{H}}^0 = 4,5 \cdot 10^{-5} \text{ wt.}\%$ .

On peut remarquer comme prévu sur la figure 4.29.a et b que l'augmentation de la densité d'affinants provoque une diminution du diamètre final des grains. Cette diminution de la microstructure a pour effet une diminution de la porosité et est effective pour les deux densités de germes.

Cette diminution de la porosité est à mettre en relation avec la plus forte contrainte engendrée par une microstructure plus fine. La pression dans les pores est plus importante car l'espacement entre les grains est plus faible. Une pression plus importante dans les pores augmente la masse d'hydrogène dans les pores, ce qui a pour effet de réduire la fraction volumique. Avec la diminution de la taille des grains, les pores deviennent plus tortueux, figure 4.29.c et d, et ce même si la taille des pores diminue.

### **3. Conclusions sur le développement de la porosité dans les alliages en coulée semi-continue.**

Ce chapitre était consacré à l'étude numérique du développement de la porosité gazeuse lors de la coulée semi-continue d'alliages d'aluminium. Cette porosité est liée à la précipitation de l'hydrogène, sous forme de bulles, lors la solidification. Cette précipitation est rendue possible par la différence de solubilité entre la phase liquide et la phase solide. Pour réaliser cette étude, nous nous sommes appuyés sur le modèle développé au chapitre 2 que nous avons appliqué à la solidification de deux alliages d'aluminium. La première application avait pour principal objectif une validation qualitative du modèle, alors que la deuxième application était une étude approfondie du développement de la porosité.

La principale application s'est portée sur un l'alliage Al-Mg-Mn. Des résultats expérimentaux pour cet alliage nous ont été confiés par le partenaire industriel du projet de recherche. Ils se composaient d'une réponse aux ultrasons complétée par une série de micrographie. Ces résultats montraient une inhomogénéité de la répartition de la porosité, avec des pores plus fins et plus ronds près de la paroi, et des pores plus gros et tortueux au centre de la plaque. En fonction des paramètres utilisés, le modèle développé permet de retrouver ces inhomogénéités de morphologie. Elles sont créés par la limitation de la croissance par la diffusion de l'hydrogène. Une première étude a montré l'influence des paramètres du modèle sur la porosité, notamment la densité des germes.

La seconde partie de l'application sur l'alliage Al-Mg-Mn s'est portée sur l'étude de l'influence des conditions de croissance des pores sur la porosité finale. Pour accomplir cette étude, nous nous sommes appuyés sur plusieurs études paramétriques. Dans l'intervalle des valeurs testées, le rayon critique de germination n'a qu'un impact modéré sur la porosité finale. Seules les plus faibles valeurs ont engendré une réduction de la porosité. La densité de germes est le paramètre qui a le plus d'effet sur la porosité. En effet, pour le modèle que nous avons développé, la densité de pores est directement liée à la densité de germes. En augmentant ce paramètre, la croissance des pores évolue d'un régime hors équilibre à un régime d'équilibre entre la composition en hydrogène dissout dans la phase liquide et la composition d'équilibre calculée avec la loi de Sievert. Cette mise à l'équilibre s'explique par une augmentation du nombre de Fourier. Le passage par un maximum de la fraction volumique de porosité est un indice que la diffusion de l'hydrogène est limitant pour le développement de la porosité.

## Conclusions et perspectives

### Conclusions

Au cours de ce manuscrit, nous avons étudié la formation de la porosité dans les alliages d'aluminium. La porosité est une problématique majeure pour l'industrie de l'aluminium car elle peut facilement endommager les propriétés mécaniques des produits. De plus, les nouveaux alliages développés spécifiquement pour l'industrie aéronautique y sont très sensibles à cause de la présence du lithium.

Le premier chapitre de ce manuscrit était consacré à l'étude bibliographique de la porosité et à la formation des structures de solidification en coulée semi-continue. La littérature sur ce sujet de recherche nous a appris l'importance des conditions de solidification sur la formation de la porosité. En effet, la formation de la phase solide influence la croissance de la porosité. Il est donc important de bien estimer la taille des microstructures. Nous avons aussi vu que certains éléments de l'alliage pouvaient modifier la concentration d'équilibre de l'hydrogène dissout, ce qui est le cas du lithium.

L'étude de l'importance des conditions de solidification a mené à la deuxième partie de la bibliographie qui s'est concentrée sur la formation des structures de solidification. Dans cette partie, nous avons étudié la formation de la microstructure et de la macroségrégation en coulée semi-continue. Nous nous sommes attachés à décrire les écoulements et les mécanismes responsables de la formation des hétérogénéités de structure.

Le second chapitre décrivait l'amélioration du modèle de mouvement de la phase solide et la conception du modèle de prédiction de la porosité en coulée semi-continue. La description du mouvement des grains dans la phase solide a été améliorée par rapport à la dernière itération du logiciel Solid. L'inertie des grains est maintenant prise en compte ainsi que les effets des collisions sur le mouvement des grains. Nous avons validé le modèle de mouvement des grains en modélisant une expérience de sédimentation d'une forte densité sphérique. Puis, nous avons décrit la construction du modèle de porosité : Celui-ci prend en compte la macroségrégation : de l'hydrogène, le mouvement des germes, une cinétique de croissance et l'interaction avec la phase solide. Le modèle a été illustré avec une première application à un cas monodimensionnel afin de montrer son fonctionnement.

La troisième partie était consacrée à la modélisation des structures de solidification avec une étude sur le mouvement des grains et l'étude comparative d'une billette d'aluminium cuivre. Cette partie nous a permis de mettre en évidence le rôle du mouvement des grains sur la macroségrégation puis d'établir les capacités du modèle à retrouver des résultats et des observations expérimentales. La prise en compte du mouvement des grains est nécessaire afin d'obtenir une macroségrégation et une thermique en adéquation avec les

résultats expérimentaux, bien que le choix de fraction de blocage ait une incidence réduite, notamment sur le premier cas étudié. Cette partie a contribué à renforcer notre certitude de pouvoir obtenir une structure de solidification cohérente avec la réalité.

La dernière partie était entièrement consacrée à la modélisation de la porosité dans un alliage aluminium- magnésium- manganèse. Le modèle a été capable de reproduire le profil de porosité observé expérimentalement. Ce profil montrait la particularité de posséder un maximum. Nous avons pu expliquer grâce au modèle développé que c'est la différence de temps de solidification dans la plaque qui est responsable de ce maximum. En effet, la croissance des pores est limitée par le temps de diffusion de l'hydrogène vers les pores. Ce résultat nous informe sur le régime de croissance des pores, limité par la diffusion, et donc de l'importance de prendre en compte une cinétique de croissance pour la porosité même si le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans la phase liquide est élevé.

## Perspectives

Les perspectives immédiates de ce travail sont les applications du modèle de porosité et du modèle de solidification aux cas d'alliages aluminium-cuivre-lithium. En effet, l'objectif de ce projet est une réduction de la porosité dans ces alliages. Une première étude numérique sur la formation de la porosité à partir des données thermodynamiques et des paramètres de coulée d'une plaque d'alliage Al-Cu-Li a été réalisée et fournie au partenaire industriel. Cependant, pour des raisons de confidentialité, nous ne pouvons partager ces résultats.

Du point de vue de la recherche, le couplage entre la formation de la porosité et la solidification permet d'étudier la modification de la macroségrégation par l'apparition d'une phase gazeuse. En effet, plusieurs auteurs ont montré pour des cas de coulées de lingots, [Rousset et al. 1995] [Voller & Sundarraj 1995], que la porosité modifiait la macroségrégation et permettrait de retrouver les profils expérimentaux. Afin de pouvoir étudier cette interaction, le modèle de porosité a été couplé aux modèles de solidification qui intègre maintenant une phase gazeuse ( $1 = g_s + g_l + g_p$ ). Cependant, il est encore trop tôt pour apporter des commentaires sur les résultats obtenus.

Concernant le modèle de solidification appliqué à la coulée semi-continue, nous avons vu que les résultats obtenus concordaient avec l'expérience. Cependant, dans d'autres cas [Bedel 2014], la confrontation à l'expérience est moins concluante. Cela nous prouve que certains phénomènes physiques ne sont encore que partiellement pris en compte et qu'il reste encore du travail de recherche à accomplir afin de disposer d'un modèle de solidification fiable pour toutes les configurations.

## Annexes

### Annexe A : Moyenne volumique des équations de conservation

Dans cette annexe nous allons appliquer le principe de la moyenne volumique aux équations de la mécanique des fluides afin d'en déduire les équations du mouvement pour la phase solide et liquide intégrées dans le logiciel SOLID.

#### A.1. Équations de conservation

Nous commençons avec les équations de conservation locale de la masse et de la quantité de mouvement :

Conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (\text{A.1})$$

Conservation de la quantité de mouvement :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \vec{v}) + \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) = -\nabla p + \nabla \cdot \bar{\bar{T}} + \vec{b} \quad (\text{A.2})$$

##### A.1.1. Principe de la moyenne volumique

La définition de la moyenne volumique d'une quantité  $X$  dans la phase  $k$  est définie comme :

$$\langle X_k \rangle = \frac{1}{V_0} \int \gamma_k X_k dV \quad (\text{A.3})$$

où  $\gamma_k$  est la fonction indicatrice de phase, valant l'unité dans la phase  $k$  et 0 dans les autres phases. La moyenne intrinsèque de phase est définie comme :

$$\langle X_k \rangle_k = \frac{1}{V_k} \int \gamma_k X_k dV \quad (\text{A.4})$$

Si l'on prend  $X_k=1$  on obtient la définition de la fraction volumique :

$$g_k = \frac{V_k}{V_0} \quad (\text{A.5})$$

avec la relation fondamentale :

$$\sum_k g_k = 1 \quad (\text{A.6})$$

et la relation entre la moyenne et la moyenne intrinsèque :

$$\langle X_k \rangle = g_k \langle X_k \rangle_k \quad (\text{A.7})$$

Un champ peut se décomposer, selon Gray, en sa moyenne et sa partie fluctuante :

$$X_k = \gamma_k \langle X_k \rangle + \tilde{X}_k \quad (\text{A.8})$$

La moyenne volumique suit les principes suivants :

$$\begin{aligned} \langle X+Y \rangle &= \langle X \rangle + \langle Y \rangle \\ \langle \langle X \rangle Y \rangle &= \langle X \rangle \langle Y \rangle \\ \langle \text{constante} \rangle &= \text{constante} \\ \langle \tilde{X} \rangle &= 0 \\ \left\langle \frac{\partial X}{\partial t} \right\rangle &= \frac{\partial \langle X \rangle}{\partial t} \\ \left\langle \frac{\partial X}{\partial x_i} \right\rangle &= \frac{\partial \langle X \rangle}{\partial x_i} \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

et :

$$\begin{aligned} XY &= (\langle X \rangle + \tilde{X})(\langle Y \rangle + \tilde{Y}) \\ &= \langle X \rangle \langle Y \rangle + \langle X \rangle \tilde{Y} + \langle Y \rangle \tilde{X} + \tilde{X} \tilde{Y} \\ \langle XY \rangle &= \langle \langle X \rangle \langle Y \rangle \rangle + \underbrace{\langle \langle X \rangle \tilde{Y} \rangle}_{\approx 0} + \underbrace{\langle \langle Y \rangle \tilde{X} \rangle}_{\approx 0} + \langle \tilde{X} \tilde{Y} \rangle \\ \langle XY \rangle &= \langle \langle X \rangle \langle Y \rangle \rangle + \langle \tilde{X} \tilde{Y} \rangle \\ \langle XYY \rangle &= \langle \langle X \rangle \langle YY \rangle \rangle + \langle \tilde{X} \widetilde{YY} \rangle \\ &= \langle X \rangle \langle YY \rangle + \langle \tilde{X} \widetilde{YY} \rangle \\ &= \langle X \rangle \langle Y \rangle \langle Y \rangle + \langle X \rangle \langle \tilde{Y} \tilde{Y} \rangle + \langle \tilde{X} \widetilde{YY} \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Les théorèmes suivants concernent la moyenne de la dérivée temporelle et spatiale :

$$\left\langle \frac{\partial}{\partial t} X_k \right\rangle = \frac{\partial}{\partial t} \langle X_k \rangle - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} X_k \vec{w}_k \cdot \vec{n}_k dA \quad (\text{A.11})$$

$$\left\langle \frac{\partial}{\partial X} X_k \right\rangle = \frac{\partial}{\partial X} \langle X_k \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} X_k \vec{n}_k dA \quad (\text{A.12})$$

$$\left\langle \frac{\partial}{\partial X} X_k \right\rangle = \frac{\partial}{\partial X} g_k \langle X \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \tilde{X}_k \vec{n}_k dA \quad (\text{A.13})$$

Par comparaison entre l'équation (A.12) et (A.13), on obtient :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_k} \langle X_k \rangle^k \vec{n}_k dA = \langle X_k \rangle^k \nabla g_k \quad (\text{A.14})$$

#### A.1.2. Moyenne des équations de conservation

Nous commençons par moyenner l'équation de conservation de la masse :

$$\left\langle y_k \frac{\partial \rho}{\partial t} \right\rangle + \langle y_k \nabla \cdot (\rho v) \rangle = 0 \quad (\text{A.15})$$

La moyenne du terme d'accumulation donne :

$$\left\langle y_k \frac{\partial \rho}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \rho_k \rangle^k) - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{w}_i \cdot \vec{n}_k dA \quad (\text{A.16})$$

avec  $\vec{w}_i$  la vitesse de l'interface et  $\vec{n}_k$  la normale sortante par rapport au domaine  $k$ .

La moyenne du terme convectif donne :

$$\langle y_k \nabla \cdot (\rho v) \rangle = \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \nabla \cdot (g_k \langle \tilde{\rho}_k \tilde{\vec{v}}_k \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA \quad (\text{A.17})$$

Les intégrales des équations (A.16) et (A.17) peuvent être combinées :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{w}_i \cdot \vec{n}_k dA = \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k (\vec{v}_k - \vec{w}_i) \cdot \vec{n}_k dA = \Gamma_k \quad (\text{A.18})$$

où  $\Gamma_k$  est le flux massique provenant de la phase  $k$  qui traverse l'interface solide/liquide. Ce flux massique provient du changement de phase : une solidification de la phase liquide

ou une refusion de la phase solide.

Pour le calcul du terme restant,  $\nabla \cdot (g_k \langle \tilde{\rho}_k \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k)$ , une hypothèse est prise sur le produit de la fluctuation de la masse volumique par n'importe quelle quantité. L'hypothèse prise veut que le produit d'une quantité  $\phi_k$  par la fluctuation de la masse volumique soit négligeable.

$$\langle \tilde{\rho}_k \phi_k \rangle^k \approx 0 \quad (\text{A.19})$$

L'équation moyennée de la conservation de la masse s'écrit donc finalement :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \rho_k \rangle^k) + \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \mathbf{v}_k \rangle^k) = \Gamma_k \quad (\text{A.20})$$

avec  $\Gamma_k = \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k (\mathbf{v}_k - \tilde{\mathbf{w}}_i) \cdot \tilde{\mathbf{n}}_k dA$  qui représente l'évolution de l'interface consécutive au changement de phase.

Nous allons maintenant moyenner l'équation de conservation de la quantité de mouvement. En utilisant la fonction de phase,  $\gamma_k$ , l'équation de conservation locale de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\gamma_k \frac{\partial}{\partial t} (\rho \tilde{\mathbf{v}}) + \gamma_k \nabla \cdot (\rho \tilde{\mathbf{v}} \tilde{\mathbf{v}}) = -\gamma_k \nabla p + \gamma_k \nabla \cdot \bar{\mathbf{T}} + \gamma_k \tilde{\mathbf{b}} \quad (\text{A.21})$$

Moyenne du terme transitoire :

$$\begin{aligned} \left\langle \gamma_k \frac{\partial}{\partial t} (\rho \tilde{\mathbf{v}}) \right\rangle &= \frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \rho_k \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k) - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \tilde{\mathbf{v}}_k \tilde{\mathbf{w}}_i \cdot \tilde{\mathbf{n}}_k dA \\ &= \frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k) + \frac{\partial}{\partial t} \underbrace{\left( g_k \langle \tilde{\rho}_k \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k \right)}_{\approx 0 \text{ hypothèse}} - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \tilde{\mathbf{v}}_k \tilde{\mathbf{w}}_i \cdot \tilde{\mathbf{n}}_k dA \end{aligned} \quad (\text{A.22})$$

$$\left\langle \gamma_k \frac{\partial}{\partial t} (\rho \tilde{\mathbf{v}}) \right\rangle = \frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k) - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \tilde{\mathbf{v}}_k \tilde{\mathbf{w}}_i \cdot \tilde{\mathbf{n}}_k dA$$

Moyenne du terme advectif :



$$\begin{aligned}
 \langle \gamma_k \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) \rangle &= \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA \\
 &= \nabla \cdot (g_k \langle \langle \rho_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \vec{v}_k \rangle^k + \widetilde{\rho}_k \widetilde{\vec{v}_k \vec{v}_k} \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA \\
 &= \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \widetilde{\vec{v}_k \vec{v}_k} \rangle^k) \\
 &+ \underbrace{\nabla \cdot (g_k \langle \widetilde{\rho}_k \widetilde{\vec{v}_k \vec{v}_k} \rangle^k)}_{\approx 0 \text{ hypothèse}} - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA \\
 \langle \gamma_k \nabla \cdot (\rho \vec{v} \vec{v}) \rangle &= \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \widetilde{\vec{v}_k \vec{v}_k} \rangle^k) \\
 &+ \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA
 \end{aligned} \tag{A.23}$$

Moyenne du terme de pression :

$$-\langle \gamma_k \nabla p \rangle = -\nabla (g_k \langle p_k \rangle^k) - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} p_k \vec{n}_k dA \tag{A.24}$$

Moyenne du terme des contraintes :

$$\langle \gamma_k \nabla \cdot \bar{\mathbf{T}}_k \rangle = \nabla \cdot (g_k \langle \bar{\mathbf{T}}_k \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \bar{\mathbf{T}}_k \cdot \vec{n}_k dA \tag{A.25}$$

Moyenne du terme contenant les forces volumiques :

$$\langle \gamma_k \vec{b} \rangle = g_k \langle \vec{b} \rangle^k \tag{A.26}$$

Les termes sous la forme d'intégrale des équations (A.22) à (A.25) sont à interpréter comme des échanges de quantité de mouvement entre la phase solide et liquide.

Les termes d'interfaces des équations du terme transitoire, (A.22), et du terme advectif, (A.23), se combinent pour donner le flux de quantité de mouvement qui s'échange à travers l'interface, consécutif au changement de phase.

$$\begin{aligned}
 &\frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k \vec{w}_i \cdot \vec{n}_k dA \\
 &= \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \rho_k \vec{v}_k (\vec{v}_i - \vec{w}_k) \cdot \vec{n}_k dA = \vec{M}_k^\Gamma
 \end{aligned} \tag{A.27}$$

Les termes en intégrales des équations (A.24) et (A.25) représentent les transferts de quantité de mouvement à l'interface résultant des contraintes interfaciales. Le terme,  $\bar{\bar{T}}_k$ , se décompose en force de pression interfaciale et en contrainte d'interface.

$$\vec{M}_k^p = -\frac{1}{V_0} \int_{A_k} p_k \vec{n}_k dA \quad (\text{A.28})$$

$$\vec{M}_k^d = \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \bar{\bar{T}}_k \cdot \vec{n}_k dA \quad (\text{A.29})$$

On regroupe sous un même terme :

$$\begin{aligned} \vec{M}_k^{\bar{\bar{T}}_k} &= \vec{M}_k^d + \vec{M}_k^p = \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \bar{\bar{T}}_k \cdot \vec{n}_k dA - \frac{1}{V_0} \int_{A_k} p_k \vec{n}_k dA = \frac{1}{V_0} \int_{A_k} (\bar{\bar{T}}_k - p_k \cdot I) \cdot \vec{n}_k dA \\ &= \bar{p}_{ki} \nabla g_k + \vec{M}_k^d \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

En regroupant les équations (A.22) à (A.30), l'équation de conservation locale moyennée de quantité de mouvement s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (g_k \rho_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \nabla \cdot (g_k \rho_k \langle \vec{v}_k \rangle^k \langle \vec{v}_k \rangle^k) &= -\nabla (g_k \langle p_k \rangle^k) + \nabla \cdot (\langle \bar{\bar{T}}_k \rangle) \\ &+ \nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \tilde{\vec{v}}_k \tilde{\vec{v}}_k \rangle^k) + \vec{M}_k + g_l \langle b_k \rangle^k \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

avec

$$\vec{M}_k = \vec{M}_k^{\bar{\bar{T}}_k} + \vec{M}_k^\Gamma \quad (\text{A.32})$$

qui représente l'ensemble des échanges de quantité de mouvement à l'interface.

## A.2. Fermeture des termes

### A.2.1. Fluctuation des vitesses

Le terme,  $\nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \tilde{\vec{v}}_k \tilde{\vec{v}}_k \rangle^k)$ , présent dans l'équation (A.32) représente la variance de la fluctuation de la vitesse. Ni et Beckermann [1991], proposent une analogie avec les contraintes turbulentes de Reynolds, et mettent ce terme sous la forme d'une contrainte  $\bar{\bar{\tau}}_k^t$  :

$$\nabla \cdot (g_k \langle \rho_k \rangle^k \langle \tilde{\vec{v}}_k \tilde{\vec{v}}_k \rangle^k) = \nabla \cdot (g_k \langle \bar{\bar{\tau}}_k^t \rangle^k) \quad (\text{A.33})$$

Cependant, cette contrainte ne sera pas comptabilisée et sera considérée négligeable,  $\bar{\tau}_k^t \approx 0$ .

### A.2.2. Flottabilité de la phase

Le terme contenant les forces volumiques représente la flottabilité de la phase k :

$$\langle \vec{b}_k \rangle^k = \vec{g} \rho_k^{ref} \left[ 1 - \beta_k^T (\langle T_k \rangle^k - T^{ref}) - \beta_k^C (\langle C_k \rangle^k - C^{ref}) \right] \quad (\text{A.34})$$

### A.2.3. Modélisation du terme de contrainte

Ce terme de contrainte,  $\bar{\bar{T}}_k$  représente les échanges de quantité de mouvement qui se réalisent au sein de chaque phase. La modélisation de ce terme amène à une difficulté : si pour la phase liquide, l'hypothèse d'un fluide newtonien incompressible est une solution logique, le choix d'un modèle pour la phase solide n'est pas direct.

Un premier choix est de prendre l'hypothèse d'un pseudo fluide ([Ishii 1977] [Ni & Beckermann 1993] [Ludwig & Wu 2002]) qui considère la phase solide comme un fluide lui aussi newtonien et incompressible. La viscosité pour une phase solide dans notre contexte n'a pas réellement de sens physique, mais c'est un modèle simple qui permet la prise en compte des chocs et des contacts entre les particules sur l'écoulement.

$$\bar{\bar{T}}_k = \mu_k (\nabla \vec{v}_k + (\nabla \vec{v}_k)^t) \quad (\text{A.35})$$

Moyenne du terme de contrainte :

$$\begin{aligned} \langle \gamma_k \bar{\bar{T}}_k \rangle &= \langle \gamma_k [\mu_k (\nabla \vec{v}_k + (\nabla \vec{v}_k)^t)] \rangle \\ &= \langle \mu_k (\gamma_k \nabla \vec{v}_k + \gamma_k (\nabla \vec{v}_k)^t) \rangle \\ &= \mu_k (\langle \gamma_k \nabla \vec{v}_k \rangle + \langle \gamma_k (\nabla \vec{v}_k)^t \rangle) \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

avec

$$\begin{aligned} \langle \gamma_k \nabla \vec{v}_k \rangle &= \nabla (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA \\ \langle \langle \gamma_k \nabla \vec{v}_k \rangle^k \rangle^t &= \left[ \nabla (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) \right]^t + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \vec{n}_k \cdot \vec{v}_k dA \end{aligned} \quad (\text{A.37})$$

d'où

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \langle \gamma_k \bar{\bar{T}}_k \rangle = & \nabla \cdot \left( \mu_k^* \left[ \nabla (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) + \left[ \nabla (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) \right]^T \right] \right) \\ & + \nabla \cdot \left( \mu_k^* \left[ \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \vec{v}_k \cdot \vec{n}_k dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_k} \vec{n}_k \cdot \vec{v}_k dA \right] \right) \end{aligned} \quad (A.38)$$

Nous utiliserons une simplification de cette proposition :

$$\nabla \cdot \langle \gamma_k \bar{\bar{T}}_k \rangle = \mu_k^* \nabla \cdot \left[ \nabla (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) \right] = \mu_k^* \Delta (g_k \langle \vec{v}_k \rangle^k) \quad (A.39)$$

#### A.2.4. Choix du modèle de viscosité

##### Viscosité pour la phase liquide :

La viscosité de la phase liquide est souvent prise égale à la viscosité effective du liquide.

$$\mu_l^* = \mu_l \quad (A.40)$$

##### Viscosité pour la phase solide :

$$\mu_s^* = \frac{\mu_l}{g_s} \left[ \left( 1 - \frac{g_s}{g_s^b} \right)^{-2.5 g_s^b} - (1 - g_s) \right] \quad [\text{Ishii 1977}] \quad (A.41)$$

avec  $g_s^b$  la fraction maximale d'empilement. Cette valeur est prise égale à la fraction d'empilement aléatoire de sphères monodisperses  $\approx 0.6$ .

#### A.2.5. Bilan d'équilibre à l'interface

L'équilibre des forces à l'interface requiert :

$$\vec{M}_s^\Gamma + \vec{M}_l^\Gamma + \vec{M}_s^{\bar{\bar{T}}} + \vec{M}_l^{\bar{\bar{T}}} + \vec{M}_i = 0 \quad (A.42)$$

où  $M_i$  est une source de moment interfacial conséquent à la tension de surface, et peut être modélisé (Beckerman 1991) comme :

$$\vec{M}_i = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \sigma_i \zeta \vec{n}_s dA = -\sigma_i \bar{\zeta} \nabla g_s \quad (\text{A.43})$$

avec  $\sigma_i$  la tension superficielle supposée constante et  $\bar{\zeta}$  le rayon de courbure moyen.  $\sigma_i \bar{\zeta}$  représente la différence de pression à l'interface des deux phases causée par les effets de courbure.

$$\sigma_i \bar{\zeta} = (\bar{p}_{si} - \bar{p}_{li}) \quad (\text{A.44})$$

Équation (A.30) et (A.44) dans l'équation (A.42) donne :

$$\begin{aligned} \vec{M}_s^\Gamma + \vec{M}_l^\Gamma + \vec{M}_s^d + \vec{M}_l^d + \vec{M}_s^p + \vec{M}_l^p + \vec{M}_i &= 0 \\ \vec{M}_s^\Gamma + \vec{M}_l^\Gamma + \vec{M}_s^d + \vec{M}_l^d + \bar{p}_{si} \nabla g_s + \bar{p}_{li} \nabla g_l - (\bar{p}_{si} - \bar{p}_{li}) \nabla g_s &= 0 \\ \vec{M}_s^\Gamma + \vec{M}_l^\Gamma + \vec{M}_s^d + \vec{M}_l^d + \bar{p}_{si} \nabla g_s - \bar{p}_{li} \nabla g_s - (\bar{p}_{si} - \bar{p}_{li}) \nabla g_s &= 0 \\ \vec{M}_s^\Gamma + \vec{M}_l^\Gamma + \vec{M}_s^d + \vec{M}_l^d &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.45})$$

$\vec{M}_s^\Gamma$  représente les transferts interfaciaux de moments dus au changement de phase,  $\vec{M}_s^d$  représente la part dissipative des contraintes interfaciales.

#### A.2.6. Force de traînée

La part dissipative des contraintes interfaciales,  $\vec{M}_s^d$ , dans le cas de grains évoluant dans le bain liquide, peut être modélisée en introduisant un coefficient de traînée  $C_D$  :

$$\vec{M}_s^d = -\frac{1}{V_0} \frac{1}{2} \rho_l A_d C_D \left( \langle \vec{v}_s \rangle^s - \langle \vec{v}_l \rangle^l \right) \left( \langle \vec{v}_s \rangle^s - \langle \vec{v}_l \rangle^l \right) \quad (\text{A.46})$$

où  $A_d$  est la surface projetée de la phase solide.

Les effets de la portance et de masse ajoutée sur le mouvement des grains sont considérés négligeable.

## Annexe B : Implémentation du modèle de porosité dans Solid

La résolution de la porosité dans le logiciel SOLID suit le même principe que celui du calcul de la croissance de la phase solide. Un schéma transport-croissance est utilisé avec un micro pas de temps lors du calcul de la croissance [Založnik & Combeau 2010].

Les équations ne sont pas présentées par ordre de résolution mais par champ calculé. L'exposant 'tr' se réfère à la valeur calculée après le transport et l'exposant 'gr' à la valeur après la croissance ou au cours de celle-ci.

### B.1. Transport et consommation des germes

Dans un premier temps nous supposons que les germes sont transportés par la phase liquide, d'où la présence de  $\vec{v}_l$  dans l'équation de transport :

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_{grm}^{tr}) + \nabla \cdot (\vec{v}_l N_{grm}^{tr}) = 0 \quad (B.1)$$

Lorsque les germes sont activés, la densité de germe après transport est modifiée :

$$N_{grm}^{nuc} = N_{grm}^{tr} - N^{src} \quad (B.2)$$

avec  $N^{src}$  la densité de germe activée.

### B.2. Transport de la densité des pores

Les pores sont supposés n'être présents que lorsque il y a eu consolidation du front de solidification, ils sont donc transportés par la phase solide, d'où  $\vec{v}_{cast}$  dans l'équation de transport :

$$\frac{\partial}{\partial t}(N_p^{tr}) + \nabla \cdot (\vec{v}_{cast} N_p^{tr}) = 0 \quad (B.3)$$

Lorsque les germes sont activés, la densité de pores après transport est modifiée :

$$N_p^{nuc} = N_p^{tr} + N^{source} \quad (B.4)$$

avec  $N^{src}$  la densité de germe activée.

### B.3. Transport des compositions en hydrogène dissout

Lors de l'étape de transport des compositions dans le liquide et le solide, l'hydrogène est conservé et transporté par convection.

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{g}_s^{tr} \rho_s^{tr} C_H^{s\ tr}) + \nabla \cdot (\vec{v}_s \mathbf{g}_s^{tr} \rho_s^{tr} C_H^{s\ tr}) &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{g}_l^{tr} \rho_l^{tr} C_H^{l\ tr}) + \nabla \cdot (\vec{v}_l \mathbf{g}_l^{tr} \rho_l^{tr} C_H^{l\ tr}) &= 0 \end{aligned} \quad (B.5)$$

Pour calculer les compositions pendant la phase de croissance, on pose :

$$\bar{\rho}^{tr} C_H^{tr} = \bar{\rho}^{gr} C_H^{gr} \quad (B.6)$$

puis on développe :

$$\rho_s^{tr} \mathbf{g}_s^{tr} C_H^{s\ tr} + \rho_l^{tr} \mathbf{g}_l^{tr} C_H^{l\ tr} + \rho_p^{tr} \mathbf{g}_p^{tr} = \rho_s^{gr} \mathbf{g}_s^{gr} C_H^{s\ gr} + \rho_l^{gr} \mathbf{g}_l^{gr} C_H^{l\ gr} + \rho_p^{gr} \mathbf{g}_p^{gr} \quad (B.7)$$

avec :

$$C_H^{s\ gr} = k_h C_H^{l\ gr} \quad (B.8)$$

Ce qui donne :

$$C_H^{l\ gr} = \frac{\rho_s^{tr} \mathbf{g}_s^{tr} C_H^{s\ tr} + \rho_l^{tr} \mathbf{g}_l^{tr} C_H^{l\ tr} + \rho_p^{tr} \mathbf{g}_p^{tr} - \rho_p^{gr} \mathbf{g}_p^{gr}}{\rho_s^{gr} \mathbf{g}_s^{gr} k_h + \rho_l^{gr} \mathbf{g}_l^{gr}} \quad (B.9)$$

La composition en hydrogène dissout est recalculée après l'étape de croissance des pores.

### B.4. Calcul du critère de germination

Pour conserver la masse d'hydrogène à la germination des pores il faut prendre en compte en compte la masse d'hydrogène qui serait contenu dans les germes. Pour prendre en compte cette masse, on recalcule une composition liquide fictive :

$$\rho_s^{tr} \mathbf{g}_l^{tr} C_H^{l\ tr} = \rho_s^{tr} \mathbf{g}_l^{tr} C_H^{l\ nuc} + \rho_p^{nuc} \mathbf{g}_p^{nuc} \quad (B.10)$$

avec  $C_H^{l\ nuc}$  la composition liquide fictive et  $\rho_p^{nuc} \mathbf{g}_p^{nuc}$  la masse d'hydrogène contenue dans

les germes,  $g_p^{nuc} = N_{germe}^{tr} \frac{4}{3} \pi r_{crit}^3$  et  $\rho_p^{nuc} = \frac{P_l + 2\gamma_{lg}/r_{crit}}{r_{H_2} T}$ .

La condition de germination se réécrit alors :

$$C_H^{l\ nuc} > X_H^{crit} \quad (B.11)$$

avec la composition d'équilibre calculée par rapport au germe :

$$X_H^{crit} = S_v \sqrt{\frac{P_l + 2\gamma_{lg}/r_{crit}}{P_0}} \quad (B.12)$$

Si la condition est remplie les germes sont activés et deviennent des pores. La densité de germes qui s'active est égale à la densité obtenue après la phase de transport.

$$N^{source} = N_p^{tr} \quad (B.13)$$

## B.5. Transport et croissance de la fraction volumique de pore

Les pores sont supposés n'être présents que lorsqu'il y a eu consolidation du front de solidification, ils sont donc transportés par la phase solide, d'où  $v_{cast}^{\vec{}}$  dans l'équation de transport :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g_p^{tr}) + \nabla \cdot (v_{cast}^{\vec{}} g_p^{tr}) = 0 \quad (B.14)$$

Le calcul de la croissance des pores est réalisé avec le modèle de Carlson et al. [2007], voir chapitre 2 section 2.1.5 page 81 :

$$\frac{\partial}{\partial t} (g_p^{gr} \rho_p^{gr}) = \frac{S_p \rho_l D_e (C_H^{l\ gr} - X_H^l)}{l_{lp} (1 - X_H^l)} \quad (B.15)$$

Cette relation calcule la croissance de la masse d'hydrogène en phase gazeuse ( $g_p^{gr} \rho_p^{gr}$ ). On doit donc avoir une relation supplémentaire pour calculer la fraction de pores. La masse volumique de l'hydrogène suivant la loi des gaz parfaits, nous donne donc :

$$\rho_p = \frac{P_l + 2\gamma_{lg}/r_{courb}}{r_{H_2} T} \quad (B.16)$$



avec  $r_{H_2}$   $J.kg^{-1}.K^{-1}$  la constante spécifique du dihydrogène et T la température en K.

Lorsque les pores sont considérés comme sphériques ( $r_{courb}=r_p$ ), on pose :

$$\begin{aligned} (g_p^{gr} \rho_p^{gr}) &= \underbrace{\frac{4}{3} \pi N_p r_p^3}_{=g_p} \frac{P_l + 2 \gamma_{lg} / r_p}{r_{H_2} T} \\ &= \frac{4 \pi N_p r_p^3 P_l}{3 r_{H_2} T} + \frac{4 \pi N_p r_p^2 2 \gamma_{lg}}{3 r_{H_2} T} \end{aligned} \quad (B.17)$$

L'équation cubique obtenue est résolue afin de calculer  $r_p$ , puis  $g_p$  est recalculée.

Lorsque le pore est contraint par la microstructure, son rayon de courbure est estimé par le modèle de Couturier (voir page 82). Le calcul de la fraction de pores est alors direct :

$$g_p^{gr} = (g_p^{gr} \rho_p^{gr}) \left( \frac{P_l + 2 \gamma_{lg} / r_{courb}}{r_{H_2} T} \right)^{-1} \quad (B.18)$$

Pour la résolution numérique de la croissance des pores, on utilise un schéma explicite avec micro pas de temps.

$$(g_p^{gr} \rho_p^{gr})^{t+1} = \Delta t_{mic} \left( \frac{S_p \rho_l D_e (C_H^{l,gr} - X_H^l)}{l_p (1 - X_H^l)} \right)^t + (g_p^{gr} \rho_p^{gr})^t \quad (B.19)$$

avec  $\Delta t_{mic}$  la valeur temporelle du micro pas de temps. Cette valeur est calculée à partir d'une division du pas de temps macroscopique utilisé pour le calcul du transport,

$\Delta t_{mic} = \frac{\Delta t_{mac}}{nb_{mic}}$ . La composition en hydrogène dissout est recalculée après chaque micro pas de temps selon :

$$(C_H^{l,gr})^{t+1} = \frac{(\rho_s^{gr} g_s^{gr} k_h C_H^{l,gr} + \rho_s^{gr} g_l^{gr} C_H^{l,gr} + \rho_p^{gr} g_p^{gr})^t - (\rho_p^{gr} g_p^{gr})^{t+1}}{(\rho_s^{gr} g_s^{gr} k_h + \rho_l^{gr} g_l^{gr})^{t+1}} \quad (B.20)$$

## B.6. Algorithme

La figure 1 présente l'algorithme de calcul de la porosité tel qu'il est implémenté. Les équations liées au transport sont résolues en premier avec,  $N_{gmr}^{tr}$ ,  $C_H^{s, tr}$ ,  $C_H^{l, tr}$ ,  $N_p^{tr}$  et

$g_p^{tr}$ . Puis, on calcule le critère de germination et on met à jour les densités de germes et de pores si le critère est confirmé. La croissance est calculée seulement lorsque l'étape de transport a convergé. La croissance est calculée de manière explicite pour chaque micro pas de temps,  $\Delta t_{mic}$ .

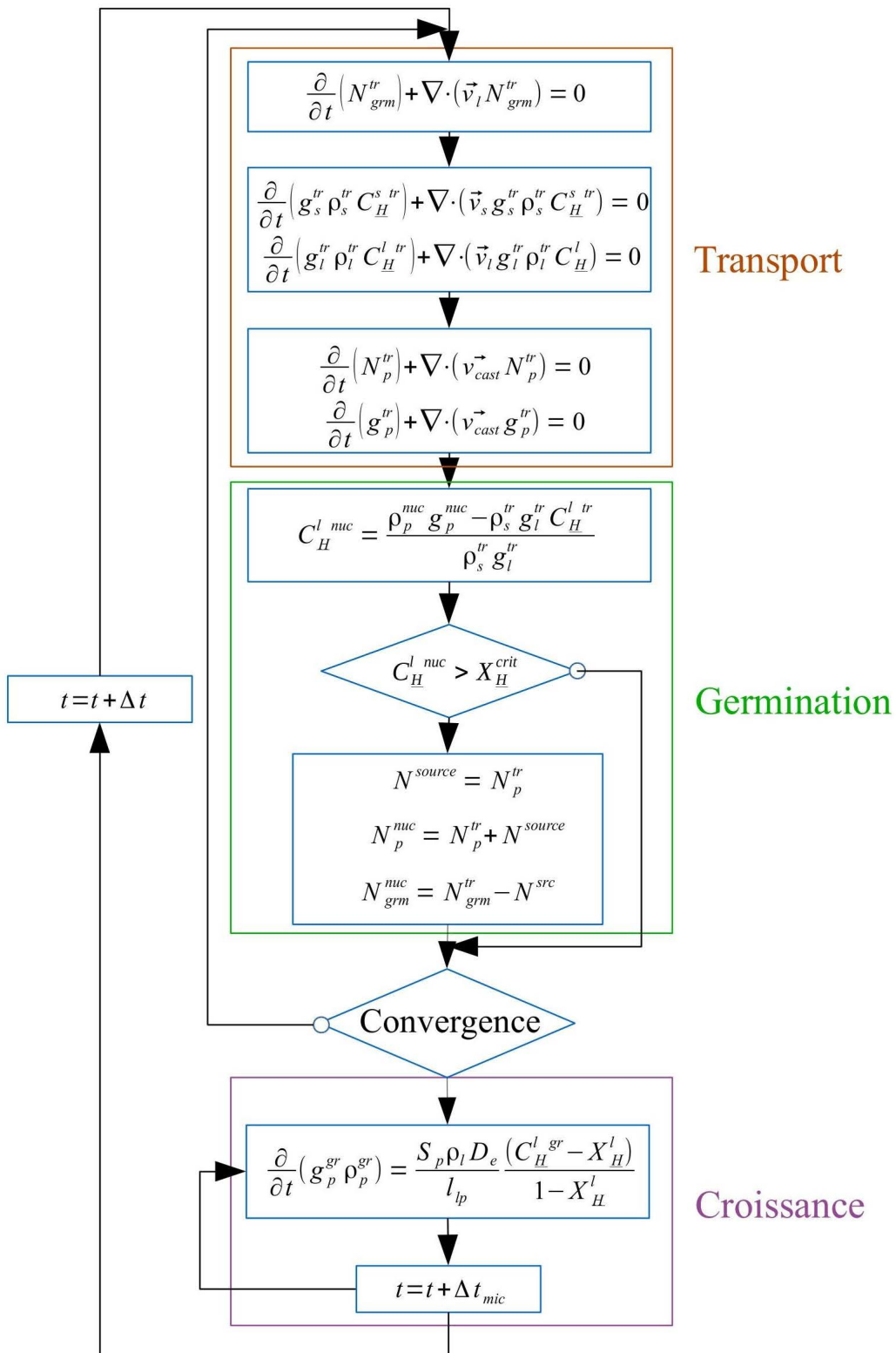


Figure B.1 : Algorithme du calcul de la porosité dans le logiciel Solid.

## Références

**Adler, L.; Rose, J. H. and Mobley, C. (1986).** *Ultrasonic method to determine gas porosity in aluminum alloy castings: Theory and experiment*, J. Appl. Phys. 59 : 336.

**Agarwal, P. K. and O'Neill, B. K. (1988).** *Transport phenomena in multi-particle systems - I. Pressure drop and friction factors: Unifying the hydraulic-radius and submerged-object approaches*, Chem. Eng. Sci. 43 : 2487-2499.

**Anyalebechi, P. (1993).** *An updated review of techniques for determination of hydrogen content in aluminium and its alloys*, Foundry Trade Journal, May 7 : 258-269.

**Anyalebechi, P. N. (1995).** *Analysis of the effects of alloying elements on hydrogen solubility in liquid aluminum alloys*, Scr. Metall. Mater. 33 : 1209-1216.

**Anyalebechi, P. N. (1996).** *Attempt to predict hydrogen solubility limits in liquid multicomponent aluminum alloys*, Scr. Mater. 34 : 513-517.

**Anyalebechi, P. N. (2003).** *Critical review of reported values of hydrogen diffusion in solid and liquid aluminum and its alloys*, Light Met. 2003 : 857-872.

**Appolaire, B. (1999).** *Prise en compte du mouvement des cristaux équiaxes dans la modélisation de la solidification des lingots d'acier coulés en fonderie*, Institut National Polytechnique de Lorraine.

**Appolaire, B.; Combeau, H. and Lesoult, G. (2008).** *Modeling of equiaxed growth in multicomponent alloys accounting for convection and for the globular/dendritic morphological transition*, Mater. Sci. Eng. A 487 : 33-45.

**Arnberg, L.; Backerud, L. and Chai, G., 1996.** *Solidification Characteristics of Aluminum Alloys. Vol. 3. Dendrite Coherency*. American Foundrymen's Society, Inc., 1996,, .

**Association, A. (2006).** *International alloy designations and chemical composition limits for wrought aluminum and wrought aluminum alloys*, The Aluminum Association, Arlington, Virginia .

**Atwood, R. C. and Lee, P. D. (2002).** *A three-phase model of hydrogen pore formation during the equiaxed dendritic solidification of aluminum-silicon alloys*, Metall. Mater. Trans. B 33 : 209-221.

**Atwood, R. C. and Lee, P. D. (2003).** *Simulation of the three-dimensional morphology of solidification porosity in an aluminium-silicon alloy*, Acta Mater. 51 : 5447-5466.

**Atwood, R. C.; Sridhar, S. and Lee, P. D. (1999).** *Equations for nucleation of hydrogen gas pores during solidification of aluminum seven weight percent silicon alloy*, Scr. Mater. 41 : 1255-1259.

- Atwood, R. C.; Sridhar, S.; Zhang, W. and Lee, P. D. (2000).** *Diffusion-controlled growth of hydrogen pores in aluminium-silicon castings: in situ observation and modelling*, Acta Mater. 48 : 405-417.
- Bedel, M. (2014). *Étude De La Formation Des Structures De Solidification Et Des Macroségrégations En Coulée Semi-Continue D'Aluminium*, Université de Lorraine.
- Bedel, M.; Tveito, K.; Založnik, M.; Combeau, H. and M'Hamdi, M. (2015).** *A model study of the impact of the transport of inoculant particles on microstructure formation during solidification*, Comput. Mater. Sci. 102 : 95-109.
- Bernard, D.; Nielsen, y.; Salvo, L. and Cloetens, P. (2005).** *Permeability assessment by 3D interdendritic flow simulations on microtomography mappings of Al-Cu alloys*, Mater. Sci. Eng. A 392 : 112-120.
- Carlson, K. D.; Lin, Z. and Beckermann, C. (2007).** *Modeling the effect of finite-rate hydrogen diffusion on porosity formation in aluminum alloys*, Metall. Mater. Trans. B Process Metall. Mater. Process. Sci. 38 : 541-555.
- Carpentier, D. (1994). *Modélisation de la formation des microporosités lors de la solidification d'alliages à base d'aluminium*, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Charbon, C. and Rappaz, M. (1993).** *3D probabilistic modelling of equiaxed eutectic solidification*, Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering 1 : 455.
- Chauchat, J. (2007). *Contribution à la modélisation diphasique du transport sédimentaire en milieux côtiers et estuariens*, Université de Caen.
- Chen, Y.-J. (2009).** *Relationship between Ultrasonic Characteristics and Relative Porosity in Al and Al-XSi Alloys*, Mater. Trans. 50 : 2308-2313.
- Chen, Y.-J. (2010).** *Ultrasonic Evaluation of the Quality of A356.2 Alloy by Fluxing Treatment*, Mater. Trans. 51 : 803-809.
- Couturier, G. and Rappaz, M. (2006).** *Modeling of Porosity Formation in Multicomponent Alloys in the Presence of Several Dissolved Gases and Volatile Solute Elements*, Simul. Alum. Shape Cast. Process. : 143-152.
- Daloz, D.; Combeau, H.; Joly, A.; Lesoult, G.; Grün, G.; Jarry, P. and Commet, B. (2002).** *Etude sur l'origine de la macroségrégation centrale dans la coulée semi-continue d'aluminium.*, .
- Dantzig, J. A. and Rappaz, M., 2009. *Solidification*. EPFL press, .
- Dispinar, D. and Campbell, J. (2004).** *Critical assessment of reduced pressure test. Part 1: Porosity phenomena*, Int. J. Cast Met. Res. 17 : 280-286.
- Du, Q.; Eskin, D. G. and Katgerman, L. (2007).** *Modeling macrosegregation during direct-chill casting of multicomponent aluminum alloys*, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 38 : 180-189.

- Emadi, D. and Gruzleski, J. (1994).** *Effects of Casting and Melt Variables on Porosity in Directionally-Solidified Al-Si Alloys (94-95)*, Transactions of the American Foundrymen's Society 102 : 307-312.
- Emadi, D.; Gruzleski, J. E. and Toguri, J. M. (1993).** *The effect of na and Sr modification on surface tension and volumetric shrinkage of A356 alloy and their influence on porosity formation*, Metall. Trans. B 24 : 1055-1063.
- Escobar de Obaldia, E. and Felicelli, S. D. (2007).** *Quantitative prediction of microporosity in aluminum alloys*, J. Mater. Process. Technol. 191 : 265-269.
- Eskin, D. G., 2008.** *Physical metallurgy of direct chill casting of aluminum alloys*. CRC press, .
- Eskin, D. G.; Savran, V. I. and Katgerman, L. (2005).** *Effects of melt temperature and casting speed on the structure and defect formation during direct-chill casting of an Al-Cu Alloy*, Metall. Mater. Trans. A 36 : 2561-2561.
- Eskin, D. G.; Zuidema, J.; Savran, V. I. and Katgerman, L. (2004).** *Structure formation and macrosegregation under different process conditions during DC casting*, Mater. Sci. Eng. A 384 : 232-244.
- Fang, Q. and Granger, D. (1989).** *Porosity formation in modified and unmodified A356 alloy castings*, AFS Trans 97 : 989-1000.
- Felberbaum, M. (2010).** *Porosity in Aluminum Alloys : Visualization , Characterization , and Modeling*, .
- Felberbaum, M.; Landry-Désy, E.; Weber, L. and Rappaz, M. (2011).** *Effective hydrogen diffusion coefficient for solidifying aluminium alloys*, Acta Mater. 59 : 2302-2308.
- Felberbaum, M. and Rappaz, M. (2011).** *Curvature of micropores in Al-Cu alloys: An X-ray tomography study*, Acta Mater. 59 : 6849-6860.
- Ferreira, I. L.; Lins, J. F. C.; Moutinho, D. J.; Gomes, L. G. and Garcia, A. (2010).** *Numerical and experimental investigation of microporosity formation in a ternary Al-Cu-Si alloy*, J. Alloys Compd. 503 : 31-39.
- Finn, T. L.; Chu, M. G. and Bennon, W. D. (1992).** *The Influence of Mushy Region Microstructure on Macrosegregation in Direct Chill Cast Aluminum-Copper Round Ingots*, Micro/Macro Scale Phenom. Solidif. 139 : 17-24.
- Flemings, M. C. and Nereo, G. (1967).** *Macrosegregation. Part. 1*, AIME Met Soc Trans 239 : 1449-1461.
- Frisvold, F. (1990).** *Filtration of aluminium: theory, mechanisms, and experiments*, .

- Glenn, A.; Russo, S. and Paterson, P. (2003).** *The effect of grain refining on macrosegregation and dendrite arm spacing of direct chill cast AA5182*, Metallurgical and Materials Transactions A 34 : 1513-1523.
- Grandfield, J. F. and McGlade, P. T. (1996).** *DC casting of aluminium: Process behaviour and technology*, Mater. Forum 20 : 29-51.
- Hangai, Y.; Saito, K.; Utsunomiya, T.; Kuwazuru, O. and Yoshikawa, N. (2014).** *Fabrication and compression properties of functionally graded foam with uniform pore structures consisting of dissimilar A1050 and A6061 aluminum alloys*, Mater. Sci. Eng. A 613 : 163-170.
- Harvey, J. P. and Chartrand, P. (2010).** *Modeling the hydrogen solubility in liquid aluminum alloys*, Metall. Mater. Trans. B Process Metall. Mater. Process. Sci. 41 : 908-924.
- Huang, J.; Conley, J. G. and Mori, T. (1998).** *Simulation of microporosity formation in modified and unmodified A356 alloy castings*, Metall. Mater. Trans. B 29 : 1249-1260.
- Hutt, J. and St John, D. (1998).** *The origins of the equiaxed zone-Review of theoretical and experimental work*, International Journal of Cast Metals Research 11 : 13-22.
- Ionescu, C. and Necula, H. (2009).** *Calcul Des Propriétés Thermophysiques Des Fluides Frigoporteurs Diphasiques*, U.P.B. Sci. Bull. Ser. C 71.
- Ishii, M. (1977).** *One-dimensional drift-flux model and constitutive equations for relative motion between phases in various two-phase flow regimes*, .
- Jalanti, T. (2000).** *Etude et modélisation de la macroségrégation dans la coulée semi-continue des alliages d'aluminium*, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne.
- Karagadde, S.; Sundarraj, S. and Dutta, P. (2009).** *Modeling growth of hydrogen bubbles in aluminum castings using the level-set method*, Scr. Mater. 61 : 216-219.
- Karema, H. and Lo, S. (1999).** *Efficiency of interphase coupling algorithms in fluidized bed conditions*, Comput. Fluids 28 : 323-360.
- Khajeh, E. and Maijer, D. M. (2010).** *Physical and numerical characterization of the near-eutectic permeability of aluminum-copper alloys*, Acta Mater. 58 : 6334-6344.
- Kim, J. R. and Abbaschian, R. (2011).** *Influence of solidification variables on the microporosity formation on Al-Cu (4.5 wt alloy with axial heat processing*, J. Mater. Sci. 46 : 6213-6223.
- Kubo, K. and Pehlke, R. D. (1985).** *Mathematical modeling of porosity formation in solidification*, Metall. Trans. B 16 : 359-366.
- Lee, P. and Hunt, J. (1997a).** *Hydrogen porosity in directional solidified aluminium-copper alloys: in situ observation*, Acta Mater. 45 : 4155-4169.

- Lee, P. and Hunt, J. (1997b).** *Measuring the nucleation of hydrogen porosity during the solidification of aluminium-copper alloys*, Scr. Mater. 36 : 399-404.
- Lee, P. D.; Atwood, R. C.; Dashwood, R. J. and Nagaumi, H. (2002).** *Modeling of porosity formation in direct chill cast aluminum-magnesium alloys*, Mater. Sci. Eng. A 328 : 213-222.
- Lee, P. D. and Hunt, J. D. (2001).** *Hydrogen porosity in directionally solidified aluminium-copper alloys: A mathematical model*, Acta Mater. 49 : 1383-1398.
- Lesoult, G.; Albert, V.; Appolaire, B.; Combeau, H.; Daloz, D.; Joly, A.; Stomp, C.; Grün, G. and Jarry, P. (2001).** *Equi-axed growth and related segregations in cast metallic alloys*, Science and Technology of Advanced Materials 2 : 285-291.
- Liao, H.; Huang, W.; Wang, Q. and Jia, F. (2014).** *Effects of Strontium, Magnesium Addition, Temperature Gradient, and Growth Velocity on Al-Si Eutectic Growth in a Unidirectionally-solidified Al-13wt% Si Alloy*, J. Mater. Sci. Technol. 30 : 146-153.
- Liu, H.; Bouchard, M. and Zhang, L. (1995).** *An Experimental Study of Hydrogen Solubility in Liquid Aluminum*, J. Mater. Sci. 30 : 4309-4315.
- Liu, L.; Samuel, M.; Samuel, F. H.; Doty, H. W. and Valtierra, S. (2003).** *The influence of strontium on porosity formation in Al-Si alloys*, J. Mater. Sci. 38 : 1255-1267.
- Ludwig, A. and Wu, M. (2002).** *Modeling of globular equiaxed solidification with a two-phase approach*, Metall. Mater. Trans. A 33 : 3673-3683.
- Meidani, H. (2013).** *Phase-field modeling of micropore formation in a solidifying alloy*, .
- Meidani, H.; Desbiolles, J. L.; Jacot, a. and Rappaz, M. (2012).** *Three-dimensional phase-field simulation of micropore formation during solidification: Morphological analysis and pinching effect*, Acta Mater. 60 : 2518-2527.
- Melo, M. L. N. M.; Rizzo, E. M. S. and Santos, R. G. (2004).** *Numerical model to predict the position, amount and size of microporosity formation in Al - Cu alloys by dissolved gas and solidification shrinkage*, Mater. Sci. Eng. A 374 : 351-361.
- Nadella, R.; Eskin, D. and Katgerman, L. (2007).** *Role of grain refining in hot cracking and macrosegregation in direct chill cast AA 7075 billets*, Mater. Sci. Technol. 23 : 1327-1335.
- Nadella, R.; Eskin, D. G.; Du, Q. and Katgerman, L. (2008a).** *Macrosegregation in direct-chill casting of aluminium alloys*, Prog. Mater. Sci. 53 : 421-480.
- Nadella, R.; Eskin, D. G. and Katgerman, L. (2008b).** *Effect of grain refinement on structure evolution, "floating" grains, and centerline macrosegregation in direct-chill cast AA2024 alloy Billets*, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 39 : 450-461.
- Nagaumi, H. (2001).** *Prediction of porosity contents and examination of porosity formation in Al-4.4%Mg DC slab*, Sci. Technol. Adv. Mater. 2 : 49-57.



- Ni, J. and Beckermann, C. (1991).** *A volume-averaged two-phase model for transport phenomena during solidification*, Metall. Trans. B 22 : 349-361.
- Ni, J. and Beckermann, C. (1993).** *Modeling of globulitic alloy solidification with convection.pdf*, J. Mater. Process. Manuf. Sci. 2 : 217-231.
- Nielsen, .; Mo, a.; Appolaire, B. and Combeau, H. (2001).** *Measurements and modeling of the microstructural morphology during equiaxed solidification of Al-Cu alloys*, Metall. Mater. Trans. A 32 : 2049-2060.
- Niyama, E.; Uchida, T. and Morikawa, M. (1981).** *Predicting shrinkage in large steel castings from temperature gradient calculations*, Int. Cast Met. J. 6 : 16-22.
- Pequet, C.; Rappaz, M. and Gremaud, M. (2002).** *Modeling of microporosity, macroporosity, and pipe-shrinkage formation during the solidification of alloys using a mushy-zone refinement method: Applications to aluminum alloys*, Metall. Mater. Trans. A 33 : 2095-2106.
- Pham Van Bang, D.; Lefrançois, E.; Ovarlez, G. and Bertrand, F. (2006). *Mri experimental and 1d fe-fct numerical investigation of the sedimentation and consolidation*, 97.
- Poirier, D. and Ocansey, P. (1993).** *Permeability for flow of liquid through equiaxial mushy zones*, Mater. Sci. Eng. A 171 : 231-240.
- Poirier, D. R.; Yeum, K. and Maples, a. L. (1987).** *A thermodynamic prediction for microporosity formation in aluminum-rich Al-Cu alloys*, 18 : 1979-1987.
- Ransley, C. and Neufeld, H. (1948).** *The solubility of hydrogen in liquid and solid aluminium*, Journal of the Institute of Metals 74 : 599-620.
- Ransley, C. and Talbot, D. (1955).** *Wasserstoff-Porositat in Metallen unter besonderer Berùcksichtigung des Aluminiums und seiner Legierungen*, Zeitschrift fur Metallkunde 46 : 328-337.
- Rappaz, M. and Gandin, C.-A. (1993).** *Probabilistic modelling of microstructure formation in solidification processes*, Acta Metall. Mater. 41 : 345-360.
- Reddy, A. and Beckermann, C. (1995).** *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 Ingot*, Materials Processing in the Computer Age II : 89-102.
- Rousset, P. ; Rappaz, M. ; Hannrt, B. (1995).** *Modeling of Inverse Segregation and Porosity Formation in Directionally Dolidified Aluminum Alloys*, Metallurgical and Materials Transactions A, 26A : 2349
- Sabau, A. and Viswanathan, S. (2008).** *Porosity prediction in aluminum A356 alloy castings*, Oak Ridge, Tennessee : 597-602.

**Saikawa, S.; Nakai, K.; Sugiura, Y. and Kamio, A. (1999).** *Effect of hydrogen gas content on generation of porosity in Al-Li casting alloys*, Mater. Trans. 40 : 57 to 63.

Sargent, M. (1989). , Brunel University.

**Sigworth, G. K. and Engh, T. A. (1982).** *Chemical and kinetic factors related to hydrogen removal from aluminum*, Metall. Trans. B Trans. 13B : 447-460.

**Suyitno; Eskin, D. G. and Katgerman, L. (2006).** *Structure observations related to hot tearing of Al-Cu billets produced by direct-chill casting*, Mater. Sci. Eng. A 420 : 1-7.

**Salvo, L. ; Cloetens, P. ; Maire, E. ; Zabler, S. ; Blandin, J. J. ; Buffière, J. Y. ; Ludwig, W. ; Boller, E. ; Bellet, C. and Josserond C. (2003).** *X-ray micro-tomography an attractive characterisation technique in materials science*, Nuclear instruments and methods in physics research section B: Beam interactions with materials and atoms. 200 : 273-286.

**Tiedje, N. S.; Taylor, J. a. and Easton, M. a. (2012).** *Feeding and distribution of porosity in cast Al-Si alloys as function of alloy composition and modification*, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 43 : 4846-4858.

Tronche, A. (2001). *Investigation and modelling of inoculation of aluminium by TiC*, University of Cambridge.

**Vand, V. (1948).** *Viscosity of solutions and suspensions. I. Theory*, The Journal of Physical Chemistry 52 : 277-299.

Voller, V. and Sundarraj (1995). *A model of inverse segregation: the role of microporosity*. International Journal of Heat and Mass Transfer 38 : 1009-1018

**Vreeman, C. J. and Incropera, F. P. (2000).** *The effect of free-floating dendrites and convection on macrosegregation in direct chill cast aluminum alloys Part II: Predictions for Al-Cu and Al-Mg alloys*, Int. J. Heat Mass Transf. 43 : 687-704.

**Vreeman, C. J.; Krane, M. J. M. and Incropera, F. P. (2000).** *The effect of free-floating dendrites and convection on macrosegregation in direct chill cast aluminum alloys Part I: Model development*, Int. J. Heat Mass Transf. 43 : 677-686.

**Vreeman, C. J.; Schloz, J. D. and Krane, M. J. M. (2002).** *Direct Chill Casting of Aluminum Alloys: Modeling and Experiments on Industrial Scale Ingots*, J. Heat Transfer 124 : 947.

**Weckman, D. C. and Niessen, P. (1982).** *A Numerical Simulation of the D.C. Continuous Casting Process Including Nucleate Boiling Heat Transfer*, Metall. Trans. B 13B : 593-602.

**Yao, L.; Cockcroft, S.; Reilly, C. and Zhu, J. (2012).** *Factors affecting the nucleation kinetics of microporosity formation in aluminum alloy A356*, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 43 : 1004-1016.

**Yao, L.; Cockcroft, S.; Zhu, J. and Reilly, C. (2011).** *Modeling of microporosity size*

*distribution in aluminum alloy A356*, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 42 : 4137-4148.

Yeoh, G. H. and Tu, J., **2009**. *Computational techniques for multiphase flows*. Elsevier, .

Založnik, M. (**2006**). *Modeling of Macrosegregation in Direct Chill Casting*, .

**Založnik, M. and Combeau, H. (2010)**. *An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part I - Model and solution scheme*, Comput. Mater. Sci. 48 : 1-10.

**Založnik, M.; Kumar, A.; Combeau, H.; Bedel, M.; Jarry, P. and Waz, E. (2011)**. *Influence of transport mechanisms on macrosegregation formation in direct chill cast industrial scale aluminum alloy ingots*, Adv. Eng. Mater. 13 : 570-580.

**Zhang, L.; Eskin, D. G.; Miroux, a.; Subroto, T. and Katgerman, L. (2012)**. *Effect of inlet geometry on macrosegregation during the direct chill casting of 7050 alloy billets: experiments and computer modelling*, IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng. 33 : 012019.

# **Modélisation de la formation des structures et des microporosités durant la solidification d'alliages d'aluminium**

## **Résumé**

Cette thèse s'inscrit dans le projet PRINCIPIA (PRocédés INdustriels de Coulée Innovants Pour l'Industrie Aéronautique) de l'ANR MATETPRO (Matériaux et Procédés pour des Produits Performants). L'objectif de ce projet est la promotion de nouveaux alliages aluminium-cuivre-lithium à destination de l'industrie aéronautique afin d'apporter une alternative aux composites. Cependant, ces alliages sont sujet à une importante porosité pour deux raisons : une forte solubilité à l'hydrogène et une facilité d'oxydation. Dans ce projet, le but de la thèse était d'établir un modèle de prédiction de la porosité à l'échelle du produit. La porosité se forme lors de la solidification de l'alliage à cause d'une plus faible solubilité de l'hydrogène dans le solide. La teneur en hydrogène dans la phase liquide va augmenter par ségrégation et provoquer la nucléation des pores. Il est donc nécessaire de prendre en compte la solidification dans la modélisation de la porosité. De plus, la composition locale modifie la cinétique de croissance des pores et la microstructure exerce une contrainte mécanique sur les pores qui modifie leur équilibre chimique. Après une première partie consacrée à améliorer les connaissances sur les phénomènes de transport dans la coulée semi-continue d'aluminium, nous avons modélisé la formation de porosité en se basant sur les modèles disponibles. Le modèle a reproduit l'inhomogénéité de la porosité observée expérimentalement sur une plaque d'alliage aluminium-magnésium. L'analyse nous a montré que la limitation de la croissance par le temps de diffusion de l'hydrogène était responsable de ce profil particulier. La densité volumique des pores est critique pour la limitation de la croissance par la diffusion de l'hydrogène. En fonction de la densité, la croissance passe d'une croissance limitée à une croissance non limitée.

**Mots-clés :** porosité, solidification, coulée semi-continue, macroségrégation, modélisation

## **Modeling of Structure and Microporosity Formation during Solidification of Aluminum Alloys**

### **Abstract**

This thesis is part of the project PRINCIPIA (PRocédés INdustriels de Coulée Innovants Pour l'Industrie Aéronautique) of the ANR MATEPRO (MATériaux Et PRocédés pour des produits performants). The goal of this project is the promotion of new aluminum-copper-lithium alloys for the aeronautic industry in order to propose an alternative to composite materials. Unfortunately, these alloys are highly sensitive to the appearance of porosity during the alloy creation process. It is due to a high hydrogen solubility and oxidation. Inside this project, my work was to establish a porosity model at the scale of the ingot. Porosity starts to develop during the solidification process due to a lower solubility of hydrogen in the solid phase. Hydrogen content in liquid phase increases by segregation and leads to pores' nucleation. Thus, it is necessary to take into account solidification for porosity-modeling purposes. It is even more important because the alloys' local composition alters the pores' growth and the microstructure modifies the chemical equilibrium by pinching effect. After a first part dedicated to general improvement of knowledge about transport phenomena in DC casting, the porosity formation model was developed based on model found in literature. The model was able to reproduce the inhomogeneity experimentally observed in an aluminum-magnesium ingot. This profile is explained by the hydrogen diffusion time which limits the pore growth. The pore density is critical for the growth limitation by hydrogen diffusion. Depending on the density, the growth switch from a non limited to a limited growth.

**Keywords:** porosity, solidification, DC casting, macrosegregation, modeling