



Etude de l'influence de la convection naturelle et forcée sur le processus de la solidification : cas d'un alliage métallique binaire.

Lakhdar Hachani

► To cite this version:

Lakhdar Hachani. Etude de l'influence de la convection naturelle et forcée sur le processus de la solidification : cas d'un alliage métallique binaire.. Autre. Université de Grenoble; 352 Université Hadj Lakhdar de Batna, 2013. Français. NNT : 2013GRENI067 . tel-00949060

HAL Id: tel-00949060

<https://theses.hal.science/tel-00949060>

Submitted on 19 Feb 2014

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.



UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **MATERIAUX, MECA, GENIE CIVIL,
ELECTROCHIMIE**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Et

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ HADJ LAKHDAR DE BATNA, ALGERIE

Spécialité : **Mécanique**

Présentée par

Lakhdar HACHANI

Thèse dirigée par **Pr. Yves FAUTRELLE** et **Pr. Aissa
BELGACEM-BOUZIDA**

codirigée par **Dr. Kader ZAIDAT**

préparée au sein du **Laboratoire SIMaP-EPM**
dans l'**École Doctorale IMEP2** (Ingénierie - Matériaux,
Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés, Production)
et de l'**École Doctorale de Mécanique** (Université Hadj Lakhdar
Batna)

Etude de l'influence de la convection naturelle et forcée sur le processus de la solidification : cas d'un alliage métallique binaire

Thèse soutenue publiquement le « **8 Octobre 2013** »,
devant le jury composé de :

M. Henri NGUYEN-THI

Professeur à l'université d'Aix-Marseille, France (Président)

M. Michel RAPPAZ

Professeur à l'école polytechnique de Lausanne, Suisse (Rapporteur)

M. Ahcène BOUABDALLAH

Professeur à l'université des Sciences et de Technologie Houari
Boumediene, Algérie (Rapporteur)

M. Charles-André GANDIN

Chercheur CNRS, MINES Paris Tech, France (Examinateur)



*Je dédié ce travail. A la mémoire de ma mère. Que Dieu ait son âme en sa sainte
miséricorde et l'accueille en son vaste paradis. A mon père. A ma femme, mes
deux fils, mes frères et mes sœurs*

« *Les théories passent, les expériences restent.* »

(*Gérard LESOULT*)

Remerciements

Aucun manuscrit de thèse ne serait complet sans les mots de remerciements apportés aux personnes qui ont contribué à son accomplissement. Car une chose est sûre, tout au long de cette période de travail je n'étais pas seul derrière ce projet de thèse. De nombreuses personnes ont été à mes côtés, m'ont encouragé et m'ont finalement aidées à accomplir un travail difficile.

*Mes plus vifs remerciements vont à monsieur **Yves FAUTRELLE** pour son soutien inconditionnel dans tout ce que j'ai entrepris. Vous m'avez toujours fait confiance et vous avez su diriger mon travail avec une grande compétence. Merci pour tout Yves.*

*Je prie monsieur **Aissa BELGACEM-BOUZIDA** d'accepter ma sincère reconnaissance pour avoir assuré la direction de cette thèse du côté Algérien. Je tiens à le remercier tout particulièrement pour son suivi assidu de mon travail.*

*Je remercie également monsieur **Kader ZAIDAT** qui a été mon Co-directeur de thèse du côté Français et qui a fait preuve d'une entière disponibilité pendant toute la durée de ce travail. C'est auprès de lui que j'ai acquis l'ensemble des connaissances techniques et scientifiques. Je lui exprime également toute ma gratitude pour son aide considérable lors de la rédaction de mon manuscrit.*

*J'adresse mes sincères remerciements à chacun des membres du jury et plus particulièrement à messieurs **Ahcene BOUABDELLAH** et **Michel RAPPAZ** pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de ce travail en acceptant d'en être les rapporteurs. Je tiens à remercier monsieur **Charles-André GANDIN** pour m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail et accepté de participer à mon jury de thèse. Je remercie également monsieur **Henri N'GUYEN THI** d'avoir présidé ce jury de spécialistes.*

*Mes remerciements vont également à monsieur **Abdallah NOURI** pour ses conseils et son soutien tout au long de mon travail. Il m'a initié aux problèmes de la recherche et a été pour moi un guide avisé autant que patient.*

*Je voudrais remercier monsieur **Bachir SAADI** pour m'avoir appris les bases du fonctionnement du dispositif expérimental que nous avons utilisé, mais aussi pour m'avoir*

montré qu'il était humainement possible de ne pas dormir sur des temps très longs et de pouvoir encore assurer ce fonctionnement.

*Je remercie bien évidemment monsieur **Xiao Dong WANG** pour l'ensemble du travail qu'il a mené précédemment, monsieur **Thierry DUFFAR** pour les discussions scientifiques assez bénéfiques pour moi, **Olga BUDENKOVA** pour toutes les astuces FLUENT, **Roland ERNST** pour la simulation sous COMSOL, **Redouane BOUSSAA** pour l'immense aide et le souffle nouveau qu'il a su apporter. Tous mes vœux de succès pour ton doctorat.*

*Je remercie sincèrement l'équipe technique d'EPM pour son aide constante durant mes travaux expérimentaux. J'adresse plus particulièrement mes remerciements à **Christian GARNIER** dont la disponibilité et la rigueur sont sans égales, **Gabriel FOURNIER**, **Denis BON**, et **Patrick PETITPAS** pour leur aide déterminante.*

*J'adresse mes remerciements également à tout le personnel du laboratoire EPM, la directrice **Jacqueline ETAY** et la gestionnaire **Khadija RASSOULI** et tous les permanents, thésards, et autre, qui m'ont permis de réaliser mon travail de thèse dans un climat chaleureux.*

*Je tiens à remercier monsieur **Bernard RATTONI** (CEA-Saclay, France) pour son aide et ses conseils au cours des caractérisations de composition par rayons X.*

Je ne saurai oublier ma famille ainsi que tous mes amis qui m'ont toujours soutenu durant ces années d'études.

Merci à tout celles et ceux que j'aurais pu oublier mais qui ont eux aussi apporté une contribution à l'accomplissement de cette thèse.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	1
-----------------------------	---

CHAPITRE I : INTRODUCTION SUR LA SOLIDIFICATION

I.1. NOTIONS DE SOLIDIFICATION DES ALLIAGES METALLIQUES.....	7
I.1.1. Diagramme de solidification d'un alliage métallique binaire	7
I.1.2. Solidification, diagramme de phase et ségrégation	9
I.1.3. Microségrégation et fraction de solide	14
I.2. MACROSEGREGATION.....	16
I.2.1. Macroségrégation induite par l'écoulement du liquide	18
I.2.2. La macroségrégation négative.....	21
I.2.3. La macroségrégation positive	21
I.2.4. La refusion	21
I.2.5. La ségrégation inverse.....	22
I.2.6. Macroségrégation due à l'écoulement généré par les forces thermosolutales ...	23
I.2.7. Les canaux ségrégés	24
I.2.8. Macroségrégation provoquée par le mouvement du solide.....	26
I.3. STRUCTURE DE SOLIDIFICATION.....	28
I.3.1. Morphologie du front de solidification	28
I.3.2. Morphologie des structures solidifiées	29
I.3.3. Notion d'interface solide-liquide et d'instabilité	30
I.3.3.1. Notion de germination.....	30
I.3.3.2. Instabilité de l'interface.....	31
I.3.4. Développement des microstructures dendritiques	34
I.3.4.1. Cinétique de la croissance	34
I.3.4.2. Espacements primaires et secondaires des bras de dendrite.....	38

I.4.	TRANSITION COLONNAIRE-EQUIAXE	39
I.3.1.	Modèle de blocage mécanique pour la CET	41
I.3.2.	Modèle de blocage chimique pour la CET	44
I.5.	CONCLUSION PARTIELLE.....	48
	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE I	49

CHAPITRE II : MAGNETO-HYDRO-ENERGETIQUE (MHE) APPLIQUEE A LA SOLIDIFICATION

II.1.	ELECTROMAGNETIQUE ET CONVECTION : PRINCIPES GENERAUX. ..55
II.1.1.	Electromagnétisme
II.1.2.	Equation d'induction
II.1.3.	Paramètres de similitude
II.1.4.	Force de Lorentz
II.1.4.1.	Décomposition en partie moyenne et partie oscillante
II.1.4.2.	Décomposition en partie rotationnelle et irrotationnelle
II.2.	PROCEDES DE BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE
II.2.1.	Champs pulsants (monophasés)
II.2.2.	Champs glissants.....
II.2.3.	Champs tournants
II.3.	RECAPITULATIF DES TRAVAUX MENES SUR L'EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA SOLIDIFICATION DES ALLIAGES METALLIQUES
II.3.1.	Solidification sous champ magnétique en courant continu
II.3.2.	Solidification sous champ magnétique en courant alternatif
II.4.	LES PROCESSUS D'AFFINAGE DES GRAINS PAR FRAGMENTATION DES BRAS DE DENDRITES.....
II.4.1.	La fragmentation des bras de dendrites par refusion locale.....
II.4.2.	Transport des fragments de la zone pâteuse vers le liquide

II.4.3. La survie des fragments	77
II.4.4. La croissance et sédimentation	78
II.4.5. La formation de la structure équiaxe	78
II.4.6. Affinage des grains équiaxes	78
II.5. FACTEURS D'INFLUENCES.....	80
II.5.1. La vitesse de convection	80
II.5.2. Le mode d'écoulement	80
II.5.3. La concentration en élément d'alliage	80
II.5.4. La décélération de la vitesse de refroidissement.....	80
II.6. CONCLUSION PARTIELLE.....	81
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE II.....	82

CHAPITRE III : DESCRIPTION DE L'INSTALLATION EXPERIMENTALE : AFRODITE

III.1. HISTORIQUE DE L'INSTALLATION EXPERIMENTALE : AFRODITE.	89
III.1.1. Benchmark de base : Le dispositif expérimental de Hebditch et Hunt	89
III.1.2. Evolution de l'installation expérimentale AFRODITE	92
III.2. CONFIGURATION	96
III.3. ALLIAGE CHOISI	97
III.3.1. Critères de choix.....	97
III.3.2. Préparation des échantillons	98
III.4. CREUSET	100
III.4.1. Problématique.....	100
III.4.2. Creuset en acier inoxydable (Inox 304 L)	101
III.4.3. Fixation des thermocouples sur le creuset.....	102
III.5. ECHANGEURS THERMIQUES	103

III.6. ISOLATION THERMIQUE DU CREUSET	105
III.6.1. Les pertes thermiques par rayonnement	105
III.6.2. La boîte de Kirchhoff	106
III.7. BRASSEUR ELECTROMAGNETIQUE	108
III.8. LA CIRCULATION DE L'EAU DE REFROIDISSEMENT	110
III.9. LA CHAINE D'ACQUISITION	111
III.10. CONCLUSION PARTIELLE.....	112
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE III	113

CHAPITRE IV : SOLIDIFICATION SOUS L'EFFET DE LA CONVECTION THERMOSOLUTALE

IV.1. PROCESSUS EXPERIMENTAL.....	117
IV.1.1. Etape 1 : La fusion de la charge	117
IV.1.2. Etape 2 : Première étape de stabilisation.....	118
IV.1.3. Etape 3 : Application d'une différence de température moyenne.....	119
IV.1.4. Etape 4 : Deuxième étape de stabilisation.....	119
IV.1.5. Etape 5 : Solidification	119
IV.2. ANALYSE GLOBALE DES CONDITIONS EXPERIMENTALES	120
IV.2.1. Configuration des mesures de température effectuées	120
IV.2.2. Etalonnage des thermocouples	121
IV.2.3. Evolution des isothermes au niveau des parois d'échangeurs en cuivre.....	123
IV.2.4. Analyse thermique des flux échangés	124
IV.2.5. Différence de température effective	125
IV.2.6. Vérification du comportement adiabatique du système	126
IV.3. EXPERIENCES DE SOLIDIFICATION REALISEES SUR L'ETAIN PUR... 128	

IV.3.1. Résultats pour ‘expérience Sn (<i>Réf LH28</i>)	128
IV.3.2. Evolution du stockage de la chaleur dans le lingot	134
IV.4. EXPERIENCES REALISEES SUR L’ALLIAGE ETAIN-PLOMB	137
IV.4.1. Expérience de solidification de l’alliage Sn-3wt.%Pb référencée (<i>LHI</i>)	138
IV.4.1.1. Carte de température et gradient thermique local.....	139
IV.4.1.2. Evolution de la puissance thermique échangée	140
IV.4.1.3. Estimation de la chaleur latente de l’alliage (Sn-3wt.%Pb)	141
IV.4.1.4. Estimation du temps de passage du front de solidification	143
IV.4.1.5. Estimation de la différence de température effective	145
IV.4.2. Mesure de la vitesse projetée sur le gradient de température.....	146
IV.4.3. Analyses post mortem	151
IV.4.3.1. Structure des grains	151
IV.4.3.2. Application du critère de Hunt pour la transition colonnaire-équiaxe (CET)	154
IV.4.3.3. Matrice de concentration par dissolution chimique.....	157
IV.4.3.4. Radiographie X	159
IV.4.3.5. Radiographie X sur les coupes transversales.....	167
IV.4.3.6. Structure des grains et fraction eutectiques	170
IV.4.4. Expériences de solidification réalisées sur l’alliage Sn-10wt.%Pb.....	172
IV.4.4.1. Effet de la variation de la concentration.....	173
IV.4.4.2. Effet de la stratification sur le processus de la solidification	178
IV.4.4.3. Effet de la variation de la vitesse de refroidissement	184
IV.5. CONCLUSION PARTIELLE	188
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE IV.....	189

CHAPITRE V : SOLIDIFICATION SOUS L’EFFET DE LA CONVECTION FORCEE : BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE

V.1. CARACTERISATION DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE.	192
V.1.1. Evolution du champ magnétique	192
V.1.2. Caractérisation de la dynamique de l’écoulement d’un bain de Ga-In-Sn sous champ magnétique glissant	197
V.2. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LE CHAMP DE TEMPERATURE	205
V.3. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA STRUCTURE DES GRAINS.....	215
V.4. CRITERE DE FLEMINGS SUR LA REFUSION LOCALE DES BRAS DENDRITIQUE	218
V.5. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA MESO ET LA MACROSEGREGATION.....	224
V.6. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA MORPHOLOGIE DES CANAUX SEGREGES	228
V.7. CONCLUSION PARTIELLE.....	232
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE V	234

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	238
---	------------

ANNEXES

ANNEXE I	247
ANNEXE II.....	249
ANNEXE III	261

NOMENCLATURE DES PRINCIPALES NOTATIONS UTILISEES

Gr	Nombre de Grashof.
Gr_m	Nombre de Grashof magnétique.
N	Nombre de sites activés
N_0	Nombre total de sites de germination par unité de volume (m^{-3})
N_f	Nombre de flottaison.
Pe	Nombre de Peclet.
Pr	Nombre de Prandtl.
Re	Nombre de Reynolds.
Rm	Nombre de Reynolds magnétique.
Ta_m	Nombre de Taylor magnétique.
$R\omega$	Paramètre d'écran.
a	Largeur du domaine liquide (m).
A_0	Intensité du vecteur potentiel (T)
B_0	Intensité du champ magnétique (T).
$B = (B_x, B_y, B_z)$	Champ magnétique et ses composantes.
C	Coefficient de réduction.
c	Vitesse du son ($m.s^{-1}$).
CR	Vitesse de refroidissement (K/s)
C_m	Concentration moyenne (% wt).
C_l	Concentration liquide (% wt).
C_s	Concentration solide moyenne (% wt).
C_L	Concentration liquide en rapport avec la courbe de liquidus (% wt).
C_S	Concentration solide en rapport avec la courbe de solidus (% wt).
C_0	Concentration liquide de référence (% wt).
C_S^*	Concentration solide locale d'une couche formée (% wt).
C_l^*	Concentration liquide locale correspondant à une concentration solide C_S^* (% wt)
C_p	Chaleur spécifique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$).
D	Coefficient de diffusion chimique dans le liquide ($m^2.s^{-1}$).

E	Champ électrique.
f	Fréquence (Hz).
f_{PRF}	Fréquence doppler (Hz).
F_m	Force électromagnétique de Laplace-Lorentz.
F_0	Amplitude de la force électromagnétique ($N.m^{-3}$)
f_l	Fraction liquide.
f_s	Fraction solide.
g	Gravité ($m^2.s^{-1}$).
G	Gradient thermique ($K.m^{-1}$).
G_c	Gradient chimique ($wt\%.m^{-1}$).
H	Longueur de référence (m).
I	Courant électrique (A)
J	Densité de courant ($A.m^{-2}$).
K	Nombre d'onde (m^{-1}).
K_I	Courbure de l'interface (m^{-1}).
K_B	Constante de Boltzmann ($J.K^{-1}$).
k	Coefficient de partage.
k_p	Perméabilité de la zone pâteuse de l'alliage considéré
K^*	Nombre d'onde dans un domaine confiné (m^{-1}).
L	Chaleur latente ($J.kg^{-1}$).
l	Longueur d'onde (m).
m	Pente de liquidus ($K.\%^{-1} wt$).
m_{lingot}	Masse du lingot (kg).
$m_{creuset}$	Masse du creuset (kg).
P	Pertes thermique (Watt).
P_c	Capacité calorifique stockée (Watt).
P_e	puissance thermique échangée (Watt).
p	Pression (Pa).
Q	Quantité de chaleur (J).
r	Rayon en coordonnées cylindriques (m).
R	Rayon de courbure (m).
S	Surface (m^2)
t	Temps (s).
T	Température (K).

$\bar{T}$	Température moyenne du lingot (K).
T_0	Température de référence (K).
T_c	Température de nucléation (K).
T_E	Température eutectique (K).
T_L	Température de liquidus (K).
T_S	Température de solidus (K).
T_m, T_F	Température de fusion (K).
T^*	Température de la pointe de dendrite (K).
U	Vitesse de référence ($m.s^{-1}$).
U_s	Vitesse de synchronisme du champ magnétique glissant ($m.s^{-1}$).
U_{mp}	Vitesse moyenne en zone pâteuse ($m.s^{-1}$).
u_l^d	Vitesse du liquide interdendritique ($m.s^{-1}$).
u, v, w	Composantes de la vitesse dans un système de coordonnées (x, y, z) ($m.s^{-1}$).
V	Volume (m^3).
V_T	Vitesse d'avancement du front de solidification ($m.s^{-1}$).
V_0	Volume élémentaire de référence (m^3).
α	Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$).
β_T	Coefficient d'expansion thermique (K^{-1}).
β_S	Coefficient d'expansion solutale ($\%^{-1} wt$).
δ	Epaisseur de peau électromagnétique (m).
δ^*	Epaisseur de peau électromagnétique dans un domaine confiné (m).
Γ	Coefficient de Gibbs-Thomson (K.m).
ΔT	Différence de température expérimentale moyenne (K).
ΔT_0	surfusion totale (K).
ΔT_t	Surfusion thermique (K)
ΔT_c	Surfusion constitutionnelle (K)
ΔT_r	Surfusion de courbure (K)
ΔT^*	Surfusion de la pointe de dendrite (K)
Δt	Pas de temps (s).
$\Delta x, \Delta y$	Pas horizontal et vertical, respectivement (m).
ε	Emissivité.
ρ	Masse volumique ($kg.m^{-3}$).

ρ_0	Masse volumique de référence ($kg.m^{-3}$).
ρ_s	Masse volumique du solide ($kg.m^{-3}$).
ρ_l	Masse volumique du liquide ($kg.m^{-3}$).
ν	Viscosité cinématique du liquide ($m^2.s^{-1}$).
λ	Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$).
λ_1	Espacement primaire des dendrites (m).
λ_2	Espacement secondaire des dendrites (m).
μ	Perméabilité magnétique.
λm	Pas polaire ($rad.m^{-1}$).
ω	Pulsation du champ magnétique ($rad.s^{-1}$).
σ	Conductivité électrique ($\Omega^{-1}.m^{-1}$).
σ_{stefan}	Constante de Stefan ($W.m^{-2}.K^{-4}$).
τ	Pas polaire (m).
τ_{PRF}	Temps entre l'émission et la réception des ondes acoustiques (s).

INTRODUCTION GENERALE

Dans le processus de solidification et de la croissance cristalline, les mouvements hydrodynamiques dans la phase liquide sont toujours présents. Généralement, ces mouvements ont pour origine un rétrécissement pour les alliages métalliques, une dilatation pour les semi-conducteurs, une convection thermosolutale provoquée par la répartition asymétrique de la température et de la concentration, ou une convection forcée entraînée par une force extérieure (un brassage électromagnétique par exemple). L'écoulement dans le bain liquide, a un effet sur le processus de solidification et la qualité du cristal final. Il peut changer les champs de température et de concentration autour de l'interface et par conséquent influencer les macrostructures ainsi que les microstructures obtenues en fin de solidification. Il peut également, changer le sens de la croissance dendritique, changer l'espacement des bras de dendrites (espace interdendritique). A l'échelle macroscopique, durant la solidification les espèces chimiques rejetées sont transportées sous l'effet des mouvements de convection dans la phase liquide. Ces mouvements de convection sont causés par les gradients de masse volumique, eux-mêmes générés par les gradients de température et de concentration en solutés. C'est cette convection thermosolutale qui donne naissance aux macroségrégations (hétérogénéités de concentration à l'échelle de la pièce ou du lingot solidifié), qui vont affecter diverses propriétés (mécaniques, chimiques...). La ségrégation est souvent à l'origine de certains défauts tels que la crique à chaud, les microretassures. Elle engendre aussi dans certains cas une augmentation de l'intervalle de solidification par la présence de poches encore liquide au-dessous de la température du solidus, ce qui peut favoriser des ruptures au niveau de ces zones en fin de solidification. Elle engendre aussi une baisse des propriétés mécaniques : résilience, résistance à la rupture, limite élastique. Ceci est prévisible du fait de la forte corrélation entre les propriétés mécaniques et l'homogénéité de la structure.

Afin d'isoler les phénomènes dus aux mouvements de la convection dans les métaux liquides, le contrôle de ces mouvements s'avère une solution très pertinente et techniquement possible. Ce contrôle de l'écoulement permet la maîtrise de la structure de solidification, ainsi que les défauts liés à la convection, notamment les défauts de ségrégation à différentes échelles. L'utilisation d'un champ électromagnétique pour le contrôle de ces écoulements dans le cas d'alliages métalliques, est devenue un moyen privilégié et a déjà fait l'objet de plusieurs expériences et d'applications industrielles. En effet, avec un champ électromagnétique, il est possible d'agir sur les écoulements sans aucun contact physique (sans pollution). Le brassage est assuré par la force de Lorentz créée par la présence du champ

magnétique et les courants induits dans la phase liquide. La forme ainsi que l'intensité de l'écoulement dépendent uniquement de cette force.

Il est clair, que la possibilité de contrôler les effets de la convection naturelle/forcée sur le processus de la solidification, notamment sur la macroségrégation dans les alliages métalliques, n'a rien d'un sujet purement fondamental, ni d'une construction de l'esprit. Bien au contraire, il s'agit de comprendre en premier lieu les divers phénomènes liés au processus et en second lieu d'apporter des éléments de réponses à l'industrie métallurgique qui est confrontée au quotidien à ces problèmes.

Ce travail entre dans le cadre de la contribution du laboratoire SIMAP/EPM dans le programme MICAST, projet européen ESA/MAP (*Microgravity Application Program « Microstructure formation in CASTing »*), soutenu par l'Agence Spatiale Européenne. Ce programme se situe dans la perspective d'améliorer à terme la maîtrise des microstructures de solidification grâce à un brassage contrôlé obtenu par application de champs magnétiques tournants ou glissants. Son objectif est d'élaborer un modèle global du processus en s'appuyant sur des démarches expérimentales conjointes, dans lesquelles il est envisagé, à terme, de recourir à des expérimentations en microgravité. En effet, alors qu'au sol la convection forcée est couplée de façon complexe à la convection naturelle (thermique et surtout solutale), ainsi qu'aux mouvements de décantation des particules et des cristaux dans le cas de la solidification équiaxe, la microgravité offre une possibilité unique de séparer les mécanismes mis en jeu, en partant d'une situation contrôlée par la diffusion, puis en appliquant des niveaux de brassage croissants.

La contribution de cette thèse s'inscrit dans la continuité des travaux effectués par G. QUILLET, X. D. WANG et B. SAADI à EPM sur l'analyse des effets convectifs lors de la solidification des alliages métalliques. Cette thèse permet leur extension au cas d'un brassage forcé à l'aide d'un champ magnétique glissant. L'étude expérimentale à la fois analytique réalisée au cours de cette thèse, dans laquelle plusieurs essais sur l'effet de la convection thermosolutale dite naturelle et la convection forcée en utilisant plusieurs configuration du brassage électromagnétique couplé aux effets de gravité, pourront également servir à : premièrement définir un moyen de contrôle des mouvements convectifs et par conséquent la maîtrise des structures cristallines finales. Deuxièmement, réduire voire même éliminer les défauts liés à la ségrégation notamment à l'échelle macro. Troisièmement la validation des

modèles numériques qui visent à modéliser la solidification des alliages métalliques et prédire la macroségrégation. Cette thèse se divise en cinq chapitres :

Le premier chapitre, est une bibliographie. Il permet de résumer les différentes notions de base liées au phénomène de solidification et d'établir les bases sur lesquelles se construira le reste du travail. Il permet également de faire un bref état des lieux sur la thématique étudiée, les modèles d'équations et l'intérêt porté à une expérience de validation en solidification.

Le deuxième chapitre, traitera des principes de base de la magnéto-hydro-énergétique (MHE) et son application dans le domaine de la solidification des alliages métalliques. Un récapitulatif des travaux antérieurs numériques et expérimentaux, traitant de l'effet des différentes configurations du brassage électromagnétique sur le processus de la solidification, sera présenté dans ce chapitre.

Le troisième chapitre, sera consacré à la description de l'installation expérimentale utilisée lors de notre travail. Nous décrirons les différentes problématiques et contraintes techniques rencontrées lors de la conception de cette installation, ainsi que le mode de préparation des échantillons et le dépouillement des résultats expérimentaux. Nous traiterons aussi, les différentes incertitudes de mesures liées à l'acquisition de la température, de la détermination des taux d'échanges thermique et la vérification de l'adiabatisme du système thermique.

Le quatrième chapitre, présentera une étude à la fois expérimentale et analytique basée sur l'installation expérimentale décrite dans le troisième chapitre. Trois campagnes de travaux expérimentaux seront traitées. La première, est une série d'expérience réalisée sur l'étain pur, afin de vérifier la validité de notre dispositif expérimental et de vérifier également s'il répond aux objectifs envisagés. La deuxième campagne s'intéresse à l'effet de la convection thermosolutale sur le processus de solidification de l'alliage étain-plomb avec une variation de plusieurs paramètres expérimentaux (vitesse de refroidissement et concentrations initiales). Plusieurs aspects seront abordés: thermique, dynamique, structure cristalline et homogénéité de concentration (ségrégation). La troisième étudiera l'effet de la stratification de l'élément solutale (plomb) sur le processus de solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Nous présenterons, également dans ce chapitre, les résultats obtenus à partir des analyses post-mortem dans le but de déterminer, premièrement la distribution locale du soluté en utilisant la technique de dissolution chimique couplée à l'ICP (*Plasma à Couplage Inductif*), et deuxièmement, les différentes morphologies de ségrégations par radiographie X.

Le cinquième chapitre, sera focalisé sur l'effet de la convection forcée générée par l'application d'un champ magnétique glissant, sur le processus de solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Trois configurations selon le sens de l'application de la force de brassage (force de Lorentz) par rapport au sens de la boucle de circulation de la convection thermosolutale, seront traitées dans ce chapitre. L'accent sera mis sur la possibilité d'utiliser le brassage par un champ magnétique glissant (TMF) comme une solution technique pour contrôler la structure cristalline et réduire les défauts liés aux problèmes de ségrégation notamment les canaux ségrévés. Trois aspects seront évoqués lors de ce chapitre : la transition colonnaire-équiaxes (CET), affinage des grains et finalement le développement et morphologie de ségrégation.

CHAPITRE I

Introduction sur la solidification

Ce chapitre est consacré à une étude de synthèse des notions de solidification, notamment la description de l'apparition des structures (colonnaire ou équiaxe) issues de la solidification à partir de deux phénomènes importants : la germination-croissance de la microstructure ainsi que la transition entre les deux types de structures, à savoir la CET (transition-colonnaire-équiaxe). Ces effets résultent d'une compétition entre divers mécanismes d'origine thermique, chimique et thermodynamique se produisant à différentes échelles de temps et d'espace (macro et micro-échelles). Les aspects cinétiques sont primordiaux si l'on cherche à appréhender les mécanismes mis en jeu. Ainsi dans le processus dynamique de solidification dans les conditions usuelles le système est presque toujours hors équilibre et cherche à y revenir. Ce retour à l'équilibre fait intervenir des temps caractéristiques qui peuvent être plus longs que les temps typiques de refroidissement et d'échange de masse (transfert de soluté assez lent) et de chaleur (chaleur latente de changement de phase). Ceci donne lieu à une compétition entre les divers phénomènes et leur cinétique propre. De plus dans cette partie nous évoquons deux aspects où cette compétition entraîne des conséquences importantes en termes de structures et taille finale de grains.

Généralement, les paramètres essentiels qui gouvernent la structure sont :

- la vitesse de refroidissement CR (en K/s),
- le gradient de température au voisinage du front colonnaire G (en K/m),
- la densité de grains N_0 (m^{-3}),
- la surfusion de nucléation,
- le nombre de germes.

La vitesse des isothermes V_T , qui est aussi la vitesse de tirage en solidification dirigée, s'exprime en fonction des deux premiers paramètres puisque $V_T = CR/G$. On essaye de comprendre comment ces paramètres influencent la nature de la microstructure issue de la solidification.

I.1. NOTIONS DE SOLIDIFICATION DES ALLIAGES METALLIQUES

I.1.1 Diagrammes de solidification d'un alliage métallique binaire

Pour un métal pur, si l'on mesure en fonction du temps la température d'un point donné, on obtient une courbe de refroidissement du métal. Cette courbe se divise en trois parties : une première décroissance, un palier puis une dernière décroissance (figure. I.1). Ce palier est d'autant plus marqué que la masse du métal est grande et le refroidissement lent. Il

correspond à la période de coexistence du métal liquide et du métal solide. Cela permet de définir la température de fusion T_F du métal.

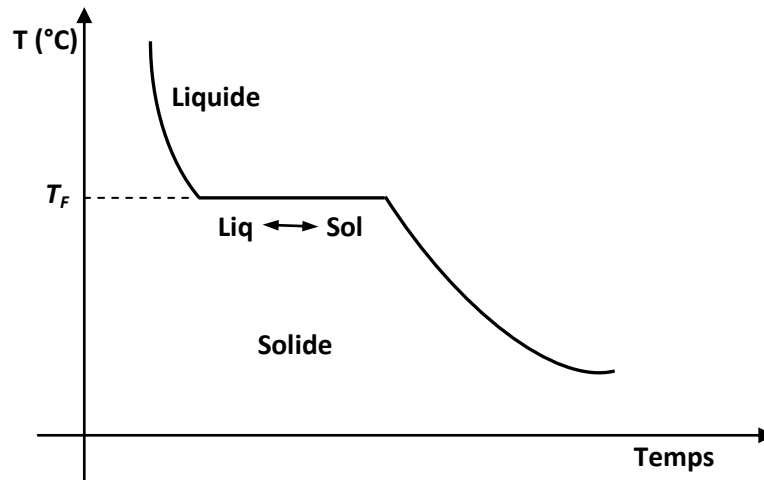


Figure. 1.1. Courbe de refroidissement théorique d'un métal pur.

Cependant, pour un alliage binaire, la courbe de refroidissement paraît légèrement plus complexe. Cette courbe comporte, en règle générale, une ou plusieurs branches de courbes raccordées par des points anguleux. Ces branches de courbes peuvent parfois coexister avec un palier de solidification isotherme (comme pour un métal pur). Toutefois, il est très exceptionnel que la solidification d'un alliage binaire puisse s'opérer entièrement à une température constante. Chaque point singulier de la courbe correspond à un changement du nombre de phases.

Ainsi, le relevé de ces températures caractéristiques permet de déterminer les intervalles de température à l'intérieur desquels le système comporte un même nombre de phases. Les plus importantes sont la température de début de solidification à laquelle apparaissent les premiers cristaux de solide dans le bain liquide et la température de fin de solidification qui correspond à la disparition totale de toute trace liquide dans le système. Si l'on enregistre les différentes courbes de refroidissement d'un même alliage binaire en modifiant la teneur des constituants, cela peut contribuer à interpréter le diagramme de solidification de ce système. Toutefois, l'exploitation des courbes d'analyse thermique en vue du tracé des diagrammes d'équilibre est, en pratique, rendue fréquemment délicate pour deux raisons liées aux particularités de la solidification réelle suivantes :

- 1- Le début de la solidification s'opère avec un certain retard par rapport à la température de fusion (T_F). En effet, le solide est une phase plus ordonnée que le liquide et le

système connaît des difficultés à s'ordonner du liquide vers le solide. Le premier cristal apparaît à une température T_c inférieure à la température de fusion T_F . Cette surfusion $T_F - T_c$ traduit la difficulté du système à créer ce premier germe solide (barrière de nucléation) et joue le rôle de force motrice pour la solidification. Ce phénomène de « *surfusion* » est suivi, lorsque la solidification s'amorce enfin, d'une remontée de la température appelée « *recalescence* » jusqu'à la température de solidification, remontée due au rejet de chaleur latente résultant de la solidification. Dans le cas d'une solution solide, ceci oblige à déterminer la température de début de solidification T_L par extrapolation comme il est indiqué sur la figure (I.2).

- 2- La température de fin de solidification est généralement très mal définie en raison de la non-homogénéité du solide (par exemple avec le liquide *interdendritique* à la composition eutectique).

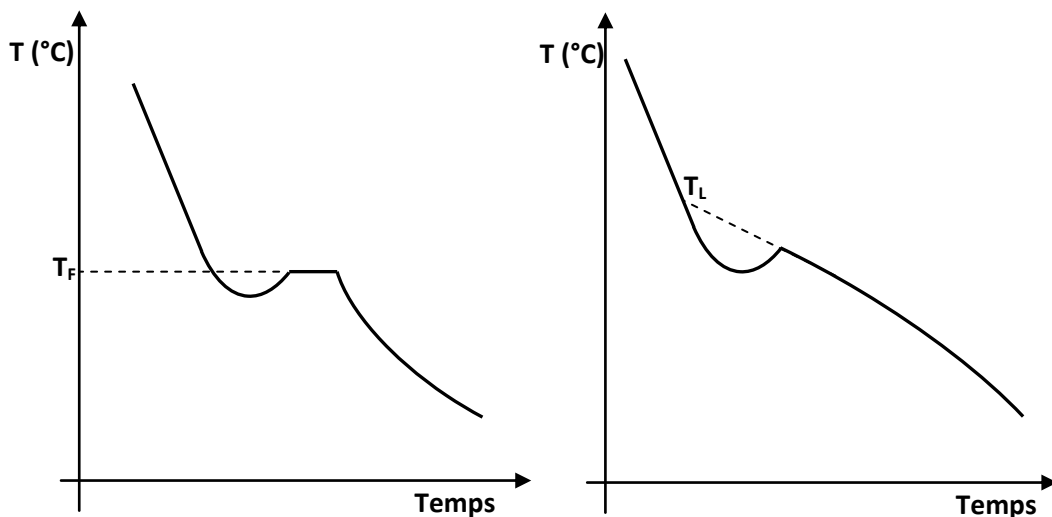


Figure. I.2. Allure réelle des courbes d'analyse thermique.

I.1.2. Solidification, diagrammes de phases et ségrégations.

Durant les procédés de solidification, si l'on se place à l'échelle locale, les couches de solide formées ont une concentration solide C_s^* différente de celle du liquide C_l^* en contact avec l'interface solide-liquide. Cette concentration liquide à l'interface est celle qui donne naissance à la couche de solide formée, dont la concentration est définie par le coefficient de partage (W. Kurz et D. J. Fisher [1], M. C. Flemings [2] et G. Lesoult [3]). Si l'on se place dans l'hypothèse de mélange parfait durant la solidification, ces différentes concentrations correspondent aux concentrations d'équilibre, à la température considérée, du diagramme de

phases (courbe de liquidus pour la concentration liquide, courbe de solidus pour la concentration solide). Les diagrammes de phases des alliages étudiés peuvent être consultés dans l'annexe I. Ceci n'est réalisé que si la température, la composition du liquide et celle du solide restent uniformes dans toute l'étendue du système au cours de la solidification. En pratique, la solidification n'est presque jamais réalisée dans ces conditions de mélange parfait à l'échelle du système. En revanche cela peut l'être au niveau local. Si l'on considère un alliage binaire (cas traité dans l'ensemble de ce travail), l'équilibre thermodynamique du diagramme de phase prévoit une dépendance uniquement en température des différentes concentrations solide et liquide (à pression constante) :

$$C_s^{eq} = C_s(t) \quad (\text{I.1})$$

$$C_l^{eq} = C_l(t) \quad (\text{I.2})$$

Il est parfois possible d'assimiler à des droites les courbes de liquidus et de solidus d'un diagramme de phases donné (cf. figure I.3). On peut toujours définir le coefficient de distribution à l'équilibre ou coefficient de partage de la manière suivante :

$$k(T) = \frac{C_s^{eq}(T)}{C_l^{eq}(T)} \quad (\text{I.3})$$

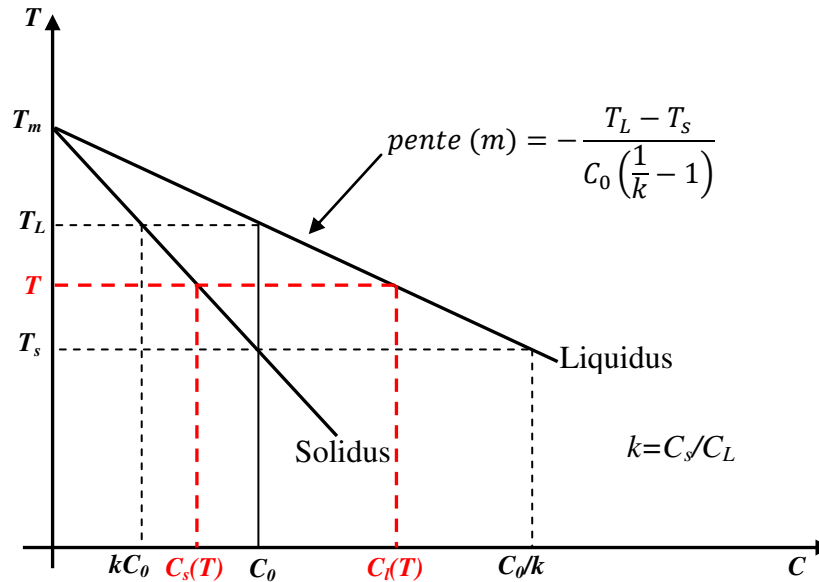


Figure. I.3. Représentation schématique d'un diagramme de phase binaire avec des compositions de chacune des phases ($k < 1$).

Le coefficient de partage est constant lorsque les courbes de liquidus et de solidus sont assimilées à des droites. La courbe de liquidus se définit par l'équation :

$$T = T_m + m.C_L, \text{ où } m \text{ représente la pente du liquidus.} \quad (\text{I.4})$$

Dans l'approximation présente (k et m constants), l'intervalle de solidification, à la concentration C_0 , est représenté par :

$$\Delta T = T_L - T_s = mC_0 \left(1 - \frac{1}{k}\right) \quad (\text{I.5})$$

Si l'on reste dans l'approximation d'état quasi-réversible, la diffusion homogénéise au fur et à mesure le solide. Consécutivement, la conservation locale du soluté s'écrit :

$$C_0 = f_l C_l + f_s C_s = f_l C_l + (1 - f_l) C_s \quad (\text{I.6})$$

De cette relation, il est possible de déduire la règle des segments inverses plus connue sous le nom de règle du bras de levier qui donne à chaque température la proportion (en atomes ou en masse) des deux phases à l'équilibre, c'est à dire, en ce qui nous concerne, liquide et solide.

$$f_l = \frac{C_0 - C_s}{C_l - C_s} ; f_s = \frac{C_l - C_0}{C_l - C_s} \quad (\text{I.7})$$

Dans les cas réels de solidification, les considérations précédentes s'appliquent à l'interface, où le liquide et le solide sont en contact, et à l'échelle pour laquelle l'homogénéité de C_s et C_l existe.

Dans la réalité et les conditions techniques usuelles, l'hypothèse de diffusion totale est imparfaite : la composition du solide est loin d'être homogène et est sensible aux positions successives de l'interface liquide-solide ainsi qu'au régime de croissance du front de solidification (plan, cellulaire, dendritique). Fréquemment, en métallurgie, l'interface prend la forme d'arborescences nommées dendrites (du grec *dendron*, petit arbre). Cette dernière présente une double périodicité spatiale : une qui concerne les bras primaires de dendrites de l'ordre de la centaine de micromètres, une autre qui concerne les bras secondaires de dendrites de l'ordre de la dizaine de micromètres. La déformation de l'interface liquide-solide correspond à une optimisation de la surface d'échange pour les transferts thermiques et solutaux. Le liquide occupe cet espace interdendritique au sein de la zone pâteuse, zone de coexistence entre liquide et solide. Une formulation simplifiée consiste à considérer ce système liquide + solide comme un système fermé, cloisonné par les branches de dendrites. Ce liquide interdendritique est à l'origine de la ségrégation dite dendritique (microségrégation). On définit à partir de là trois zones distinctes dans l'alliage en cours de

solidification : une zone solide, une zone pâteuse et une zone liquide. Si l'on peut communément admettre que le liquide situé loin de la zone pâteuse seule s'homogénéise « suffisamment rapidement », il n'en va pas de même pour le liquide situé en zone pâteuse. A l'interface liquide-solide, il est admis que l'équilibre thermodynamique du diagramme de phase est respecté, conformément à ce qui a été présenté dans les paragraphes précédents. Au contraire, la concentration en soluté va varier entre deux dendrites (cf. Flemings [2], Allen [4]). La concentration y est supérieure à celle de l'interface : le liquide, à concentration donnée, a une température en dessous de celle du liquidus. Le liquide est donc surfondu au sens littéral du terme. Il faut alors utiliser une loi de sélection de l'espacement dendritique afin de calculer cette surfusion. Remarquons que Brody et Flemings [5] postulent que l'espacement s'adapte afin de la minimiser. La surfusion deviendrait alors négligeable et le liquide en serait consécutivement « parfaitement mélangé » et à l'équilibre thermodynamique. La thermique fixe alors la concentration du liquide en zone pâteuse. Les travaux d'Allen [4] à partir de données expérimentales confortent cette hypothèse même s'ils montrent que la surfusion n'est pas toujours aussi faible que l'affirme Flemings [2].

La solidification débute à la température de liquidus pour s'achever à la température de solidus lorsque l'on se trouve dans des conditions réversibles. En pratique, elle commence aux alentours de la température de liquidus pour ne terminer qu'aux environs de la température eutectique. Cela définit une zone de température et de concentration, visible sur le diagramme de phase (cf. annexe A) qui correspond à la zone d'existence de la zone pâteuse dont il est question.

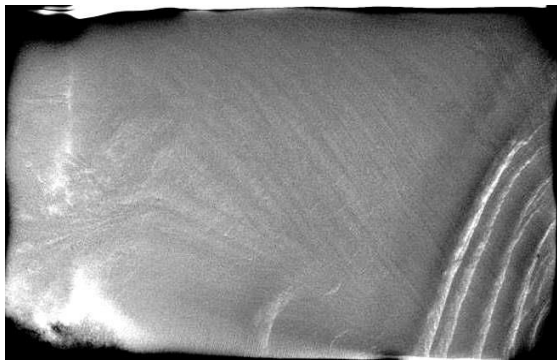
Si l'on admet, contrairement à l'hypothèse de diffusion, que chaque couche de solide formée se trouve figée dans sa concentration, et que l'on applique une loi de type Scheil-Gulliver sous une forme locale, on a, pour une transformation de la fraction liquide $f_l \rightarrow f_l - df_l$:

$$(C_l - C_s) df_l = f_l dC_l = (1 - k) C_l df_l \quad (\text{I.8})$$

Si $k > 1$, liquide et solide sont appauvris à chaque couche formée, et ceci jusqu'à obtenir le solvant pur.

Si $k < 1$, liquide et solide s'enrichissent à chaque couche formée et ceci jusqu'à un équilibre avec une phase solide supplémentaire. L'alliage garde des traces majeures de ségrégations. Les ségrégations dont il est question sont de l'ordre de grandeur de l'espacement interdendritique, c'est à dire la centaine de micromètres. On parle alors de microségrégations. Par traitement d'homogénéisation (par exemple un recuit qui accélère la diffusion), il est

possible de les faire disparaître. Toutefois, dans certains alliages, il est possible d'avoir des écarts de composition à l'échelle du lingot tout entier : on parle de macroségrégation. L'équation de Scheil-Gulliver laisse prévoir, pour un coefficient de partage inférieur à un, une ségrégation dans le sens des fractions liquides décroissantes, due au rejet de soluté dans le liquide durant la solidification. Cela correspond à la macroségrégation normale, bien connue des fondeurs. Ces macroségrégations peuvent prendre différentes formes (cf. Lesoult [3]) : canaux ségrégés (*freckles* ou taches de rousseurs), veines sombres (*hot tears*). Cf. figure (I.3). L'apparition de ces défauts est directement reliée à l'influence de la convection sur la zone pâteuse (cf. Prescott et Incropera [6]). Ces ségrégations en canaux sont observables dans les lingots d'acier riches en carbone ou autres éléments (soufre, manganèse, molybdène...) [2], sur des matériaux transparents (Sarazin et Hellawel [7]), et sur des alliages types tels que Al-Cu (Flemings [2]), Pb-Sn (Sarazin et Hellawel [7]). Dans des configurations horizontales avec des procédés de solidification de type Bridgman sur un alliage Sn-Bi 10 % en masse, il est possible d'observer une zone ségrégée sur la partie basse du cylindre ainsi que des canaux ségrégés qui l'alimente en soluté (cf. Lehmann [8] et figure I.4). Cette dernière est due à un couplage entre une orientation verticale, vers le bas, de la gravité, la convection thermosolutale et un soluté plus dense que son solvant.

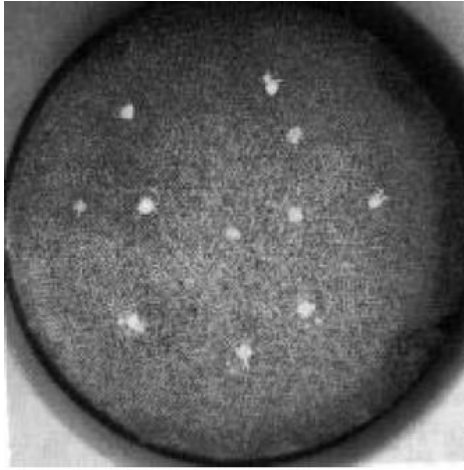


(1)

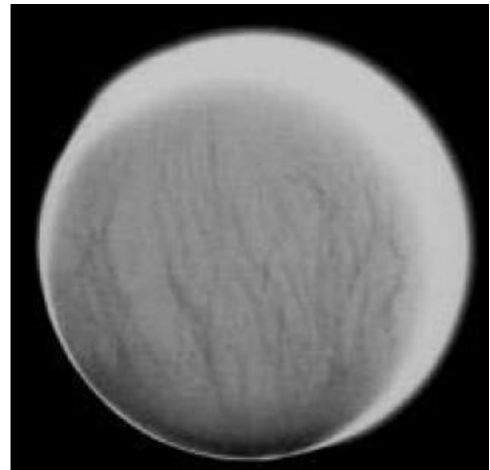


(2)

Figure. I.3. (1) Négatif de radiographie X montre clairement les Freckles d'un lingot de Sn-3wt.%Pb (10×6×1 cm) [10]. (2) Ségrégations en canaux dans un alliage à base Nickel. Diamètre égal à 100 mm [9].



(2)



(4)

Figure. I.4. (3) Freckles dans alliage Pb-Sn. Diamètre égal à 38 mm [7]. (4) Négatif de radiographie X. Alliage Etain-Bismuth 10 % en masse. Diamètre 15 mm. (Zones plus riches en Bismuth en noir)[8].

I.1.3 Microségrégation et fraction de solide

Considérons la solidification d'un alliage binaire de composition nominale C_0 . Il a été vu précédemment qu'une interface solide-liquide avançant à une vitesse donnée rejette du soluté dans le liquide. Dans le cas de l'équilibre thermodynamique, la diffusion dans le solide et dans le liquide est supposée infiniment rapide. Au cours de la solidification, le premier cristal apparaît donc à la température du liquidus, T_L , et la dernière goutte de liquide se solidifierait à la température du solidus, T_s . La composition du liquide à l'équilibre est alors donnée par la loi de bras de levier :

$$C_L = \frac{C_0}{1 - (1-k)f_s} \quad (\text{I.9})$$

où f_s correspond à la fraction de solide. Cette fraction de solide vaut 1 lorsque l'échantillon est entièrement solide et 0 lorsqu'il est liquide. En utilisant la définition du diagramme de phase $T = T_m + m \cdot C_L$, (remarquons qu'à la température du liquidus $C_L = C_0$), on peut déduire de la relation (I.9), la fraction de solide en fonction de la température :

$$f_s = \left(\frac{1}{1-k} \right) \left(\frac{T_L - T}{T_m - T} \right) \quad (\text{I.10})$$

Où T_m est la température de fusion du corps pur. Cependant, dans la réalité, la solidification est un phénomène hors équilibre, notamment en raison des phénomènes de diffusion

chimique. Gulliver [11] puis Scheil [12] ont donc proposé un modèle rendant compte d'une manière simplifiée du rejet de soluté dans le liquide. En effet, le modèle suppose une diffusion nulle dans le solide mais infinie dans le liquide. En écrivant le bilan de soluté dans ce cas, la composition du liquide et la fraction solidifiée peuvent s'écrire respectivement :

$$C_L = \frac{C_0}{(1-f_s)^{(1-k)}} \quad (\text{I.11})$$

$$f_s = 1 - \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\left(\frac{1}{k-1} \right)} \quad (\text{I.12})$$

D'un autre point de vue, il est bien connu que la diffusion chimique dans le solide n'est pas nulle dans les métaux. Brody et Flemings [5] ont tenu compte de cette diffusion dans le solide dans leur modèle. Pour rendre compte de cette rétro-diffusion, il faut introduire le nombre de Fourier $\alpha = D_s t_s / (\lambda_{2,f})^2$, où D_s correspond au coefficient de diffusion dans le solide, t_s est le temps de solidification et $\lambda_{2,f}$ l'espacement interdendritique secondaire en fin de solidification. Ce modèle a été réévalué par Clyne et Kurz [13] sur la base d'un nouveau coefficient α' , car le modèle de Brody et Flemings était invalide pour une diffusion importante dans le solide. En tenant compte de ces considérations, le système d'équations permettant de caractériser la concentration du liquide et la fraction de solide est :

$$\alpha' = \alpha \left[1 - \exp\left(-\frac{1}{\alpha}\right) \right] - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{1}{2\alpha}\right) \quad (\text{I.13})$$

$$C_l = C_0 [1 - f_s (1 - 2k\alpha')]^{\left(\frac{k-1}{1-2k\alpha'} \right)} \quad (\text{I.14})$$

$$f_s = \frac{1}{2k\alpha'} \left[1 - \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\left(\frac{1-2k\alpha'}{k-1} \right)} \right] \quad (\text{I.15})$$

On peut ainsi retrouver les cas asymptotiques décrits par le modèle de Scheil et la loi du bras de levier en choisissant une valeur de α' respectivement égale à 0 et 0,5, ou α égale à 0 et ∞ respectivement. Signalons que la solution exacte du modèle de Brody-Flemings a été déterminée par Kobayashi [14].

Dans le cas de la solidification d'alliages multi-composés, les modèles présentés peuvent être adaptés en tenant compte de la concentration de chaque élément d'alliage. Ces concentrations sont alors définies par la loi des bras de leviers, le modèle de Scheil et celui de Clyne-Kurz respectivement :

$$C_{l,i} = \frac{C_{0,i}}{1-(1-k_i)f_s} \quad (\text{I.16})$$

$$C_{l,i} = \frac{C_{0,i}}{(1-f_s)^{(1-k_i)}} \quad (\text{I.17})$$

$$C_l = C_{0,i} [1 - f_s (1 - 2k_i \alpha')]^{\left(\frac{k_i-1}{1-2k_i \alpha'}\right)} \quad (\text{I.18})$$

$$T = T_m + \sum_{i=1}^n m_i \cdot C_{l,i} \quad (\text{I.19})$$

où $C_{l,i}$, $C_{0,i}$ et k_i sont la concentration du liquide, la concentration initiale et le coefficient de partage correspondant à l'élément d'alliage « i », respectivement.

I.2. Macroségrégation

La macroségrégation se réfère à des variations spatiales de la composition qui se produisent au cours de la solidification des alliages métalliques à une gamme d'échelle variant de quelques millimètres à centimètres, voire mètres. Ces variations de composition ont un impact négatif sur les propriétés des matériaux solidifiés, qui par la suite peuvent conduire au rejet total du produit solidifié. Elle est présente dans pratiquement tous les processus de solidification, notamment les coulées continues à grandes dimensions (lingots), la coulée de la fonte, l'aluminium et les alliages de cuivre, la coulée de superalliages monocristallins, et la croissance cristalline des semi-conducteurs.

En raison de la faible diffusivité des solutés à l'état solide et les grandes distances à parcourir, la macroségrégation ne peut être remédiée par un simple traitement thermique (un recuit par exemple), après que la solidification soit terminée. La cause principale de la macroségrégation est un mouvement relatif du liquide riche en soluté et les mouvements de la phase solide au cours de solidification. La plupart des éléments d'alliage ont une solubilité plus faible dans le solide que dans le liquide, comme le montre le diagramme de phase dans la figure. (I.3). Au cours de solidification, les éléments solutés sont donc rejetés dans la phase liquide, ce qui conduit à un enrichissement continu des concentrations dans la phase liquide et un appauvrissement simultané dans le solide primaire.

Cette ségrégation se produit à l'échelle de la microstructure qui est souvent constitué de dendrites. Elle est donc appelée la microségrégation et entraîne une hétérogénéité dans la distribution de concentration dans les bras des dendrites.

Considérons maintenant un petit VER (volume élémentaire représentatif) à l'intérieur de la zone pâteuse (liquide-solide), qui contient plusieurs bras dendritiques et du liquide entre eux (voir la figure I.5). En absence de tout transport de soluté dans et hors cet élément de volume, la composition moyenne du mélange à l'intérieur du VER reste constante et égale à la composition nominale de l'alliage C_0 . Cependant, si un liquide ou un solide pénètre ce VER avec une concentration de soluté différente, la composition moyenne du mélange dans le volume change par rapport à la composition nominale de l'alliage. Ces mouvements convectifs dans la zone pâteuse, parcourant généralement des grandes distances, entraînent une ségrégation à l'échelle macroscopique appelée macroségrégation. Cette macroségrégation peut être positive ou négative selon la concentration atteinte par rapport la concentration nominale de l'alliage C_0 .

Principalement, ces mouvements dans la phase liquide sont dus à plusieurs facteurs :

- 1- Variation du coefficient d'expansion thermique.
- 2- Les mouvements convectifs dans la phase liquide induits par les gradients de température et solutaux.
- 3- Les écoulements induits par les bulles de gaz
- 4- La convection forcée due à l'application d'un brassage électromagnétique
- 5- Mouvement de petits grains (équiaxe) ou des fragments solides hétérogènes dans le liquide
- 6- Déformation du réseau solide dans la zone pâteuse en raison des retassures ou les contraintes thermiques.

I.2.1. Macroségrégation induite par l'écoulement du liquide

L'écoulement du liquide à travers la zone pâteuse, où il y a le développement du solide supposé comme réseau fixe et rigide, est considérée comme la cause principale du phénomène de macroségrégation. Une telle macroségrégation peut être mieux comprise en considérant l'équation de redistribution locale des solutés (LSRE), développées par Flemings et ses collaborateurs [16-17]. Cette équation est basée sur un équilibre solutal dans un petit volume élémentaire dans la zone pâteuse, comme il est illustré dans la figure (1.5).

Dans le modèle de Scheil, la diffusion locale du soluté est considérée négligeable dans la phase solide, ainsi le liquide à l'intérieur du volume élémentaire est supposé bien mélangé et en équilibre thermodynamique. La concentration solutale dans le liquide C_L , est donnée en fonction de la température et de la pente de liquidus présentée dans le diagramme de phase.

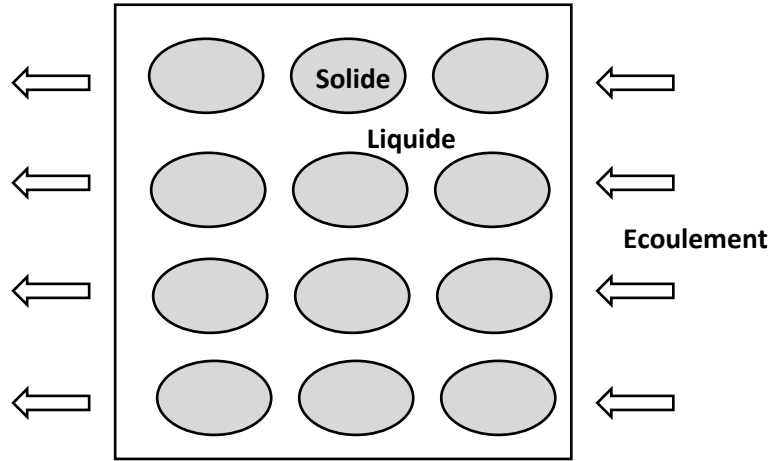


Figure. I.5. Schéma illustratif du liquide circulant dans un petit volume à l'intérieur de la zone pâteuse. Les zones ovales grises représentent les sections transversales des bras dendritique.

Si on prend en considération l'advection solutale induite par l'écoulement du liquide dans et hors l'élément de volume, et la différence entre les masses volumiques de la phase solide et la phase liquide, l'équation de « LSRE », Flemings [16], peut s'écrire comme suit:

$$\frac{df_s}{dC_L} = \frac{(1 - f_s)(1 - \beta)}{C_L(1 - k)} \left(1 - \frac{u_n}{v_T}\right) \quad (I.20)$$

où f_s est la fraction volumique du solide, k est le coefficient de partage, u_n est la vitesse d'écoulement du liquide dans la direction normale aux isothermes, v_T est la vitesse d'avancement des isothermes, et β est le coefficient de retrait de la phase solide au cours de la solidification, défini comme suit :

$$\beta = \frac{\rho_s - \rho_L}{\rho_s} \quad (I.21)$$

où ρ_s et ρ_L sont les masses volumiques de la phase solide et liquide, respectivement.

Dans une dimension, le principe de conservation de la masse exige que la vitesse du liquide nécessaire pour alimenter le retrait au cours de la solidification, doit être égale à:

$$u_n|_{Ret} = v_T \left(1 - \frac{\rho_s}{\rho_L}\right) = -v_T \left(\frac{\beta}{1 - \beta}\right) \quad (I.22)$$

Notons que l'écoulement dû au retrait de la phase solide est entraîné dans le sens opposé à la vitesse d'avancement des isothermes, qui est dans la direction de diminution de la température et l'augmentation de la fraction solide. L'équation (I.22) n'est pas satisfaite que si

la masse volumique de l'alliage diminue lors de la solidification ($\beta < 0$), et $u_n|_{Ret}$ ayant le même signe que v_T .

La figure (1.6) donne quelques explications de certains termes figurant dans les équations précédentes. Etant donné que la concentration de soluté dans le liquide est uniforme le long des isothermes, donc le liquide circulant à l'intérieur ou hors l'élément de volume dans le sens des isothermes, à la même concentration en soluté dans le liquide à l'intérieur de l'élément de volume. En effet, le liquide circulant en parallèle des isothermes dans la zone pâteuse n'induit pas de macroségrégation.

Ch. Beckermann [18], a défini un facteur d'écoulement ξ comme suit :

$$\xi = (1 - \beta) \left(1 - \frac{u_n}{v_T} \right) \quad (I.23)$$

L'équation (I.20), peut être intégrée pour obtenir une équation de type Scheil modifiée :

$$\frac{C_L}{C_0} = (1 - f_s)^{\frac{(k-1)}{\xi}} \quad (I.24)$$

où ξ et k sont supposés constants. Le cas de la non-macroségrégation se produit si le facteur d'écoulement est égal à l'unité ($\xi = 1$). Donc l'équation (I.24) sera réduite à l'équation Scheil classique

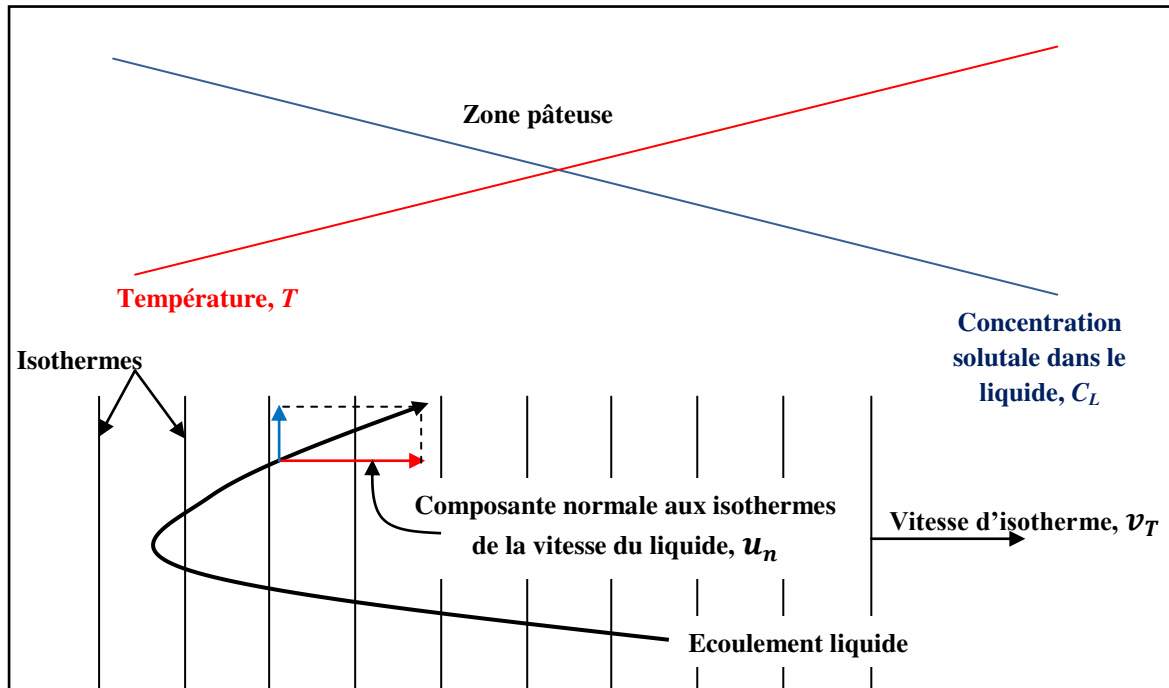


Figure. I.6. Schéma illustratif du liquide s'écoulant à travers la zone pâteuse

Il y a deux possibilités évidentes pour ne pas avoir le phénomène de la ségrégation à l'échelle macroscopique ($\zeta = 1$):

- 1- Soit pas de retrait de la phase solide ($\beta = 0$) et aucun écoulement dans la direction normale aux isothermes ($u_n = 0$) ;
- 2- Soit aucun écoulement de liquide autre que celui nécessaire pour alimenter le retrait de la phase solide au cours de la solidification dans une dimension donnée:

$$u_n = -v_T \frac{\beta}{(1-\beta)} \quad \text{ou} \quad u_n = u_n|_{Ret}$$

Pour un coefficient d'écoulement différent de l'unité ($\zeta \neq 1$), la macroségrégation se produit toujours, étant donné que la concentration de liquide, C_L , varie différemment de celle prédite par l'équation de Scheil classique.

En se basant sur l'équation (I.24), on peut définir trois différents mécanismes et résultats de macroségrégation pour un coefficient de partage inférieur à l'unité ($k < 1$):

I.2.2. La macroségrégation négative

Ce mécanisme se produit lorsque le coefficient d'écoulement donné par l'équation (I.23) est supérieur à l'unité ($\zeta > 1$), ce que signifie que la vitesse de circulation du liquide interdendritique dans le sens du gradient de température (sens d'augmentation de la température et de la diminution de la fraction solide), est inférieure à la vitesse nécessaire pour alimenter le retrait de la phase solide au cours de la solidification, ($u_n < u_n|_{Ret}$ ou $\frac{u_n}{v_T} < -\frac{\beta}{(1-\beta)}$). En effet, pour une même fraction solide (f_s), la concentration du liquide (C_L) est plus faible par rapport au cas où $\zeta=1$, et par conséquent une macroségrégation négative aura lieu.

Par contre, dans le cas d'un coefficient de retrait ($\beta \geq 0$), c'est-à-dire une augmentation de la masse volumique de la phase solide par rapport à celle de la phase liquide lors de la solidification. La macroségrégation négative aura lieu dans ce cas, si et seulement si, le liquide interdendritique circule dans le sens de la diminution de la température vers des régions de fraction solide importante et avec une amplitude de la composante normale aux isothermes ($u_n < 0$) supérieure à la vitesse $u_n|_{Ret}$ en valeur absolue ($|u_n| > u_n|_{Ret}$).

I.2.3. La macroségrégation positive

Ce type de macroségrégation est caractérisé par une concentration C_L plus élevée par rapport le cas où $\xi = 1$, pour une même fraction solide f_s . Un tel mécanisme aura lieu lorsque la vitesse de circulation du liquide interdendritique dans le sens du gradient de température (u_n), soit simultanément supérieure à la vitesse de retassure ($u_n|_{Ret}$), et inférieure à la vitesse d'avancement des isothermes v_T , ($v_T > u_n > u_n|_{Ret}$ ou $\frac{u_n}{v_T} > -\frac{\beta}{(1-\beta)}$). Cet intervalle de variation se traduit par un coefficient d'écoulement ($0 < \xi < 1$).

Pour le cas limite de coefficient de retrait $\beta = 0$, c'est-à-dire pas de retrait au cours de la solidification ($u_n|_{Ret} = 0$). Cette condition est satisfaite si le liquide qui circule dans la direction d'augmentation de la température vers les régions de fraction solide inférieure ($u_n > 0$), a une vitesse inférieure à la vitesse d'avancement des isothermes ($u_n < v_T$).

Pour le cas de $\beta > 0$, cette condition est souvent satisfaite même si le liquide s'écoule dans la direction de la diminution de la température vers des régions de fraction solide supérieure ($u_n < 0$), puisque $u_n|_{Ret}$ est négative.

I.2.4. La refusion

Ce cas aura lieu si le liquide circulant dans la direction de l'augmentation de la température vers des régions de fraction solide inférieure, a une vitesse supérieure à la vitesse d'avancement des isothermes ($u_n > v_T$). Ce que signifie que le coefficient d'écoulement est négatif ($\xi < 0$).

En se basant sur l'équation « LSRE », un tel écoulement entraînera une diminution dans la fraction solide et de la température. Cela signifie qu'une refusion se produit et que des canaux ségrégés peuvent se former à l'intérieur de la zone pâteuse. Une fois la solidification de cette région terminée, une macroségrégation positive aura lieu dans ces canaux.

La direction et l'amplitude de la vitesse d'écoulement du liquide dans la zone pâteuse dépendent de nombreux facteurs. Pour une force d'entraînement donnée, la perméabilité de la zone pâteuse est le paramètre le plus important qui limite l'écoulement (Poirier [19]). En général, la perméabilité décroît avec l'augmentation de la fraction solide, ainsi les petits espacements dendritiques, réduisent également la perméabilité.

Les exemples suivants illustrent plus en détail les mécanismes de macroségrégation cités précédemment.

I.2.5. La ségrégation inverse.

Au voisinage des surfaces de refroidissement, la macroségrégation positive est souvent observée, I. Ohnaka et M. Matsumoto [20]. Ce type de ségrégation (voir figure I.7), est appelé par la ségrégation inverse. J. S. Kirkaldy et al [21], ont montré que c'est une conséquence directe du deuxième mécanisme de la macroségrégation discutée précédemment. En effet, au voisinage de la surface de refroidissement impénétrable, la vitesse du liquide est nulle ($u_n = 0$). En outre, pour un retrait fini, $u_n|_{Ret}$ est négative. Par conséquent, la condition ($u_n > u_n|_{Ret}$) est toujours satisfaite à la surface de refroidissement, donc une macroségrégation positive est produite.

Dans le cas de la présence d'un vide entre l'échangeur de refroidissement et le lingot à solidifier, le liquide interdendritique riche en soluté peut être injecté dans ce vide par effet de pression métallo-statique. Ce comportement est souvent présent dans les cas des macroségrégations positives élevées à la surface.

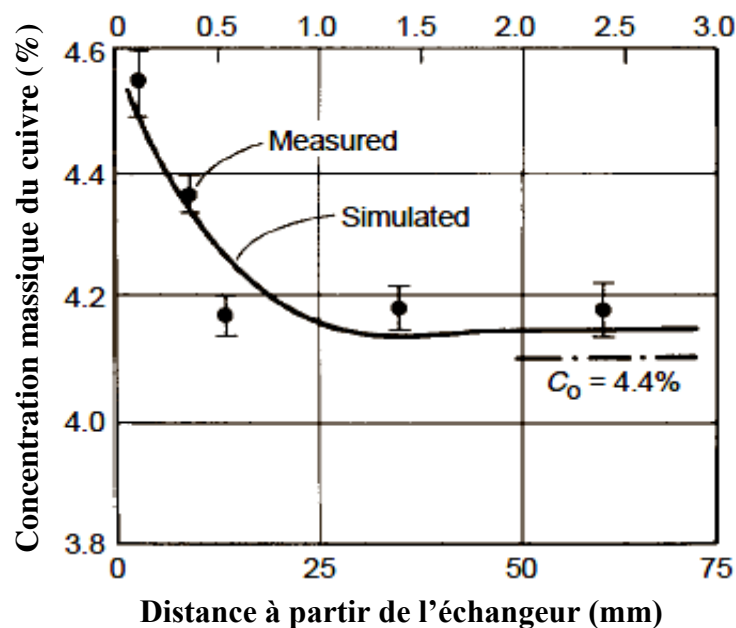


Figure. I.7. Ségrégation inverse obtenue à partir solidification unidirectionnelle d'un lingot (Al-4,1wt.%Cu), I. Ohnaka et al [20].

I.2.6. Macroségrégation due à l'écoulement généré par les forces thermosolutales.

Les deux premiers mécanismes de la macroségrégation évoqués précédemment, peuvent être observés simultanément si la configuration d'écoulement du liquide dans la zone

pâteuse est de nature circulatoire (boucle de convection). Cela a été démontré dans le travail de I. Ohnaka et al [20], traitant le cas de la coulée continue de l'alliage (aluminium-cuivre), solidifié horizontalement. La figure (I.8) présente un schéma illustratif d'un écoulement induit par les gradients thermosolutaux, ayant le sens de recirculation antihoraire. La figure montre également, la pénétration du liquide provenant du bain liquide dans la zone pâteuse.

Dans la partie supérieure de la zone pâteuse, l'écoulement est dans le sens de la diminution de la température ($u_n < 0$). Selon le premier mécanisme de la macroségrégation, une telle configuration d'écoulement provoque une macroségrégation négative. Les simulations numériques comparées aux mesures expérimentales, présentées sur la figure (I.9), confirment clairement cette macroségrégation négative dans cette région. Par contre, dans la partie inférieure de la zone pâteuse, le liquide interdendritique circule dans le sens de l'augmentation de la température ($u_n > 0$), en retournant vers le bain liquide. Cela provoque une macroségrégation positive selon le second mécanisme. Ceci a été, de nouveau vérifié par des mesures expérimentales (figure. I.9).

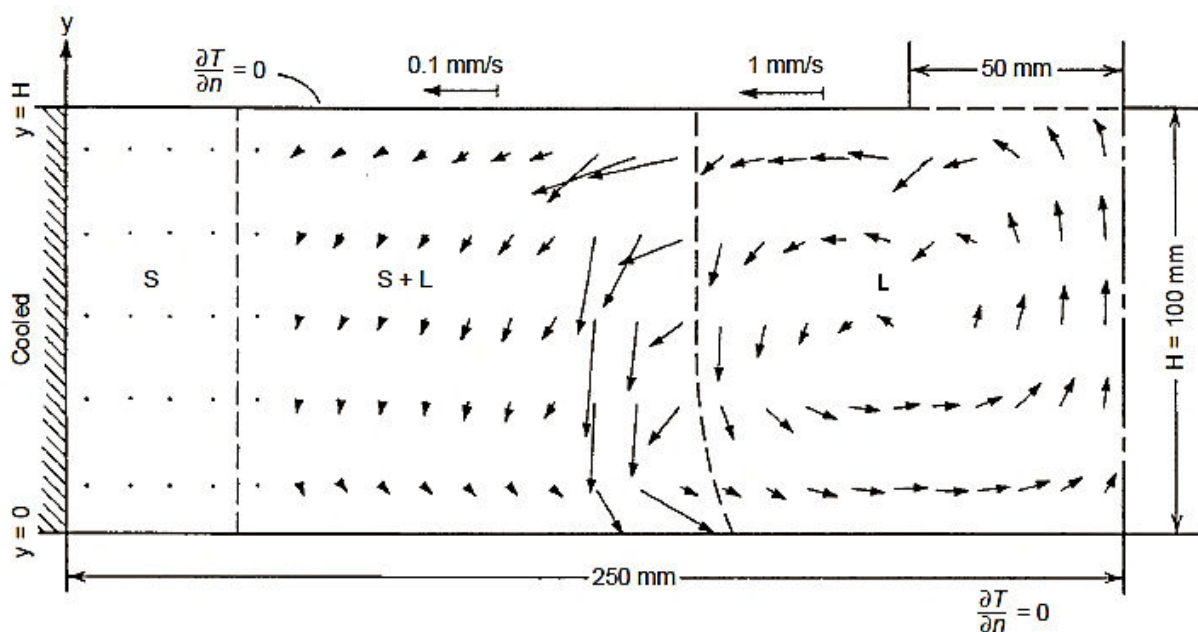


Figure. I.8. Simulation numérique de l'écoulement du liquide après 400s de refroidissement horizontal dans la coulée continue de l'alliage Al-4.4wt.%Cu, I. Ohnaka et al [20].

Il est très important de noter qu'il n'y a pas une macroségrégation dans la région située à mi-hauteur, ce résultat est justifié par la circulation du liquide en parallèle aux lignes d'isothermes.

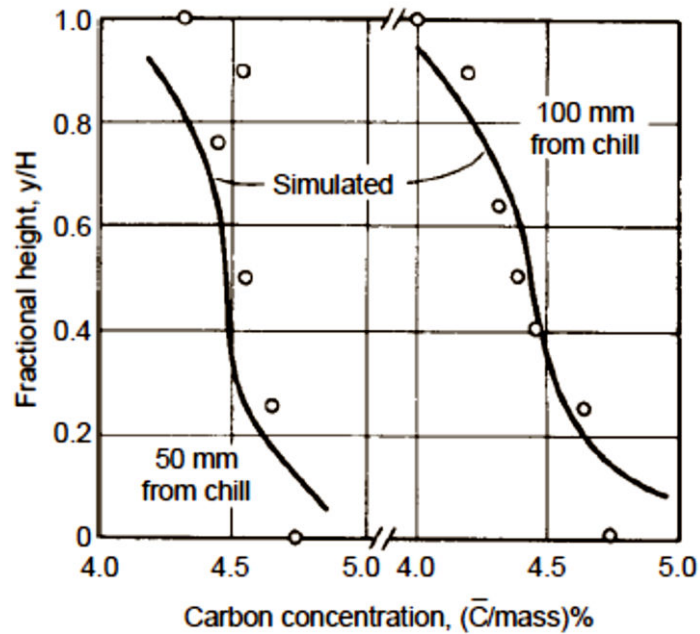


Figure. I.9. La distribution des solutés dans le lingot Al-4,4wt.%Cu représentée sur la figure (5), I. Ohnaka et al [20].

I.2.7. Les canaux ségrégés

Le troisième mécanisme de la macroségrégation conduit à la formation de ce qu'on appelle un canal ségrégué. La figure (I.10) montre clairement le défaut de ségrégation appelé généralement, Freckles (taches de rousseur). Ces canaux ségrégés sont souvent remarqués dans le cas de la solidification monocristalline dirigée vers le haut du superalliage à base de nickel. Au cours de ce procédé, un certain nombre d'éléments légers (tels que l'aluminium et du titane) sont rejetées dans le liquide, et des éléments lourds, tels que le tungstène, sont incorporés dans la matière solide, ce qui conduit à des fortes forces de flottabilité solutale vers le haut dans la zone pâteuse. Malgré la présence d'un gradient de température stabilisant, ces forces de flottabilité sont capables de créer des boucles convectives importantes. Etant donné que les vitesses du liquide vers le haut dans la zone pâteuse sont supérieures à la vitesse d'avancement d'isotherme ($u_n > v_T$), selon le troisième mécanisme de macroségrégation, la fraction solide diminue avec la diminution de la température. Ce phénomène conduit finalement, à ouvrir des canaux dans la zone pâteuse à travers lesquelles s'écoule le liquide interdendritique riche en soluté.



Figure. I.10. Gros plan d'un seul Freckles dans un superalliage à base de nickel. Le Freckles présente un diamètre d'environ 2 mm, M.C. Schneider et al [22].

Les résultats de simulation numérique montrés sur la figure (I.11) montrent ces configurations d'écoulement responsables à la création de ces canaux ségrégés, M.C. Schneider et al [22]. Dans ce cas, les canaux présentent des tailles de quelques millimètres d'épaisseur et de quelques centimètres d'hauteur. Au cours du processus de solidification, ces canaux sont remplis avec des fragments dendritiques, qui sont ensuite observées sous forme d'une chaîne de cristaux équiaxes. La macroségrégation positive produite dans les canaux peut être aussi vue dans la présentation graphique des résultats de la simulation numérique présentée sur figure (I.11).

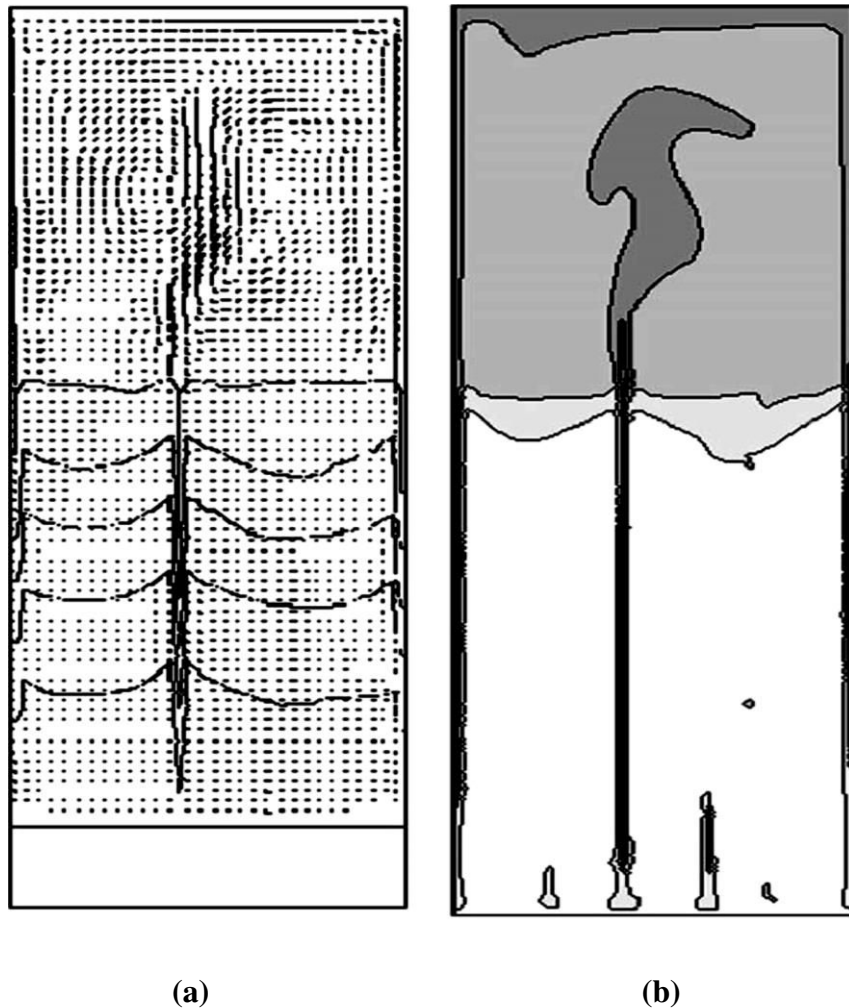


Figure. I.11. Simulation numérique de la formation des canaux ségrégés au cours de la solidification dirigée vers le haut d'un superalliage monocristallin à base de nickel. L'enceinte de solidification est de 5cm de largeur et 15cm de hauteur. (a) représente les vecteurs de vitesses dans le bain liquide et la zone pâteuse couplés aux contours de la fraction solide en cinq niveaux égaux (20% de la taille totale, en commençant par 0% pour le contour supérieure situé quasiment à mi-hauteur). La simulation numérique donne une vitesse maximale d'environ 5mm/s. (b) Le modèle de macroségrégation. La nuance du couleur indique la concentration du titane. On remarque un niveau de teinture plus foncé à l'intérieur des canaux ouverts dans la zone pâteuse correspondant aux zones de haute macroségrégation positive, M.C. Schneider et al [22].

I.2.8. Macroségrégation provoquée par le mouvement du solide

Les mouvements du solide lors de la solidification peuvent également induire de la macroségrégation dans les lingots. Malheureusement, aucune théorie simple, comme le modèle LSRE discuté dans la section précédente, n'existe pour expliquer clairement le phénomène de macroségrégation résultant du mouvement solide. Cependant, seulement

quelques exemples sont fournis pour illustrer le comportement de ces phénomènes complexes, Ch. Beckermann [23]. La forme la plus courante de mouvement du solide est la décantation où la flottabilité de petites morceaux solide au début du processus de solidification. Ces derniers peuvent être des fragments dendritiques qui ont été séparés d'une structure solide déjà existante ou à partir des grains équiaxes déjà présents dans le liquide. Ils se précipitent ou flottent en fonction de leur densité par rapport au liquide. Ces morceaux solides ont généralement, une composition différente de la composition nominale de l'alliage, et par conséquent, leurs mouvements vers les différentes parties de la pièce à solidifier entraîne une macroségrégation. On peut citer un exemple illustratif le cône de la macroségrégation négative observé souvent dans le tiers inférieur de lingots d'acier dans la coulée continue, (voir la figure I.12).

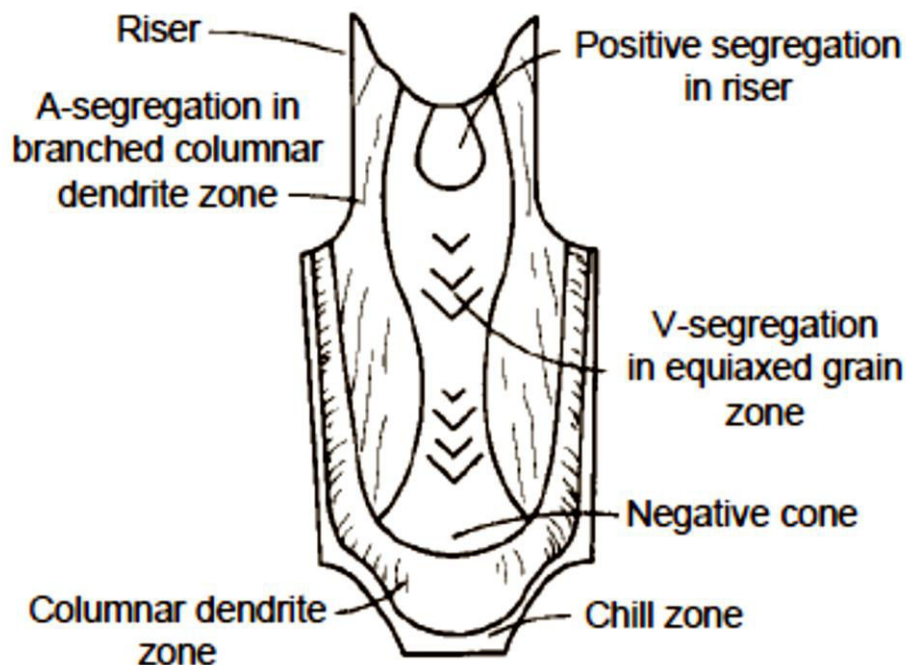


Figure. I.12. Les différents types de macroségrégation observés dans les lingots d'acier, Ch. Beckermann [23].

Ce type de macroségrégation se limite à des zones équiaxes provoquées par la sédimentation des dendrites qui sont relativement pauvre en soluté, M.C. Flemings [24], et G. Lesoult [25]. Les écoulements entraînés par les forces thermosolutales créent, également, de la macroségrégation négative dans la moitié inférieure du lingot d'acier, mais ses effets ne sont pas significatifs devant celui dû à la précipitation des particules solides, J. P. Gu et al [26]. De même, la macroségrégation axiale négative dans la coulée continue à refroidissement direct, notamment les lingots d'aluminium, est parfois attribuée à la décantation des fragments

solides pauvres en soluté, bien que, un effet similaire a été observé par A.V. Reddy [27], pour le cas d'un écoulement interdendritique provoqué par un retrait dans la phase solide, ils restent négligeables.

Un autre exemple de la macroségrégation générée par les mouvements du solide dans la zone centrale du lingot d'acier caractérisée par la structure équiaxe est appelée la ségrégation-V. Ce type de macroségrégation présenté également dans la figure (I.12), se compose de stries riches en soluté en forme de bâtonnets, apparaissant périodiquement le long de la ligne médiane. Les ségrégations en « V » proviennent souvent des cristaux équiaxes qui apparaissent dans le cœur du lingot, formant un réseau vaguement liés et qui peuvent être facilement brisé sous l'effet de la force métallographique, M.C. Flemings [24], et G. Lesoult [25].

I.3. STRUCTURE DE SOLIDIFICATION

I.3.1. Morphologie du front de solidification

La transition de l'état liquide à l'état solide, lors de la solidification des alliages métalliques, est généralement hors équilibre. Si l'interface solide-liquide est elle-même proche de l'équilibre thermodynamique (équilibre défini par les diagrammes de phases), des gradients thermiques ou solutaux induisent une déstabilisation de l'interface. Cette dernière provoque la naissance de formes diverses de l'interface qui conduisent à l'obtention d'une configuration de la partie solide, appelée microstructure. On définit trois différentes classes de morphologies d'interface pour la croissance d'une seule phase solide : *front plan, cellulaire et dendritique* (figure. I.13-a).

Lors de la solidification des alliages métalliques, la microstructure obtenue est généralement une structure dendritique colonnaire : la croissance des troncs primaires des dendrites est plus ou moins orientée dans un gradient thermique défini par les conditions expérimentales. En pratique, les dendrites issues de germes différents ont donc des orientations différentes suivant les régions de l'échantillon. Un grain est donc constitué de dendrites issues du même germe et ayant donc la même orientation cristallographique et morphologique. Ces derniers sont délimités par des joints de grains, zone qui correspondent au changement d'orientation des dendrites (figure. I.13-b). La structure et la répartition des grains définissent la macrostructure de l'échantillon.

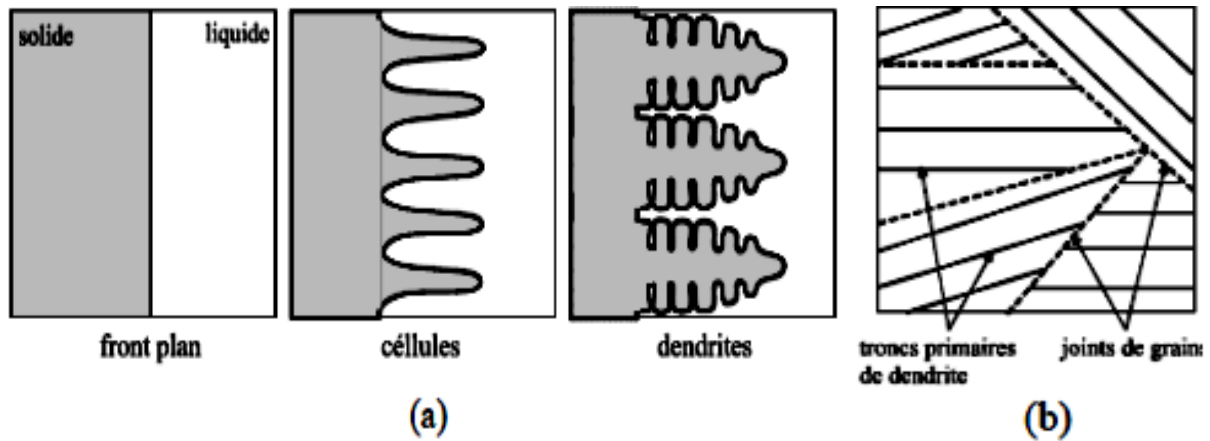


Figure. I.13. Représentation schématisée des différentes morphologies d'interfaces et des microstructures résultantes (a). Représentation schématisée d'une structure macroscopique du grain lors de croissance dendritique (b) [54].

Un exemple de développement de la microstructure, lors de la solidification d'un alliage succinonitrile (SCN) - 0.5% acétone, est donné à la figure (I.14). Cet alliage organique a la particularité de se solidifier en formant des structures identiques à celles des alliages métalliques. De par sa transparence, il est souvent utilisé pour observer la croissance dendritique.

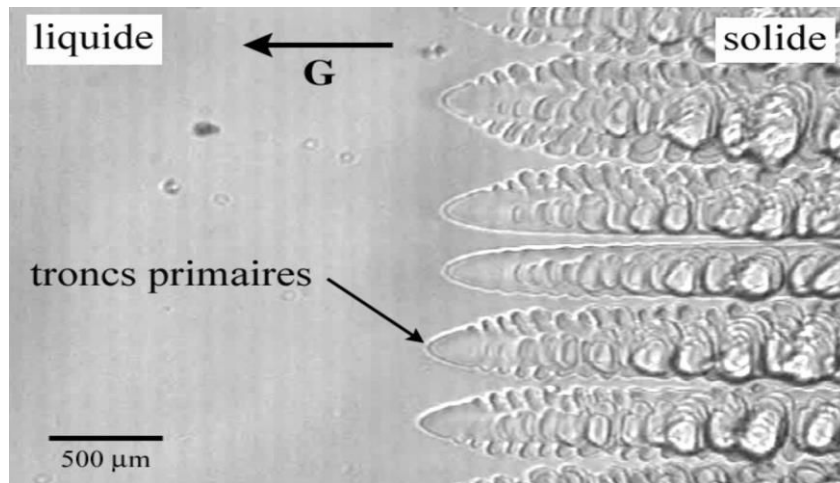


Figure. I.14. Photographies de la croissance dendritique d'un alliage organique SCN-acétone observé au microscope optique (microstructures identiques aux alliages métalliques [29]).

I.3.2. Morphologie des structures solidifiées

Si l'on s'intéresse aux morphologies obtenues après solidification, on peut observer une très grande variété de structures de tailles différentes, liées aux différentes phases solides présentes comme le montre les figures I.15 (a, b, et c) :

- structure cellulaire : grains allongés en forme de colonne en général de même orientation cristallographique et limités par des « joints » de grain,
- structure dendritique : grains allongés très découpés en général de même orientation cristallographique et limités par des « joints » de grain,
- structure équiaxe : grains de petite dimension de différentes orientations cristallographiques entourés par des joints de grain,
- structures eutectiques : alternance de phases solides distinctes de forme lamellaire ou fibreuse.

Il est important de remarquer que toutes ces structures peuvent coexister au sein d'un même lingot. Leur établissement dépend de la nature du matériau et de l'histoire thermique de la solidification.

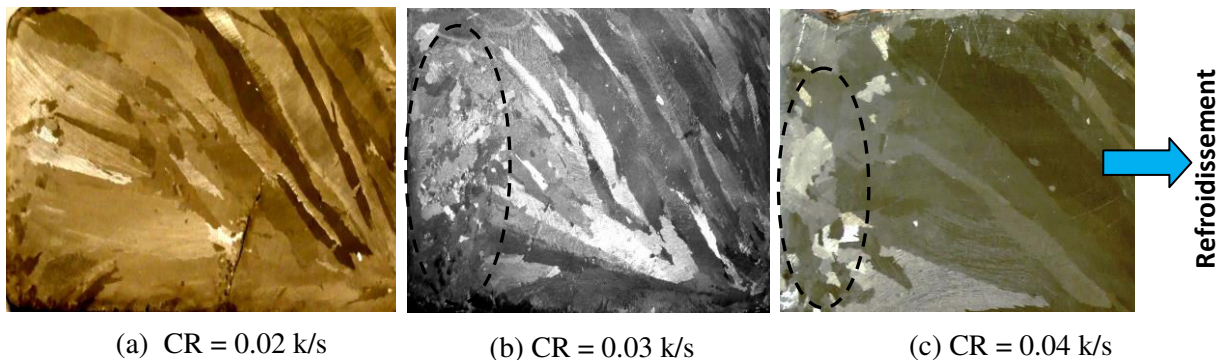


Figure. 1.15. Macrostructure typique d'un lingot de Sn-3wt.%Pb (10×6×1 cm) refroidi par le côté droit [10]. Cette situation proche de celle d'une fonderie illustre la variété des structures obtenues et la transition entre structures colonnaires et équiaxes en fin de solidification (côté droit du lingot de la figure 7-b).

I.3.3. Notion d'interface solide-liquide et d'instabilités

Le mécanisme de solidification d'un métal conduit à un changement d'état thermodynamique : de l'état liquide désordonné à l'état solide cristallin. Ce changement d'état requiert une réorganisation atomique initiée par des germes solides qui se forment dans le liquide. Il se crée alors, au sein du métal, une interface liquide-solide dont la morphologie dépend de sa stabilité au cours de la solidification.

I.3.3.1 Notion de germination

Le phénomène de germination est un processus hors équilibre qui nécessite de vaincre l'énergie de surface ainsi créée, à l'interface solide-liquide. L'apport d'énergie est obtenu par maintien de la zone liquide en surfusion, c'est à dire à une température inférieure à la

température initiale du bain liquide. Cette différence de température est appelée surfusion de germination (ΔT_n). On distingue alors deux types de germination :

- germination homogène : le germe se forme directement dans un liquide sans particules solides et sans contact (pas de contenant). En effet même dans un liquide pur, il subsistera toujours un faible pourcentage d'impureté, donc c'est difficile de parler d'une germination homogène dans le cas réel.
- germination hétérogène : la présence de particules dans le liquide tend à diminuer la barrière énergétique (énergie d'activation) qu'un germe doit franchir pour croître.

Au cours de la solidification, on définit un taux de germination I qui suit une loi de type Arrhenius [15] :

$$I = I_0(N - N_0)\exp\left(-\frac{\Delta G_n}{K_B T}\right) \quad (\text{I.20})$$

Où I_0 est une constante (de l'ordre de 10^{20} s^{-1} pour les métaux), N_0 le nombre total de sites de germination par unité de volume, N le nombre de sites activés, ΔG_n l'énergie d'activation, K_B la constante de Boltzmann et T la température. Dans son approche de la germination hétérogène, Hunt [15] a admis que pour de faibles surfusions : $\frac{\Delta G_n}{K_B T} \propto a / (\Delta T)^2$ où ΔT est la surfusion imposée au système et a une constante qui va dépendre du système considéré et qui peut s'estimer comme : $a = (\Delta T_n)^2 \cdot \ln(N_0 \times 10^{20})$. Le taux de germination dépend donc des conditions de refroidissement (nombre de sites activés, surfusion) et des propriétés du matériau (nombre de sites de germination, surfusion de germination).

I.3.3.2. Instabilité de l'interface

Considérons le cas d'un alliage métallique binaire de concentration C_0 en élément d'alliage et d'une interface plane avançant avec une vitesse V en régime stationnaire. Au cours de la solidification de l'alliage, la solubilité inférieure du solide (le coefficient de partage, k , est inférieur à 1 (figure. I.17) induit un rejet de soluté en avant de l'interface. Ce rejet est localisé dans une couche limite δ_c caractérisée par la diffusion du soluté dans le liquide D_l , et la vitesse d'avancement de l'interface V , $\delta_c = D_l/V$. Le profil de concentration résultant est schématisé sur la figure I.16-a. La concentration du soluté dans cette couche limite décroît exponentiellement avec la distance x de C_0/K à C_0 .

$$C(x) = \left(\frac{C_0}{k} - C_0\right) \exp\left(-\frac{Vx}{D_l}\right) \quad (\text{I.21})$$

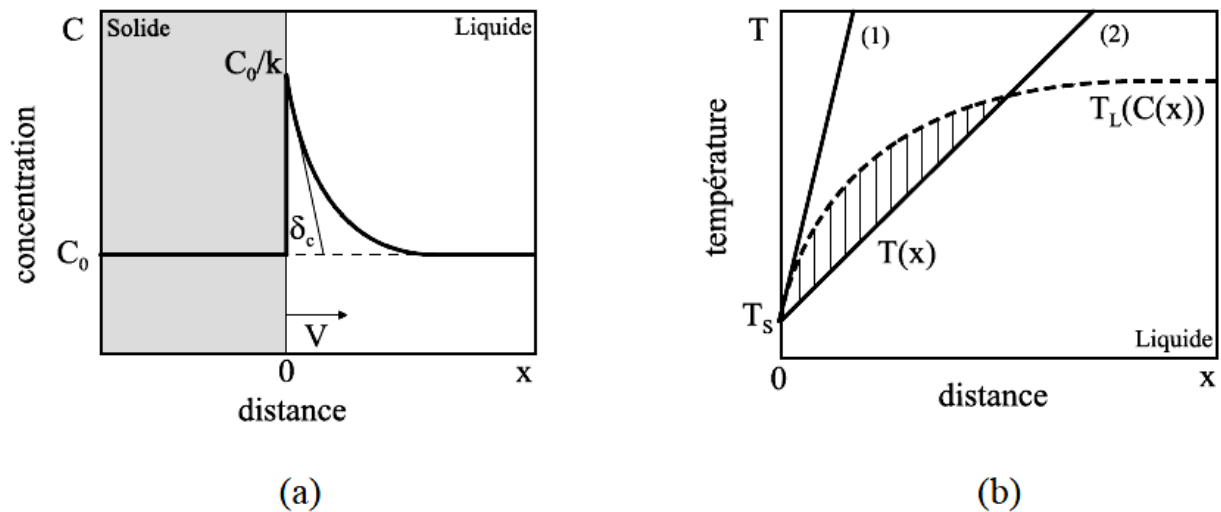


Figure. I.16. Profil de concentration (a) et de température (b) à l'interface-solide liquide. Le rejet du soluté est localisé dans la zone liquide en avant de l'interface (a). On peut observer sur la figure (b) les conditions pour lesquelles le système reste stable (1) on se retrouve en surfusion constitutionnelle (2) (partie hachurée) [1].

En accord avec le diagramme de phase (figure. I.9), la température du liquide est décrite par la relation :

$$T_L(C(x)) = T_L + m(C(x) - C_0) \quad (\text{I.22})$$

T_L et m correspondent respectivement à la température de liquidus et à la pente du liquidus.

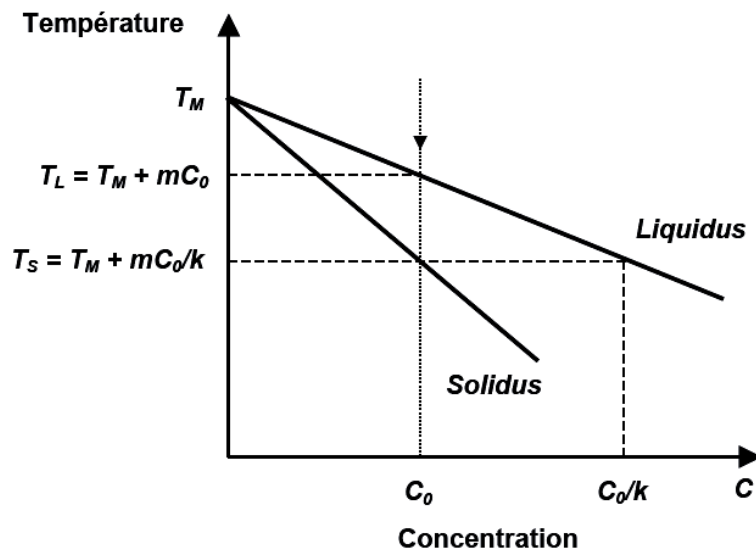


Figure. I.17. Représentation schématique d'un diagramme de phase binaire ($k < 1$) [1].

La stabilité de cette interface va alors dépendre de l'évolution de la température $T(x)$ imposée par le flux de chaleur présent lors de la solidification.

$$T(x) = T_M + m \frac{C_0}{k} + G \cdot x \quad (\text{I.23})$$

On distingue deux cas (figure. I.8-b):

- 1- si $T(x)$ est supérieure à $T_L(C(x))$ localement, la situation reste stable, le front de solidification est plan.
- 2- si $T(x)$ est inférieure à $T_L(C(x))$ localement, la situation devient instable, le front de solidification se déstabilise. Cette condition d'instabilité est appelée surfusion constitutionnelle, car elle dépend uniquement du rejet de soluté dans un gradient de température donné.

Plus précisément on définit un gradient thermique à l'interface :

$$G = \left(\frac{d}{dx} T(x) \right)_{x=0}$$

qui permet de déterminer les conditions de stabilité et d'en déduire les morphologies de l'interface qui en découle (Tableau. I.1). La déstabilisation de cette interface conduit à la formation de microstructures cellulaires ou dendritiques au cours de la solidification. Deux classes de croissance peuvent être définies :

- 1- La croissance sous contrainte (solidification dirigée, $G > 0$) qui correspond à une extraction de chaleur unidirectionnelle. Les dendrites croissent, en général, de manière colonnaire dans la direction du gradient thermique créé, en suivant l'avance des isothermes (cas de la figure I.16-b).
- 2- La croissance non contrainte (solidification équiaxe, $G < 0$) qui correspond à une extraction de chaleur radiale homogène autour du germe, dans un liquide en surfusion. La dendrite croît de manière équiaxe jusqu'à sa rencontre avec une voisine. Il est à noter qu'une croissance équiaxe peut avoir lieu dans un gradient thermique positif, c'est le cas lors de la transition colonnaire-équiaxe (détaillé ultérieurement).

Gradient thermique	Solidification dirigée $G > 0$
$G > \frac{\Delta T_0}{D_{l/v}}$	Stable
$G < \frac{\Delta T_0}{D_{l/v}}$	Instable

Tableau I.1. Condition de stabilité dans le cas d'une solidification dendritique colonnaire pour un alliage binaire $\Delta T = T_L - T_S = mC_0 \left(1 - \frac{1}{k}\right)$

I.3.4. Développement des microstructures dendritiques

I.3.4.1. Cinétique de la croissance

La cinétique de croissance d'une dendrite est fortement dépendante des phénomènes qui interviennent au voisinage de sa pointe. Ces derniers peuvent être résumés par la notion de surfusion de la pointe de la dendrite, ΔT^* , qui, pour des vitesses pas trop élevées, somme les écarts à l'équilibre du point de vue thermique, ΔT_t , chimique, ΔT_c , (rejet de chaleur et de soluté) et de la courbure, ΔT_r , (voir figure I.18):

$$\Delta T^* = \Delta T_t + \Delta T_c + \Delta T_r \quad (\text{I.24})$$

La surfusion thermique est principalement due au rejet de chaleur latente, c'est à dire lorsque le gradient thermique dans le liquide est négatif (solidification équiaxe).

La surfusion chimique correspond au phénomène de surfusion constitutionnelle vu précédemment, donc au rejet de soluté en avant de l'interface :

$$\Delta T_c = m(C_0 - C_l^*) \quad (\text{I.25})$$

C_l^* : est la concentration du liquide à l'interface (l'astérisque se rapportant à ce qui est à l'interface). La surfusion de courbure prend en compte les phénomènes de tension de surface qui existent à l'interface :

$$\Delta T_r = \Gamma K_l \quad (\text{I.26})$$

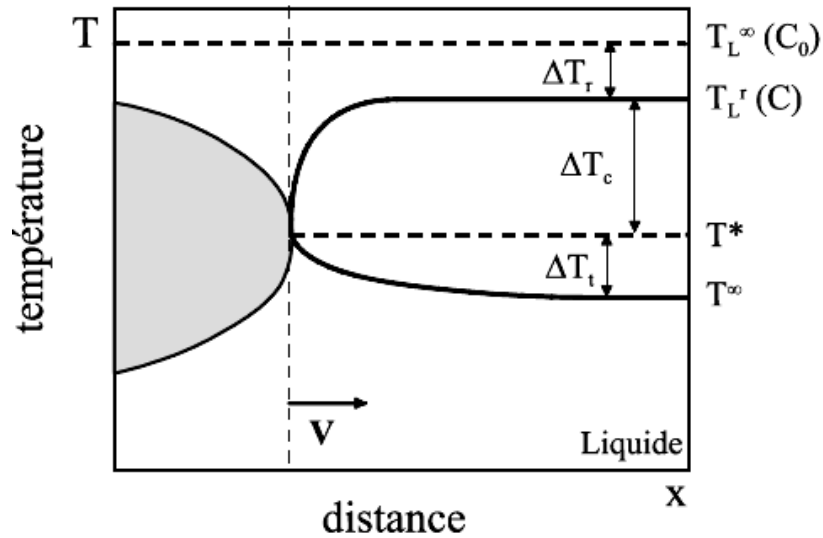


Figure. I.18. Illustration des différentes contributions qui constituent la surfusion cinétique de la pointe de dendrite.

Γ est le coefficient de Gibbs-Thomson, $\Gamma = \sigma / \Delta S_f$, où σ correspond à l'énergie interfaciale solide-liquide et ΔS_f à l'entropie de fusion. K_I est la courbure de l'interface. Remarquons que la surfusion thermique, ΔT_t , peut être négligée devant l'effet de la surfusion chimique, ΔT_c , pour la plupart des alliages métalliques industriels. En effet, la diffusivité thermique ($\sim 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$) est beaucoup plus importante que la diffusion chimique ($\sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$). On peut donc réécrire la relation (I.12) :

$$\Delta T^* = \Delta T_c + \Delta T_r = T_l - T^* \quad (\text{I.27})$$

T^* correspond à la température de la pointe de dendrite. Il s'agit alors de déterminer l'effet du rejet de soluté à la pointe de la dendrite et l'effet de sa courbure sur la morphologie de croissance.

Pour rendre compte de la diffusion à la pointe de la dendrite (cas du champ de diffusion stationnaire), on définit un nombre, le nombre de Péclet, qui correspond au rapport de la dimension caractéristique du système, R (le rayon de courbure de la dendrite) et de la distance de diffusion du soluté δ_c :

$$Pe = \frac{RV}{2D_l} \quad \& \quad \delta_c = 2D_l/V \quad (\text{I.28})$$

La solution mathématique à ce problème de champ de diffusion (résolution de l'équation de bilan de soluté) a été élaborée par Ivantsov [30] dans le cas d'une pointe parabolique :

$$\Omega = I_v(Pe) \quad (\text{I.29})$$

Avec

$$\Omega = \frac{C_l^* - C_0}{C_l^*(1 - k)}$$

$$I_v(Pe) = Pe \cdot \exp(Pe) \cdot E_1(Pe)$$

Ω est défini comme la sursaturation, $I_v(x)$ correspond à la fonction d'Ivantsov et $E_1(x)$ est la fonction exponentielle intégrale.

Dans le but de déterminer la morphologie de la pointe de la dendrite, un critère de stabilité marginale a été introduit par Langer et Müller-Krumbhaar en 1977 [31]. En tenant compte de l'effet de la courbure, il a été proposé que la dendrite croisse avec un rayon de courbure équivalent à la longueur d'onde de la stabilité marginale, λ_i :

$$R = \lambda_i = 2\pi \sqrt{\frac{\Gamma}{mG_c - G}} \quad (\text{I.30})$$

G_c correspond au gradient chimique (soluté) à la pointe de la dendrite dans le liquide, de l'élément d'alliage considéré : $D_l G_c = -VG_l^*(1 - k)$. Désormais il est donc possible de calculer R ou T^* indépendamment de V en utilisant les relations (I.28) et (I.29).

Le modèle KGT (Kurz, Giovanola, Trivedi [32]) combine alors la solution d'Ivantsov et le critère de stabilité marginale, dans le cas d'alliages binaires pour déterminer l'évolution du rayon de courbure, de la température à la pointe de la dendrite et de l'espacement primaire avec la vitesse de croissance (fig. I.19). Les microstructures susceptibles d'être rencontrées peuvent être déduites de ces courbes d'évolution comme le montre la figure (I.20). A faible vitesse de croissance, l'interface reste stable. A la valeur correspondant à la surfusion constitutionnelle, le front se déstabilise et conduit à la naissance de cellules puis de dendrites. Remarquons qu'à haute vitesse, l'interface se stabilise une nouvelle fois, on atteint alors la stabilité absolue (pour plus de détails sur ce phénomène se reporter à la référence [32]).

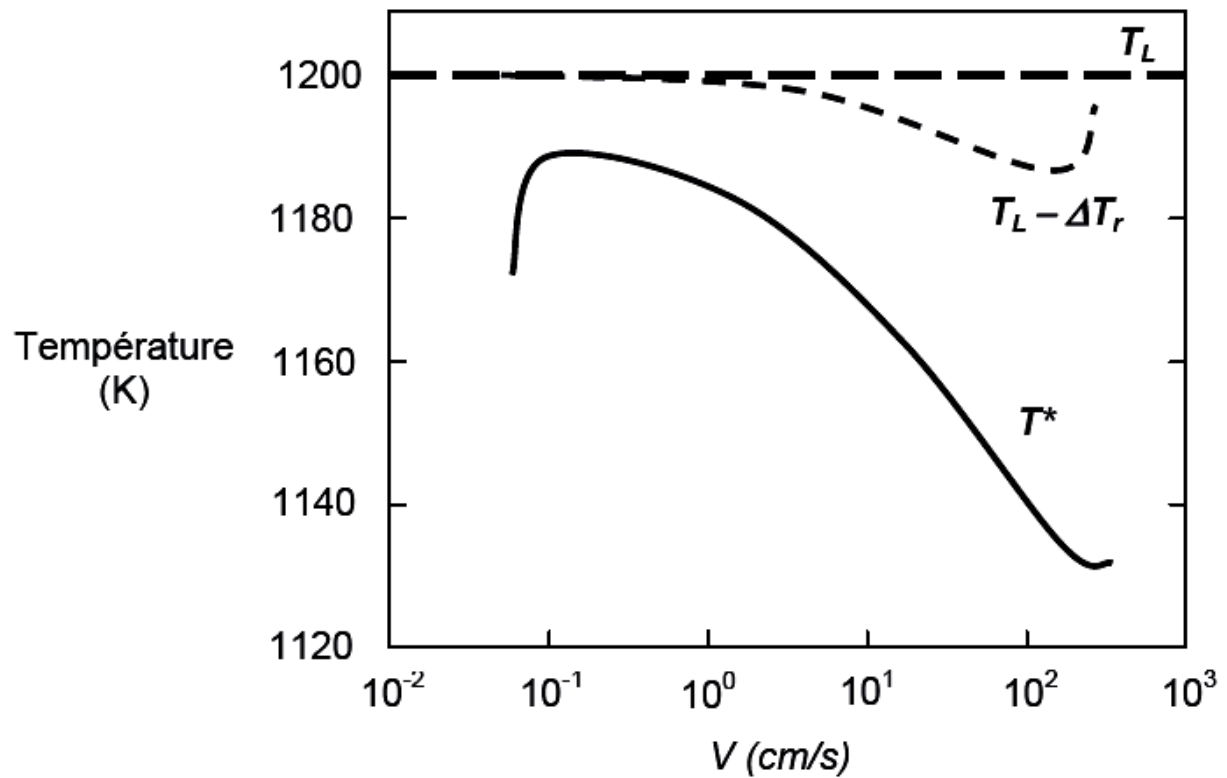


Figure. I.19. Évolution de la température de la pointe de dendrite (notée T_i sur la figure) avec la vitesse de croissance pour l'alliage Ag-5%Cu [32]

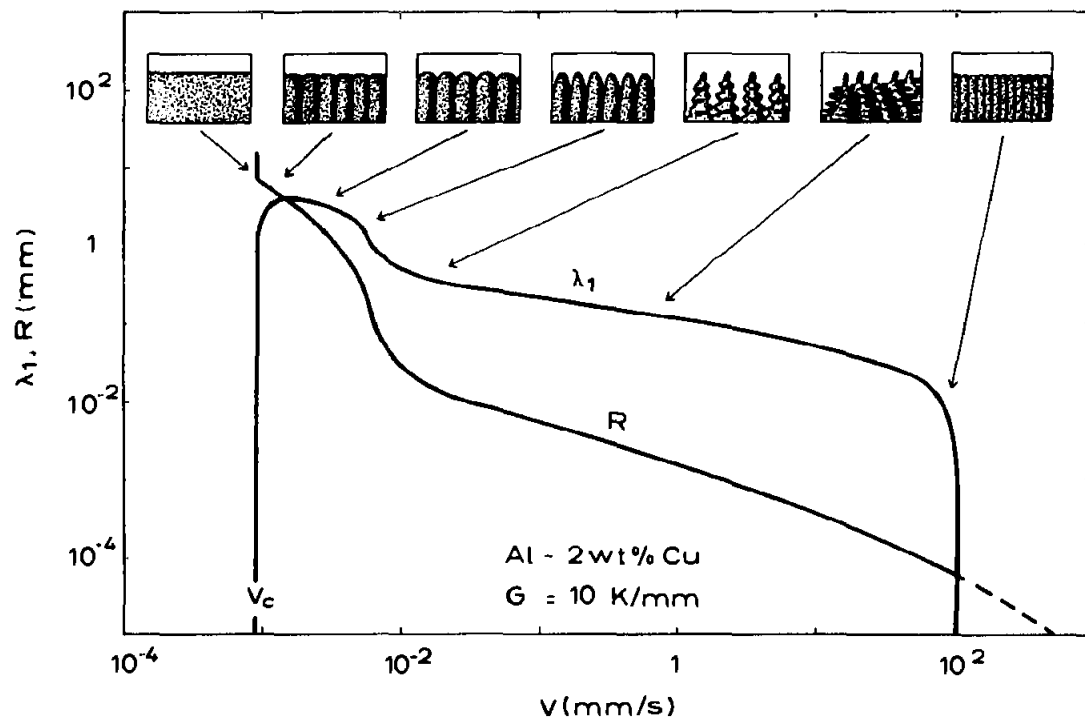


Figure. I.20. Représentation des microstructures déduites de l'évolution du rayon de courbure du rayon de dendrite et de l'espacement primaire des bras de dendrite avec la vitesse de croissance pour un alliage Al-2%Cu [1]

I.3.4.2. Espacements primaires et secondaires des bras de dendrite

La figure (I.21) illustre les grandeurs caractéristiques qui définissent la microstructure dendritique. On peut noter le rayon de courbure de la pointe, R , ainsi que λ_1 et λ_2 qui correspondent respectivement aux espacements entre les troncs primaires et secondaires. La microstructure, et donc la variation de ces paramètres, ont une influence prépondérante sur les propriétés des matériaux (propriétés mécaniques par exemple).

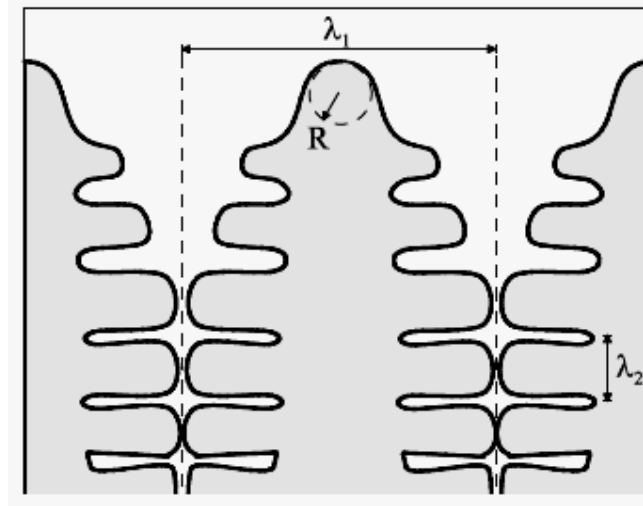


Figure. I.21. Représentation des caractéristiques principales qui définissent les dendrites

Les modèles de prédiction de l'espacement primaire s'accordent à dire qu'il est une fonction de l'étendue de la zone pâteuse, du gradient thermique et de la vitesse de croissance des dendrites [33]. La relation généralement utilisée est la suivante :

$$\lambda_1 = 4.3 \left(\frac{D_l \Gamma \Delta T_0}{K} \right) V^{-\frac{1}{4}} G^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{I.31})$$

Les bras secondaires, de leur côté, évoluent de manière conséquente depuis leur naissance jusqu'à leur dimension finale. Reprenant les travaux de Kattamis et Flemings [34], Feurer et Wunderlin [35] ont développé un modèle basé sur le phénomène de maturation pour calculer λ_2 selon l'équation générale :

$$\lambda_2 = 5.5 (M \cdot t_f)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{I.32})$$

Avec

$$M = \frac{\Gamma D_l \ln\left(\frac{C_l}{C_0}\right)}{m(1-K)(C_l - C_0)} \quad \text{et} \quad t_f = \frac{\Delta T'}{|\dot{T}|} = \frac{\Delta T'}{|GV|} \quad (\text{I.33})$$

Où M est un facteur de maturation, t_f le temps de solidification, C_l correspond à la concentration finale du liquide en soluté et $\Delta T'$ à la différence de température entre la pointe de la dendrite et la température du solidus. Remarquons qu'en première approximation on peut considérer que :

$$\Delta T' = \Delta T_0$$

I.4. TRANSITION COLONNAIRE-EQUIAXE

Il a été vu précédemment que dans le cas d'une croissance dendritique, deux modes peuvent être distingués : la croissance colonnaire (solidification dirigée) et la croissance équiaxe (solidification non-contrainte). La transition entre ces deux modes de croissance est fonction de l'évolution des conditions thermiques et solutale au cours de la solidification. Cette transition, appelée transition colonnaire-équiaxe (ou "columnar to equiaxed transition", CET), a un impact très prononcé sur les propriétés intrinsèques du matériau puisque la microstructure résultante est complètement différente.

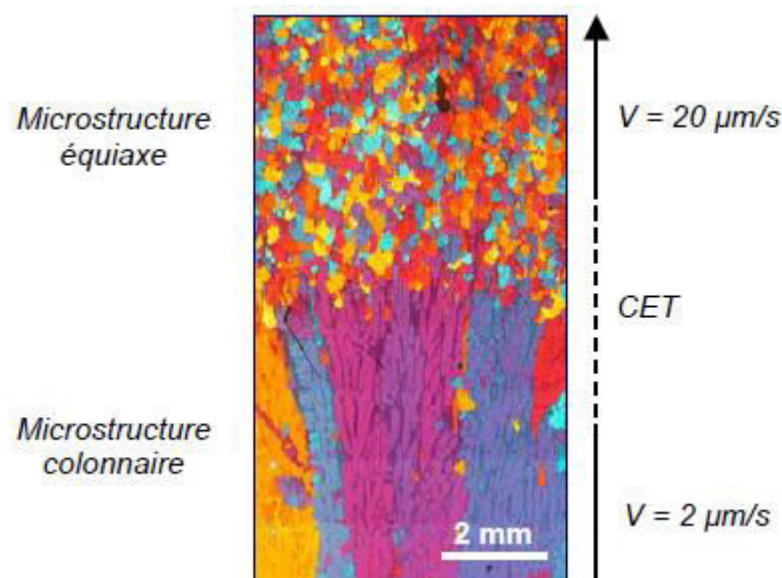


Figure I.22 : Coupe longitudinale d'un barreau cylindrique d'alliage Al-3,5% pds Ni affiné pour lequel la transition d'une microstructure colonnaire à une microstructure équiaxe a été obtenue en appliquant une augmentation de la vitesse de solidification (H. Jung, L2MP).

L'existence de grains équiaxes en solidification dirigée est liée au fait qu'il existe une zone de liquide surfondu entre la température de pointe des dendrites colonnaires T^* et la température du liquidus T_L . Si des germes solides sont présents dans cette zone, ils peuvent

croître et une compétition entre la croissance de cristaux équiaxes libres et l'avancée du front colonnaire s'établit, pouvant conduire à la CET. La formation des germes solides, embryons des grains équiaxes, peut avoir deux origines :

- 1- *La fragmentation* : les germes peuvent provenir de fragments de bras dendritiques détachés par refusion locale et transportés par convection dans la zone de liquide surfondu (Fig. I.23). La fragmentation n'est pas un phénomène bien connu, seules quelques déductions issues d'observations sur la solidification d'alliages organiques ont été faites C.J. Paradies [44] et T. Sato [45]. Comme Jackson [46], Sato et Paradies attribuent cette fragmentation à la conséquence d'une refusion locale des sections les plus fines des bras de dendrites (effet de cou). De son côté, Liu [47] est arrivé à la conclusion que la fragmentation est principalement générée par la dissolution des bras des dendrites causée par une variation solutale dans la zone pâteuse, elle-même induite par la décélération de la vitesse de refroidissement. Gu et Beckermann [48] comme Hellawell [49] attribuent la formation de fragments à la dissolution solutale des dendrites dans le cas précis de création de canaux ségrévés (*freckles*). Remarquons que concernant l'effet du mouvement du liquide sur le réseau dendritique, Pilling a conclu que les déformations mécaniques induites par convection du liquide interdendritique ne pouvaient pas être la cause du détachement des bras de dendrites [50].

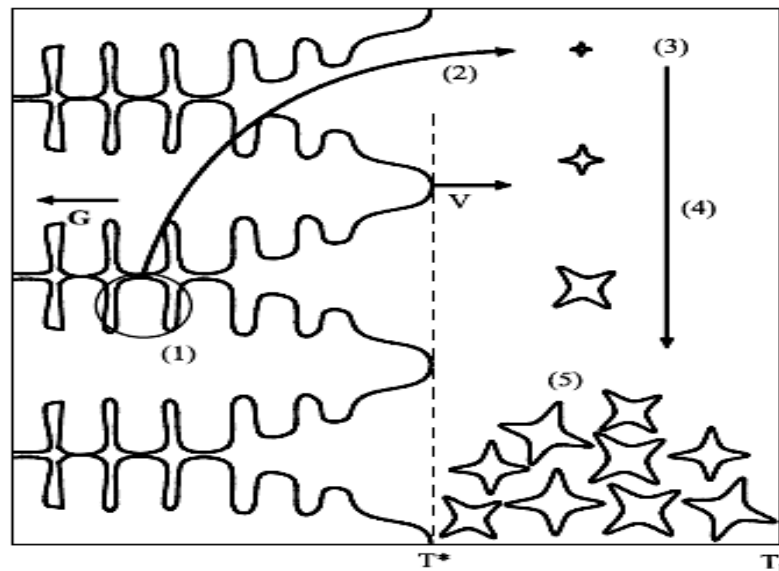


Figure. I.23. Représentation schématisée de la transition colonnaire-équiaxe. Dans ce cas, la surfusion colonnaire est supérieure à la surfusion de germination, la germination en avant du front peut avoir lieu et conduire à une structure équiaxe [54].

- 2- *L'inoculation* : l'adjonction de particules germinantes efficaces (affinants), qui font office de sites préférentiels de germination hétérogène, favorise la transition colonnaire – équiaxe, même si une faible partie du liquide est surfondue. Il suffit que la surfusion nécessaire pour la germination ΔT_n de cristaux sur les particules soit plus faible que la surfusion maximale dans le liquide, et que la densité de particules affinantes soit suffisamment élevée.

I.4.1 Modèle de blocage mécanique pour la CET

Considérons le cas d'un front colonnaire dendritique avançant à une vitesse V dans un gradient thermique G (figure. I.18). La croissance des dendrites induit une zone en surfusion, $\Delta T^* = T_L - T^*$, en avant du front. Deux cas peuvent alors être distingués :

- 1- la surfusion est inférieure à la surfusion de germination (surfusion nécessaire pour qu'il y ait germination) : la croissance reste colonnaire;
- 2- la surfusion est supérieure à la surfusion de germination : des grains équiaxes vont se développer en avant de l'interface, dans la zone en surfusion (figure. I.24).

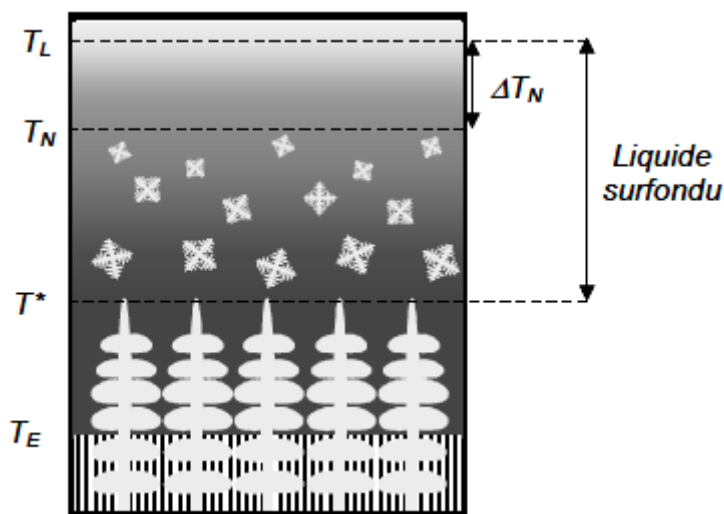


Figure I.24. Représentation schématique de la transition colonnaire – équiaxe. Dans ce cas, la surfusion colonnaire étant supérieure à la surfusion de germination, la germination en avant du front peut avoir lieu et conduire à une structure équiaxe [55].

Contrairement au mécanisme relativement simple qui vient d'être exposé, le phénomène de transition colonnaire-équiaxe reste un processus complexe dans lequel intervient la germination, les cinétiques de croissances colonnaires et équiaxes, les directions de croissances préférentielles ainsi que l'effet de la convection du liquide et le transport de

soluté qui en découle. La majorité des travaux concernant la CET tendent à définir une méthode de prédiction de cette transition. S'appuyant sur des modèles qualitatifs [36], ces méthodes sont basées sur un modèle mixte de germination hétérogène et de croissance dendritique. Différentes approches ont été utilisées : analytique et numérique.

Hunt [15], a établi un critère analytique de transition relativement simple. Ce critère, basé sur la valeur du gradient thermique à l'interface, prend en compte d'une part le nombre de sites de germination par unité de volume, N_0 , et d'autre part le rapport entre la surfusion de germination et la surfusion constitutionnelle [15]. Utilisant la notion de fraction volumique étendue de cristaux équiaxes, où r est le rayon d'un grain équiaxe, un critère de croissance est défini : complètement colonnaire si $\Phi_E < 0.0066$, complètement équiaxe si $\Phi_E > 0.66$. Considérons le rayon, r , d'un grain obtenu par intégration de la vitesse d'un grain équiaxe :

$$\Phi_E = \frac{4\pi r^3}{3} \quad (\text{I.34})$$

$$r = \int_0^t V_e dt = \frac{4(\Delta T^3 - \Delta T_n^3)}{3VG C_0} \quad (\text{I.35})$$

Où la vitesse de croissance d'un grain équiaxe, donnée par celle des pointes de la dendrite, est estimée en utilisant un modèle approximatif du type KGT présenté auparavant : $V_e = A \cdot (\Delta T)^2 / C_0$. La vitesse de refroidissement est définie comme $\frac{dT}{dt} = -GV = \frac{d(\Delta T)}{dt}$, [1]. A est une constante de croissance qui dépend du système considéré, ΔT est la surfusion locale. En combinant les équations (I.22) et (I.23) dans le cas d'une croissance colonnaire (la surfusion de croissance du front colonnaire équivaut à $(\Delta T_{col} = (VC_{0/A})^{1/2})$ on obtient un critère basé sur la valeur du gradient thermique. Dans le cas d'une structure colonnaire G doit être :

$$G > 0.617 (100N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_{col}^3}\right) \Delta T_{col} \quad (\text{I.36})$$

Dans le cas d'une croissance équiaxe, nous avons :

$$G < 0.617 (100N_0)^{1/3} \left(1 - \frac{\Delta T_n^3}{\Delta T_{col}^3}\right) \Delta T_{col} \quad (\text{I.37})$$

Tout ceci est valable sous certaines hypothèses simplificatrices :

- le transport du soluté est considéré uniquement par diffusion (sans convection);
- on considère des sites de germination hétérogènes aléatoirement distribués qui sont activés dès que la surfusion en avant du front de solidification est supérieure à ΔT_n ;
- la croissance d'un grain équiaxe est sphérique;

- la thermique est stationnaire, la vitesse de croissance du front colonnaire et le gradient thermique sont donc constants;

A partir des équations (I.24) et (I.25) des cartes de microstructure peuvent donc être calculées pour chaque système considéré. A titre d'exemple, la figure (I.25) présente la carte de microstructure calculée pour l'alliage Al-3,5wt.%Ni. Généralement la croissance équiaxe est favorisée si la vitesse de solidification, la concentration en élément d'alliage, ainsi que le nombre de sites de germination sont augmentés, et si la surfusion de germination ou le gradient thermique sont diminués.

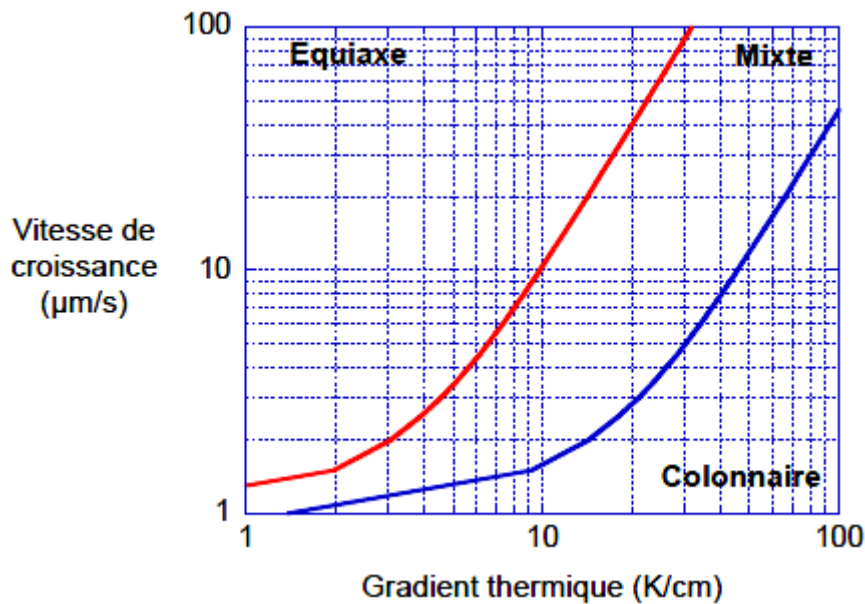


Figure I.25. Diagramme de Hunt de l'alliage Al – 3,5 % pds Ni pour une surfusion de germination $\Delta T_n = 0,1K$ et une densité volumique d'affinant $N_0 = 1,25.10^{11} m^{-3}$, [55].

Par la suite, Flood a développé un modèle numérique en utilisant une description moins simplifiée des échanges thermiques entre la croissance et l'avance du front de solidification [37]. S'inspirant du modèle de Hunt, le développement numérique de Gaumann complète son étude, en s'intéressant plus précisément à la germination [38]. Wang considère une approche par différences finies pour résoudre le problème [39]. Il est important de noter que les modèles présentés sont uniquement valables dans le cas d'une croissance orientée parallèlement au flux de chaleur.

Dans le but de déterminer des cartes de microstructure concernant la solidification de superalliages, Gaumann a alors adapté le modèle de Hunt, en tenant compte de l'orientation de la croissance [40]. De la même façon, Gandin a développé un modèle d'automate cellulaire permettant de tenir compte, entre autre, de la désorientation de la croissance dendritique par

rapport à l'avance des isothermes [41]. Couplé à des calculs de flux de chaleur par éléments finis, cette approche a été complétée par un outil numérique de prédiction de la structure de grain en 2D puis en 3D [42].

La CET est d'un grand intérêt pour l'industrie. Cependant ce phénomène est d'une complexité accrue par la diversité des conditions de coulée qui l'induisent (ajout d'inoculants, effet de la vitesse de refroidissement, solidification sous convection naturelle ou forcée). C'est la compréhension des mécanismes mis en jeu lors de la CET qui nous permettra d'expliquer en détail l'affinage de la structure de coulée.

I.4.2 Modèle de blocage chimique pour la CET

Dans ce modèle, un nouveau mécanisme de transition colonnaire – équiaxe est considéré. Ce mécanisme est basé sur la présence d'interactions chimiques dues au rejet de soluté lors de la croissance des grains. Les équations sont basées sur le modèle de Wang et Beckermann établi quelques années auparavant [39]. La convection est négligée ainsi que le mouvement des grains équiaxes libres (des phénomènes tels que la sédimentation des grains due à la gravité ne sont pas pris en compte). Martorano et al définissent trois phases dans un volume élémentaire :

- un solide de fraction volumique ε_s ,
- un liquide intradendritique de fraction ε_d ,
- un liquide extradendritique de fraction ε_l .

La fraction volumique de grains est donnée par $\varepsilon_g = \varepsilon_s + \varepsilon_d$. Autrement dit, les liquides inter- et extra-dendritiques sont séparés par une enveloppe imaginaire entourant les grains comme illustré figure (I.26).

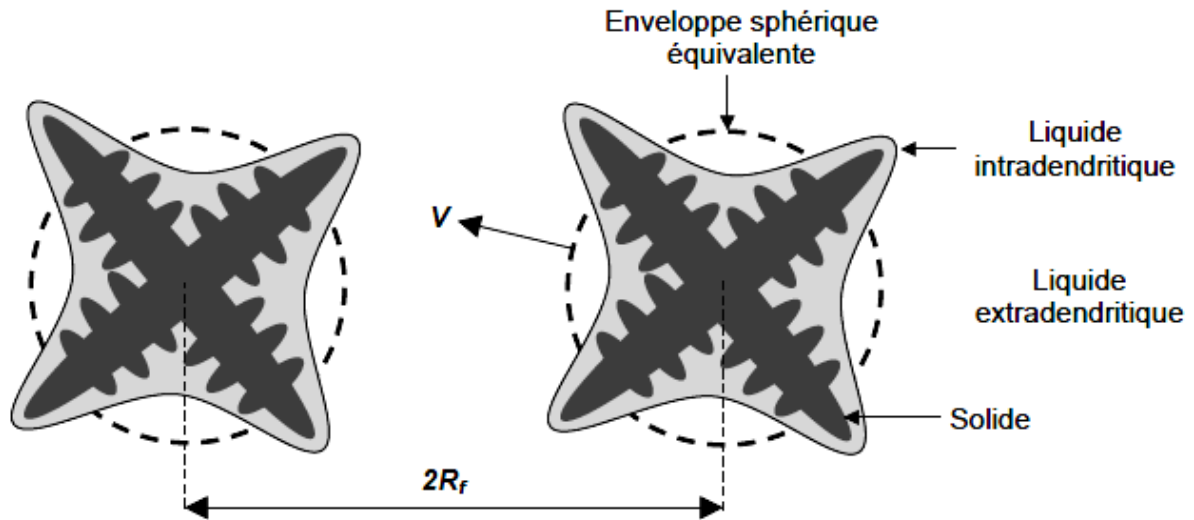


Figure I.26. Schéma illustrant l'enveloppe autour d'un grain dendritique séparant le liquide inter- du liquide extra-dendritique [51].

Avec ces notations, le critère de transition colonnaire – équiaxe de Hunt [15] devient : $\varepsilon_g = 49 \%$. Pour modéliser le grain équiaxe avec ses branches dendritiques, une sphère équivalente de surface S_e est considérée (figure I.26). Enfin, l'espacement entre les grains est noté R_f .

Aux équations de conservation d'énergie et de soluté est ajoutée une vitesse de croissance du grain régie par une cinétique de croissance de pointe libre, J. Lipton [36] :

$$V = f(\Omega) \text{ avec } \Omega = \frac{C_L^* - C_L}{C_L^*(1-k)} \text{ et } f(0) = 0 \quad (\text{I.38})$$

Où C_L et C_L^* représentent respectivement la concentration dans le liquide et la concentration aux pointes des dendrites.

Dans le modèle de Hunt, C_L est une concentration considérée constante, égale à C_0 , alors que l'originalité du modèle de Martorano et al consiste à prendre en compte les variations de C_L pour la croissance des grains équiaxes, mais pas pour celle du front colonnaire. Les phénomènes mettant en jeu des interactions solutales sont alors pris en compte, comme le blocage solutal qui est dû au rejet de soluté par les grains équiaxes au cours de leur solidification. Le rejet de soluté enrichit le liquide inter-dendritique (figure I.27) et par conséquent le gradient de concentration, qui est la force motrice de la croissance, va diminuer progressivement. La croissance des grains va alors ralentir jusqu'à s'arrêter sans que les grains entrent en contact direct.

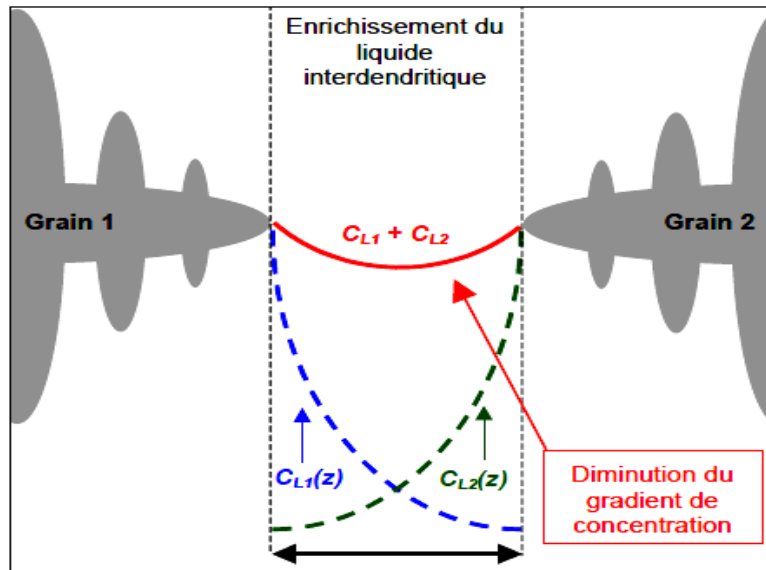


Figure. I.27. Schéma illustrant le profil de concentration entre deux grains au cours du blocage solutal. Le rejet de soluté enrichit le liquide interdendritique et le gradient de concentration diminue, ce qui entraîne un ralentissement puis l'arrêt total de la croissance des grains [54].

Le modèle de Martorano [51] permet de mettre en évidence deux cas limites pour la CET, représentés sur la figure (I.28). Dans le cas I, la densité de grains équiaxes est relativement grande, comme dans le cas où un inoculant est employé, et les grains restent pratiquement globulaires. Un grand nombre de grains globulaires rejettent une grande quantité de soluté dans le liquide environnant, causant une réduction rapide de la surfusion solutale en avant du front colonnaire. La CET a alors lieu pour des valeurs de fraction volumique inférieures à 0,49 (critère de Hunt). Dans le cas II, la densité de grains est relativement plus petite et la taille des grains est plus grande (R_f augmente). Les grains équiaxes deviennent fortement dendritiques. Ainsi, pour les grandes valeurs de R_f , la concentration C_L demeure un certain temps proche de C_0 avant de tendre vers C_L^* . Pendant cette durée, les grains équiaxes croissent et la transition colonnaire – équiaxe a lieu pour des fractions volumiques $\varepsilon_g > 49\%$, comme prévu par le critère de Hunt.

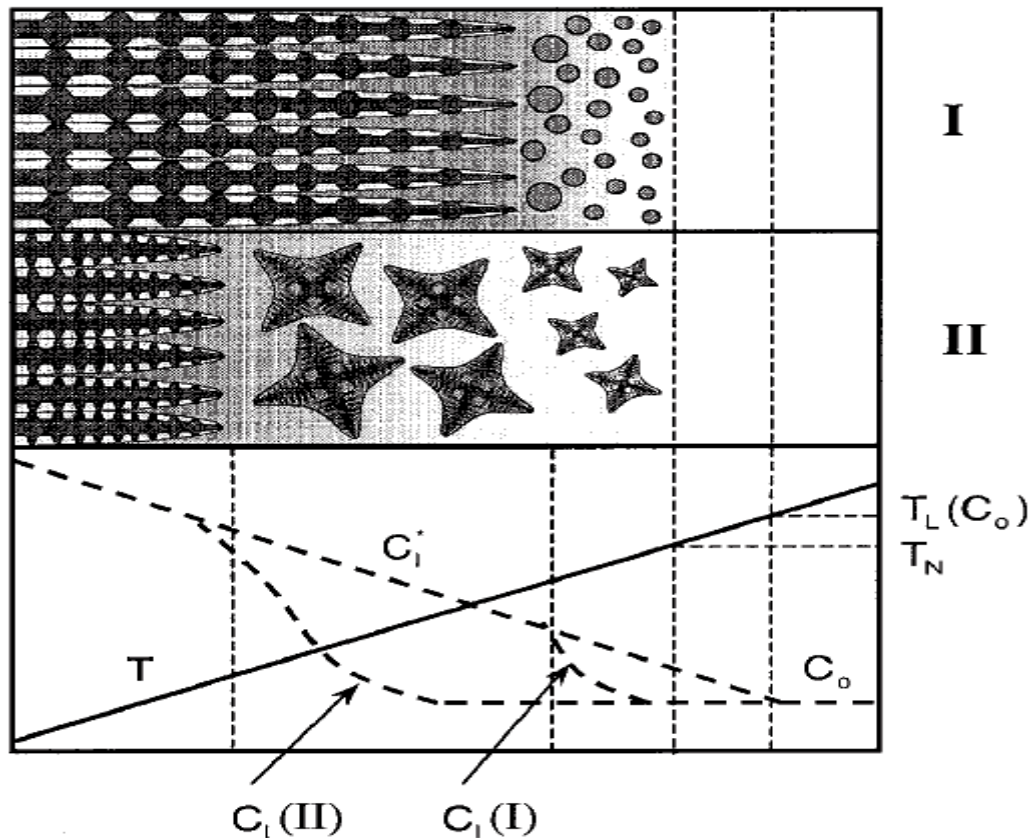


Figure. 1.28. Illustration schématique des interactions solutales entre les grains colonnaires et équiaxes d'après [51]. Cas I : interactions solutales en présence d'une grande densité de grains. Cas II : interactions solutales en présence d'une densité plus petite.

La comparaison du modèle de Martorano et al [51] avec ceux réalisées pas Gandin montre une concordance satisfaisante pour la CET. Cependant, les auteurs proposent des expériences complémentaires et nécessaires pour tester le modèle et mieux comprendre les mécanismes de la transition colonnaire – équiaxe. Récemment, Badillo et Beckermann [52] ont développé un modèle de CET en utilisant la méthode du champ de phase. Ils ont mis en évidence entre autre l'allongement des grains équiaxes dans le sens du gradient de température au cours de leur croissance, l'existence d'un régime mixte colonnaire – équiaxe de croissance pour des vitesses élevées ainsi qu'une désactivation du potentiel de germination des particules par les interactions solutales.

Enfin, il est très important de noter que les modèles classiques de CET ne tiennent pas compte de la convection naturelle ou forcée qui a pourtant une influence majeure (mouvements des fragments, des particules et des grains équiaxes, modification de la répartition du soluté...) ni des effets dus à la gravité (sédimentation des particules et des grains équiaxes...).

I.5. CONCLUSION PARTIELLE

L'étude théorique et bibliographique présentée dans ce chapitre est basée essentiellement sur les notions fondamentales du phénomène de solidification des alliages métalliques binaires, et directement inspiré de la littérature classique telle que Kurz et Fisher [1], Flemings [2], ou encore Rappaz et al. [29] et [41], sur lesquelles se construira le reste du travail. Ces notions permettront d'appréhender les problématiques développées par la suite. Elle permettra également de faire un bref état des lieux sur la thématique étudiée, les modèles d'équations et l'intérêt porté à l'étude analytique et expérimentale qui sera basée sur une installation expérimentale (benchmark) de solidification afin de situer les travaux menés dans un cadre scientifique plus global.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE I

- [01] W. Kurz and D. J. Fisher, “*fundamentals of solidification*”, fourth revised edition, Trans Tech Publication Ltd., 1998.
- [02] M. C. Flemings, “*Solidification Processing*”, McGraw-Hill, INC., 1974.
- [03] G. Lesoult, « *Solidification, cristallisation et microstructures* », Techniques de l’ingénieur, M 58, pp. 1-26.
- [04] D. J. Allen, J. D. Hunt, “*Discussion of the nucleation and solidification of Al-Ti alloys*”, Met Trans. A, 10A, p.1389, 1979.
- [05] H. D. Brody and M. C. Flemings, “*Solute Redistribution in Dendritic Solidification*”, Transactions of the metallurgical society of AIME. Vol 236, (1966), p. 615.
- [06] P. Prescott, F. Incropera, “*Convection heat and mass transfer in alloy solidification*”, Advances in Heat Transfer, Vol 28, pp. 231-337, 1996.
- [07] J. R. Sarazin, A. Hellawell, “*Channel formation in Pb-Sn, Pb-Sb and Pd-Sn-Pb alloy ingots and comparison with the system*”, Metallurgical Transactions A19 (1988), p. 1861-1871.
- [08] P. Lehmann, G. Lesoult, S. Denis, « *Ségrégations héritées de la solidification dans les matériaux de structure : mécanisme de formation et conséquences sur les traitements thermiques et thermomécaniques* », Journées du Programme Matériaux, Colloque d’étape, 13-15 décembre 2000, p. 91-95.
- [09] A. F. Giamei, B. H. Kear, “*On the nature of freckles in nickel base superalloys*” Metall. Trans. Vol 1, pp. 2185-92, 1970.
- [10] L. Hachani, B. Saadi, X. D. Wang, A. Nouri, K. Zaidat, A. Belgacem-Bouzida, L. Ayouni-Derouiche, G. Raimondi, Y. Fautrelle, “*Experimental analysis of the solidification of Sn-3 wt.%Pb alloy under natural convection*”. Int. J. of Heat and Mass Transfer Vol 55, (2012), p. 1986-1996.
- [11] G. H. Gulliver, “*Metallic Alloy: their structure and constitution*”, London, Griffin, 1922.
- [12] E. Scheil, “*Bemerkungen zur Schichtkristallbildung*”, Z Metallforschung.Vol 34, (1942), p. 70.
- [13] T. W. Clyne and W. Kurz, “*Solute Redistribution during Solidification with Rapid Solid State Diffusion*”, Met Trans. Vol 12A, (1981), p. 965.
- [14] S. Kobayashi, “*Solute Redistribution during Solidification with Diffusion in Solid Phase: A Theoretical Analysis*”, Journal of crystal growth. Vol 88, (1988), p. 87.
- [15] J. D. Hunt, “*Steady-state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectics*”, Mater. Sci. Eng. Vol 65. (1984).p. 75.
- [16] M.C. Flemings and G.E. Nereo, “*Macrosegregation: Part I*”, Trans. Met. Soc. AIME, Vol 239, 1967, p 1449–1461

- [17] R. Mehrabian, M. Keane, and M.C. Flemings, “*Interdendritic Fluid Flow and Macrosegregation: Influence of Gravity*”, Metall. Trans., Vol 1, 1979, p 1209–1220
- [18] Ch. Beckermann, “*Macrosegregation*”, ASM Handbook, Vol 15, 2008, p 348-352
- [19] D. R. Poirier, “*Permeability for Flow of Interdendritic Liquid in Columnar-Dendritic Alloys*”, Metall. Trans. B, Vol 18, 1987, p 245–255
- [20] I. Ohnaka and M. Matsumoto, “*Computer Simulation of Macrosegregation in Ingots*”, Tetsu-to-Hagane (J. Iron Steel Inst. Jpn.), Vol 73, 1987, p 1698–1705
- [21] J.S. Kirkaldy and W.V. Youdelis, “*Contribution to the Theory of Inverse Segregation*”, Trans. Met. Soc. AIME, Vol 212, 1958, p 833–840
- [22] M.C. Schneider, J.P. Gu, C. Beckermann, W.J. Boettinger, and U.R. Kattner, “*modelling of Micro- and Macrosegregation and Freckle Formation in Single-Crystal Nickel-Base Superalloy Directional Solidification*”, Metall. Mater. Trans. A, Vol 28, 1997, p 1517–1531
- [23] Ch. Beckermann, “*Modelling of Macrosegregation: Applications and Future Needs*”, Int. Mater. Rev., Vol 47, 2002, p 243–261
- [24] M.C. Flemings, “*Principles of Control of Soundness and Homogeneity of Large Ingots*”, Scand. J. Metall., Vol 5, 1976, p 1–15
- [25] G. Lesoult, “*Macrosegregation in Steel Strands and Ingots: Characterization, Formation and Consequences*”, Mater. Sci. Eng. A, Vol 413–414, 2005, p 19–29
- [26] J. P. Gu and C. Beckermann, “*Simulation of Convection and Macrosegregation in a Large Steel Ingot*”, Metall. Mater. Trans. A, Vol 30, 1999, p 1357–1366
- [27] A.V. Reddy and C. Beckermann, “*Modeling of Macrosegregation due to Thermosolutal Convection and Contraction Driven Flow in Direct Chill Continuous Casting of an Al-Cu Round Ingot*”, Metall. Mater. Trans. B, Vol 28, 1997, p 479–489
- [28] J. D. Hunt, “*Steady-State Columnar and Equiaxed Growth of Dendrites and Eutectics*”, Mater. Sci. Eng. V. 65. (1984). p. 75.
- [29] P. D. Grasso, J. M. Dreset and M. Rappaz, “*Hot Tear Formation and coalescence Observations in Organic Alloys*”, Journal of metals – electronic edition. Jan (2002).
- [30] G. P. Ivantsov, *Doklady Akademii Nauk SSSR.*, Vol 58 (1947), p. 567.
- [31] J. S. Langer and H. Muller-Krumbhaar, “*Theory of Dendritic Growth I. II. and III.*”, Acta Met Vol 26, (1978), p. 1681.
- [32] W. Kurz, B. Giovanola and R. Trivedi, “*Theory of Microstructural Development during Rapid Solidification*”, Acta met Vol 34, (1986), p. 823.

- [33] W. Kurz and D. J. Fisher, "*Dendrite Growth at the Limit of Stability: Tip Radius and Spacing*", Acta Met. Vol 29, (1986), p. 11.
- [34] T.Z. Kattamis and M. C. Flemings, "*Dendrite Morphology Microsegregation and Homogeneization of Low-Alloy Steel*", (1965), p. 992.
- [35] U. Feurer and R. Wunderlin, "*fundamentals of solidification*", Trans, Tech. Publication LTD. Aedermannsdorf, Switzerland. (1986)
- [36] J. Lipton, W. Heinemann and W. Kurz, "*Columnar to Equiaxed Transition (CET) in castings - Part I: Determination of the CET from Cooling Curves*", Arch. Eisenhüttenwes. Vol 55. (1984). p. 195.
- [37] S. C. Flood and J. D. Hunt, "*Columnar and Equiaxed Growth II. Equiaxed growth ahead of a columnar front*", J. Crystal Growth, 82, (1987), p. 552.
- [38] M. Gäumann, R. Trivedi and W. Kurz, "*Nucleation Ahead of the Advancing Interface in Directional Solidification*", Mater. Sci. Eng., A226-228, (1997), p. 763.
- [39] C. Y. Wang and C. Berckermann, "*A Multiphase Solute Diffusion Model for Dendritic Alloy Solidification*", Met. Trans A, Vol 24, (1993), p. 2787.
- [40] M. Gäumann, C. Bezençon, P. Canalis and W. Kurz, "*Single-Crystal Laser Deposition of Superalloys : Processing-Microstructure Maps*", Acta Mater, V49, (2001), p. 1051.
- [41] Ch.-A. Gandin and M. Rappaz, "*A Coupled Finite Element-Cellular Automaton Model for the Prediction of Dendritic Grain Structures in Solidification Processes*", Acta Metall Mater, Vol 42, (1994), p. 2233.
- [42] Ch.-A. Gandin, J.-L. Desbiolles, M. Rappaz and Ph. Thévoz, "*A Three-Dimensional Cellular Automaton-Finite Element Model for the Prediction of Solidification Grain Structures*", 30A, (1999), p. 3153.
- [43] P. Lehmann, R. Moreau, D. Camel, R. Bolcato, "*Modelisation of interdendritic convection in directional solidification by a uniform magnetic field*", Acta Mater, V. 46, n° 11, (1998), p. 4067-4079.
- [44] C. J. Paradies, R. N. Smith and M. E. Glicksman, "*The Influence of Convection during solidification on Fragmentation of the Mushy Zone of a Model Alloy*", Metall. Mater. Trans. A. Vol 28, (1997), p. 875.
- [45] T. Sato, W. Kurz and K. Ikawa, "*Experiments on Dendrite Branch Detachment in the Succinonitrile-Camphor Alloy*", Trans Of the Japan institute of metals, Vol 28, (1987), p. 1012.
- [46] K. A. Jackson, J. D. Hunt, D. R. Uhlmann and T. P. Seward, "*On the Origin of the Equiaxed Zone in Castings*", Transaction of the Metallurgical Society of AIME, Vol 236 (1966), p. 149.
- [47] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "*Dendritic Array Growth in the System NH_4Cl-H_2O and $[CH_2CN]_2-H_2O$: The Detachment of Dendrite Side Arms Induced by Deceleration*", J. Crystal Growth, Vol 234, (2002), p. 740.

-
- [48] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, “*Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy*”, Metall. Mater. Trans. A, Vol 28, (1997), p. 1533.
- [49] A. Hellawell, J. R. Sarazin and R. S. Steube, “*Channel Convection in Partly Solidified Systems*”, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, V345, (1993), p. 507.
- [50] J. Pilling and A. Hellawell, “*Mechanical deformation of dendrites by fluid flow*”, Metal. Mater. Trans. A, Vol 27, (1996), p. 229.
- [51] M.A. Martorano, C. Beckermann, Ch.-A Gandin, “*A solutale interaction mechanism for the Columnar to Equiaxed Transition in alloy solidification*”, Metall. Mater. Trans. A, Vol 25, (2003), p.1657.
- [52] A. Badillo, C. Beckermann, “*Phase-field simulation of the columnar-to-equiaxed transition in alloy solidification*”, Acta Mater. Vol 54, (2006), p. 2015-2026.
- [53] Thèse de Ghislain QUILLET, « *Influence de la convection, naturelle ou forcée, sur l'apparition des mésoségrégations lors de la solidification des alliages métalliques* », Institut National polytechnique de Grenoble, 2003.
- [54] Thèse de Thomas CAMPANELLA, « *Etude de l'effet du brassage électromagnétique sur les microstructures d'alliages cuivreux* », École polytechnique fédérale de Lausanne, 2003.
- [55] Thèse de Guillaume REINHART, « *Dynamique de formation de la microstructure de solidification d'alliages métalliques : caractérisation par imagerie X synchrotron* », Université Paul CEZANNE Aix- Marseille III, 2006.

CHAPITRE II

Magnéto-Hydro-Energétique (MHE) appliquée à la solidification

La magnéto-hydro-énergétique (MHE) étant un domaine assez étendu pour constituer une science en elle-même, seule son application à la solidification des alliages métalliques sera abordée dans ce chapitre. Sans avoir la prétention d'étudier avec précision ce phénomène, cette partie retrace les principes de base utilisés en MHE et certains travaux concernant l'étude des mouvements de convection induits par champ magnétiques dans la métallurgie et leur influence sur la solidification. L'accent sera bien évidemment mis sur l'effet de la convection forcée induite par un brassage électromagnétique sur la structure finale.

II.1. ELECTROMAGNETISME ET CONVECTION : PRINCIPES GENERAUX

II.1.1. Electromagnétisme

Les équations de base régissant le comportement électrique d'une charge conductrice soumise à un champ magnétique sont principalement les équations de Maxwell et la loi d'Ohm généralisée. Les équations de Maxwell citées, entre autre par R. Berton [1] et R. Moreau [2], s'écrivent dans l'approximation de l'électromagnétisme de la façon suivante :

- La première équation exprime la conservation du flux d'induction magnétique $\vec{B}$:

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (\text{II.1})$$

- L'équation d'Ampère où le courant de déplacement est négligé devant le courant de conduction :

$$\text{rot} \vec{B} = \mu \vec{j} \quad (\text{II.2})$$

où μ et $\vec{j}$ représentent respectivement la perméabilité magnétique (dans le vide $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Hm}^{-1}$) et la densité de courant électrique.

- La loi de Faraday qui relie les variations temporelles du champ d'induction magnétique aux variations spatiales du champ électrique :

$$\text{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{II.3})$$

où $\vec{E}$ représente le champ électrique

La loi d'Ohm généralisée régit la densité de courant électrique dans un milieu en mouvement soumis à un champ électromagnétique. Elle est définie par :

$$\vec{j} = \sigma (\vec{E} + \vec{u} \wedge \vec{B}) \quad (\text{II.4})$$

Avec σ , qui représente la conductivité électrique du fluide supposée isotrope, et $\vec{u}$, le champ de vitesse du fluide.

D'après les équations de Maxwell et la loi d'Ohm généralisée, il apparaît que le champ magnétique $\vec{B}$ est une grandeur électromagnétique fondamentale, les autres grandeurs comme $\vec{E}$ et $\vec{j}$ s'en déduisent simplement.

Il est possible donc d'exprimer avec une seule équation appelée "équation de l'induction", l'évolution du champ magnétique en fonction du champ électrique et de la densité de courant.

II.1.2. Equation de l'induction

L'équation de l'induction (II.5) appliquée à un fluide conducteur en mouvement est établie en appliquant un rotationnel de la loi d'Ohm généralisée et en substituant dans cette loi les équations (II.3) et (II.4).

$$\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \text{rot}(\vec{u} \wedge \vec{B}) + \frac{1}{\mu\sigma} \nabla^2 \vec{B} \quad (\text{II.5})$$

D'après cette équation, l'évolution temporelle du champ $\vec{B}$ peut se décomposer en deux phénomènes :

- un phénomène de convection régit par le premier terme :

$$\text{rot}(\vec{u} \wedge \vec{B})$$

- et un phénomène de diffusion régit par le second terme :

$$\frac{1}{\mu\sigma} \nabla^2 \vec{B}$$

II.1.3. Paramètres de similitude

La mise sous forme adimensionnelle de l'équation de l'induction permet de faire apparaître des paramètres de similitudes nécessaires à la description des phénomènes électrodynamiques. Les plus pertinents dans le cas de notre étude sont les suivants :

- 1- **le nombre de Reynolds magnétique R_m** qui représente le rapport du terme régissant la convection sur celui de la diffusion:

$$R_m = \mu\sigma Ua \quad (\text{II.6})$$

où U et a désignent respectivement une vitesse caractéristique et une longueur caractéristique du système physique étudié. A l'échelle du laboratoire et avec les métaux liquides classiques, le nombre de Reynolds magnétique est toujours faible devant l'unité ($R_m \ll 1$). Ainsi, tout effet de convection du champ magnétique peut être négligé. L'équation de l'induction se réduit à une équation classique de diffusion.

Par exemple, on notera que dans le cas des alliages métalliques à l'échelle du laboratoire, R_m ne dépasse pas 10^{-2} , alors qu'à l'échelle de la Terre, R_m peut atteindre 10^4 ou 10^{20} [3].

2- **le paramètre d'écran R_ω** caractérisant l'importance des phénomènes d'induction introduits par la non-stationnarité du champ magnétique. Il est exprimé par la relation suivante :

$$R_\omega = \mu\sigma\omega a^2 \quad (\text{II.7})$$

où « ω » représente la pulsation du champ magnétique. Le paramètre d'écran permet de définir une longueur « δ » caractéristique de la pénétration du champ magnétique dans le fluide appelée l'épaisseur de peau (cf. figure 1).

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}} \quad (\text{II.8})$$

Lorsque :

- $\delta/a \ll 1$, le champ magnétique ne diffuse pas ou partiellement dans la charge électro-conductrice. Dans ce cas, les lignes de champ magnétique sont localisées dans une fine couche d'épaisseur δ schématisée sur la figure (II.1).
- $\delta/a \gg 1$, le champ magnétique diffuse dans toute la charge électro-conductrice. Il peut être considéré comme non modifié par la présence de la charge.

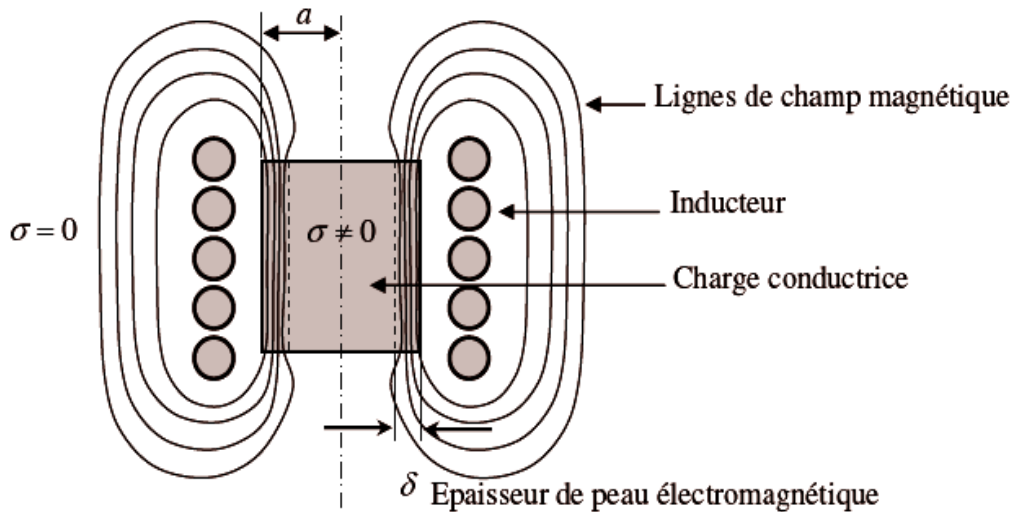


Figure. II.1. Schéma de la distribution des lignes de flux à l'intérieur de la charge conductrice.

3- **la vitesse d'Alfven U_{Af}** , définit la vitesse maximale que peut atteindre un fluide soumis à un champ électromagnétique, elle est définie par :

$$U_{Alf} = \frac{B_0}{\sqrt{\mu\rho}} \quad (\text{II.9})$$

où B_0 , ρ représentent respectivement une valeur caractéristique du champ magnétique et la masse volumique de la charge électro-conductrice.

II.1.3. Force de Lorentz

Lorsqu'on applique un champ électromagnétique alternatif à un fluide électro-conducteur, (comme les alliages métalliques par exemple), des courants électriques induits $\vec{j}$ se développent dans ce milieu, qui d'après la loi d'Ohm généralisée ($R_m \ll R_o$) s'écrivent selon R. Moreau [2]:

$$\vec{j} = \sigma \left(\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} + \nabla \varphi \right) \quad (\text{II.10})$$

où $\vec{A} = A(\cos \omega t + \phi)$ représente le potentiel vecteur magnétique, avec une phase ϕ et le potentiel électrique φ .

Le couplage des courants induits $\vec{j}$ et du champ magnétique $\vec{B}$ crée une force appelée force de Lorentz $\vec{F}$. Elle est exprimée par la relation suivante :

$$\vec{F} = \vec{j} \wedge \vec{B} = -\sigma \left(\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} \wedge (\nabla \wedge \vec{A}) + \nabla \varphi \wedge (\nabla \wedge \vec{A}) \right) \quad (\text{II.11})$$

Cette force volumique produit un brassage à l'intérieur du fluide. Les caractéristiques physiques du brassage sont fortement influencées par la fréquence et l'intensité du champ magnétique utilisé. Il est possible d'écrire cette force sous plusieurs formes. Dans ce manuscrit, nous nous focaliserons uniquement sur la décomposition de cette force en partie moyenne et oscillante.

II.1.3.1. Décomposition en partie moyenne et oscillante :

Puisque le champ magnétique comme les courants induits sont alternatifs, il en résulte que la force de Lorentz présente également un caractère alternatif. D'après Y. Fautrelle [4], cette force de Lorentz peut se décomposer comme étant la somme de deux termes, le premier correspond à une moyenne indépendante du temps et le second à un terme oscillant à (2Φ) près), Y. Fautrelle [4]. L'équation (II.11) peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\vec{F} = \vec{j} \wedge \vec{B} = \langle F \rangle + \tilde{F} \quad (\text{II.12})$$

où F et $\tilde{F}$ représentent respectivement la moyenne et la partie pulsante de la force de Lorentz. En géométrie axisymétrique, ces deux parties peuvent être exprimées en variables dimensionnelles, en fonction du module (A) et de la phase (ϕ) du potentiel vecteur $\vec{A}$. On obtient alors :

$$\langle F \rangle = -\frac{\sigma\omega A^2 \nabla\phi}{2} \quad (\text{II.13})$$

$$\tilde{F} = \frac{\sigma\omega A^2 \nabla\phi}{2} \cos 2(\omega t + \phi) + \frac{\sigma\omega}{2} \sin 2(\omega t + \phi) \left[\nabla \left(\frac{A^2}{2} \right) + \frac{A^2}{r} e_r \right] \quad (\text{II.14})$$

où r , e_r sont respectivement la coordonnée radiale et le vecteur unité radial.

Dans la limite $R_\omega \ll 1$, E. Taberlet et Y. Fautrelle [5] ont montrés que l'ordre de grandeur du rapport entre la partie moyenne et la partie pulsante de la force de Lorentz est de l'ordre de R_ω :

$$\langle F \rangle / \tilde{F} = O(R_\omega) \quad (\text{II.15})$$

II.1.3.2. Décomposition en partie rotationnelle et irrotationnelle

En remplaçant le courant induit $\vec{j}$ de l'équation (II.12) par l'équation d'Ampère (II.2), la force de Lorentz peut s'écrire de la façon suivante :

$$\vec{F} = \frac{1}{\mu} (\vec{\nabla} \wedge \vec{B}) \wedge \vec{B} = -\vec{\nabla} \left(\frac{B^2}{2\mu} \right) + \frac{1}{\mu} (\vec{B} \cdot \vec{\nabla}) \vec{B} \quad (\text{II.16})$$

Cette force peut être décomposée en deux termes :

- a) un terme irrotationnel appelé pression magnétique défini par :

$$\vec{F}_P = -\vec{\nabla} \left(\frac{B^2}{2\mu} \right) \quad (\text{II.17})$$

- b) un terme rotationnel $\vec{F}_r$, qui représente la partie motrice dans le fluide électro-conducteur

$$\vec{F}_r = \frac{1}{\mu} (\vec{B} \cdot \vec{\nabla}) \vec{B} \quad (\text{II.18})$$

Le rapport adimensionnel entre les deux parties s'écrit alors :

$$\frac{F_r}{F_P} = \frac{2\delta}{a} = R_\omega^{-1/2} \quad (\text{II.19})$$

Lorsque la fréquence du champ magnétique augmente, les effets de pression deviennent prépondérants par rapport aux effets moteurs responsables du brassage du fluide.

II.2. PROCEDES DE BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE

Comme il a été montré précédemment le mécanisme de brassage électromagnétique (Electro Magnetic Stirring, EMS) est basé sur la production d'un champ de force de Lorentz dans le matériau, provoquant l'apparition d'une convection forcée dans la partie liquide et pâteuse. En effet, si on considère un échantillon métallique entouré d'une bobine d'induction, la circulation d'un courant, j , dans les spires d'induction, crée un champ magnétique, B (figure. II.2). Ce champ magnétique pénètre dans l'échantillon et génère un courant induit, j_{ind} , dont le sens est globalement opposé à j . L'interaction entre le courant induit et le champ magnétique crée un champ de force, F , qui s'applique uniquement dans la peau magnétique, δ , dans la partie liquide du métal.

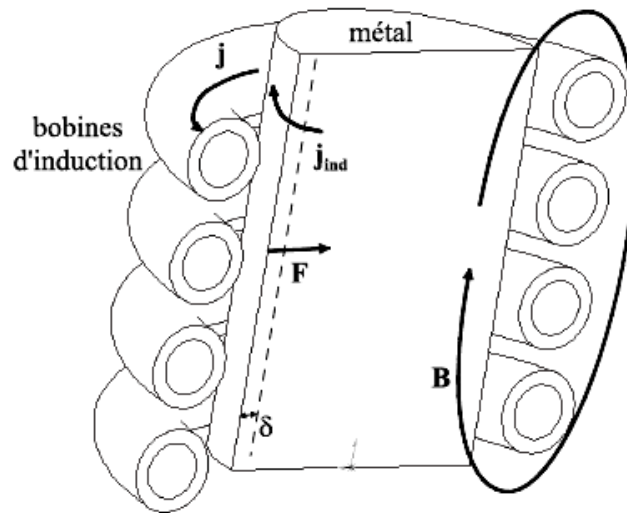


Figure. II.2. Représentation d'une coupe longitudinale d'un système de chauffage par induction illustrant le principe du brassage électromagnétique, [1].

Le mouvement du liquide est alors créé par l'inhomogénéité de la force de Lorentz. Cette inhomogénéité peut être causée par des variations de la direction (cas du champ pulsant, figure. II.3) ou de la phase (cas du champ glissant, figure. II.4).

II.2.1. Champs pulsants (monophasés)

L'inducteur est parcouru par un courant monophasé qui crée donc un champ magnétique alternatif fixe :

$$B(r, t) = B_0(r) \cos(\omega t + \phi)$$

Dans le cas d'un brassage proche de la partie supérieure d'un lingot coulé (en continu ou pas), cette force s'applique surtout dans les coins de la poche liquide (voir fig. II.3), créant ainsi une accélération du liquide dans cette région.

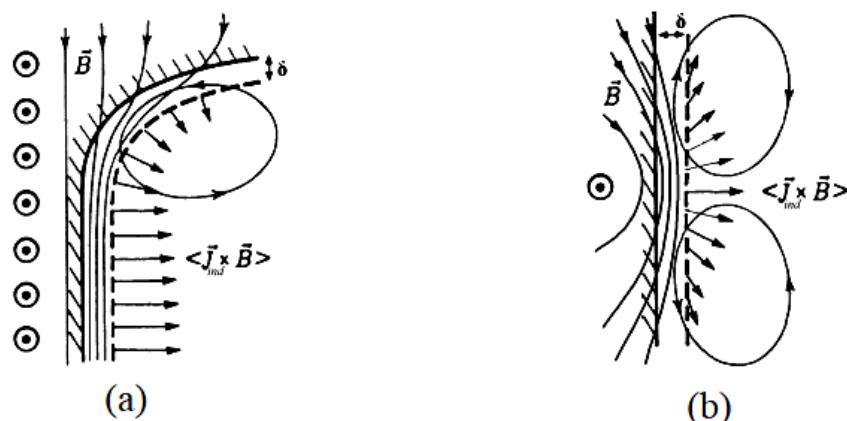


Figure. II.3. Orientation et variation de la force de Lorentz dans le cas d'un champ pulsant proche d'une surface libre de liquide (a) et en volume (b) d'après [1].

Les fours à induction à proprement dits et certaines installations de coulée continue ou de coulée statique, utilisent ce type de champ (figure. II.4). Remarquons que le sens de convection dans le liquide est très dépendant de la fréquence utilisée.

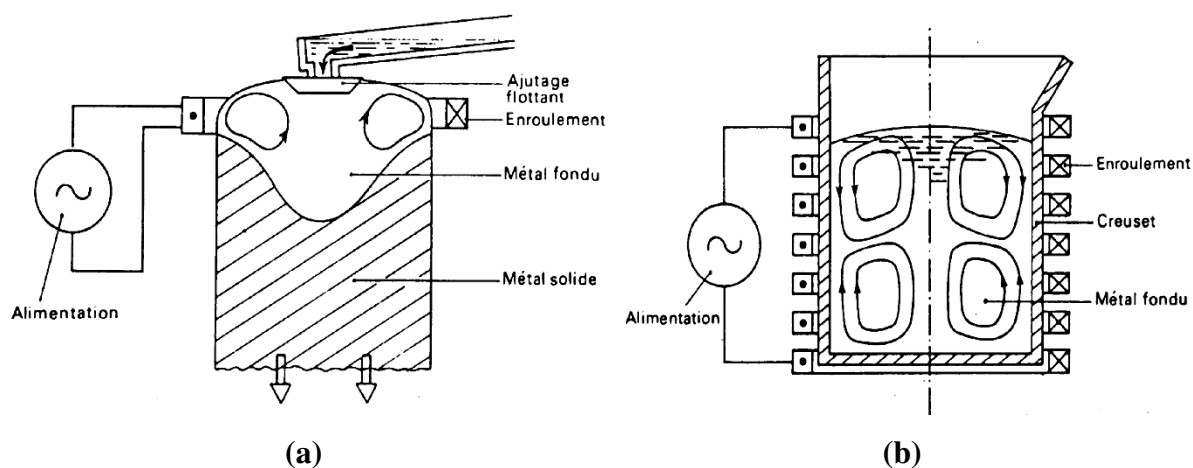


Figure. II.4. Procédés industriels de brassage électromagnétique par induction monophasique utilisé en coulée continue (a) et en creuset (b), [1].

II.2.2. Champs glissants

La théorie du champ magnétique glissant est développée dans plusieurs travaux [46-51]. Nous ne rappellerons dans cette partie que le principe de fonctionnement. Le champ

magnétique est créé par un système à induction polyphasé, c'est-à-dire les spires de l'inducteur entourant l'échantillon sont alimentées par des courants électriques de phases différentes. Prenons le cas d'un inducteur triphasé, comme représenté sur la figure (II.5). La charge cylindrique est entourée de spires.

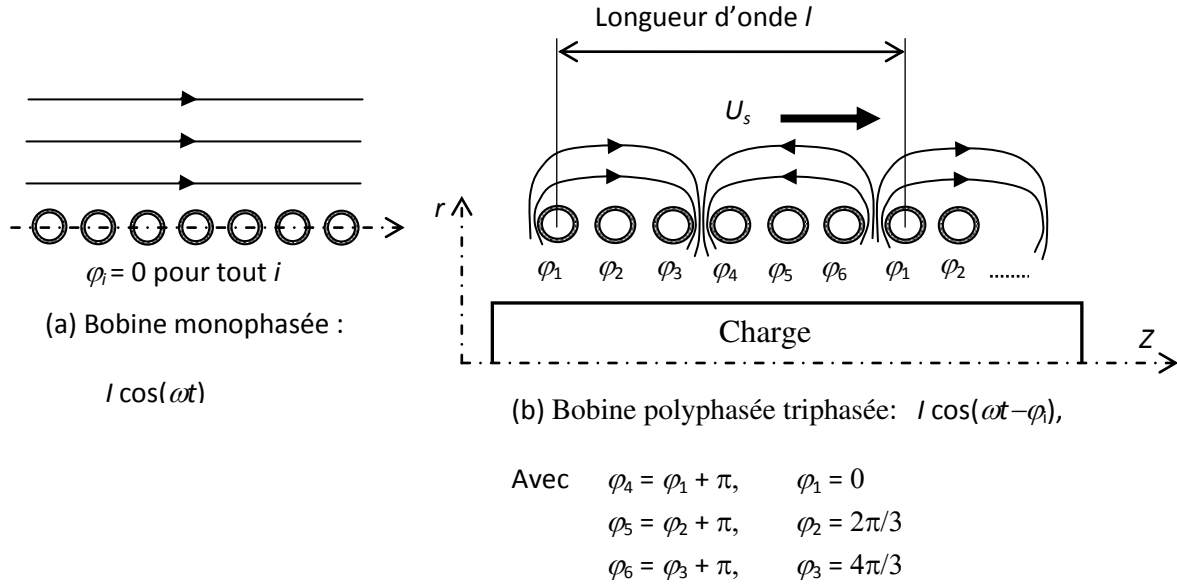


Figure II.5. Forme des lignes de force du champ magnétique ; (a) les courants dans les conducteurs oscillent en phase ; (b) les conducteurs sont alimentés par des courants polyphasés, triphasés dans le cas présent, distribués périodiquement dans la direction z . Dans le cas polyphasé les lignes de champ se déplacent le long de l'axe z .

Au cours du temps, les trois phases, notées φ , varient suivant le système d'équations (II.20). Le champ ainsi créé présente la particularité d'avoir une composante radiale non nulle (si on utilisait un système monophasé, seule la composante axiale serait non nulle). Sachant que la densité de courant est orientée suivant l'axe $\theta = (r \times z)$ et que la force électromagnétique est donnée par l'équation de Laplace (équation II.21), le dispositif génère une composante de force radiale mais aussi une composante parallèle à l'axe de l'inducteur (équation II.22).

$$\begin{cases} I1 = I \cdot \cos(\omega t) \\ I2 = I \cdot \cos(\omega t + \frac{2\pi}{3}) \\ I3 = I \cdot \cos(\omega t + \frac{4\pi}{3}) \end{cases} \quad (II.20)$$

$$B(r; z; t) = (B_r; 0; B_z) \text{ et } j(r; z; t) = (0; j_\theta; 0) \quad (II.21)$$

$$F(r; z; t) = j \wedge B = (F_r; 0; F_z) \quad (II.22)$$

Les courants électriques sont distribués en pratique de manière discrète le long de la direction z comme le montre le schéma de la Figure (II.6). La distribution des courants

reconstitue une onde se propageant dans la direction z . Cette répartition de courant périodique le long de z peut être décomposée en série de Fourier. La fondamentale de cette décomposition est une sinusoïde qui correspondrait à une nappe de courant parfaite telle que :

$$\tilde{I} = \tilde{I}_0 \cos(\omega t - kz), \quad (\text{II.23})$$

Où $\tilde{I}$ désigne la densité linéique des courants inducteurs (A/m).

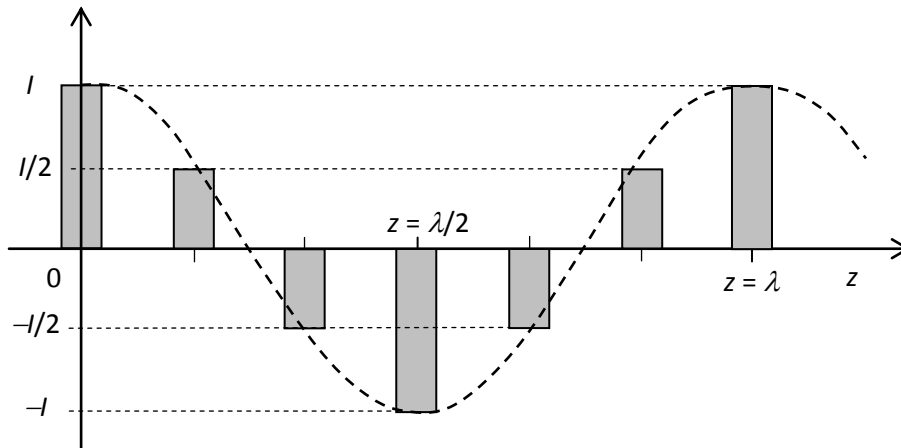


Figure II.6. Schéma de distribution des courants électriques le long de l'axe z dans le cas d'un système polyphasé constitué des trois phases du réseau.

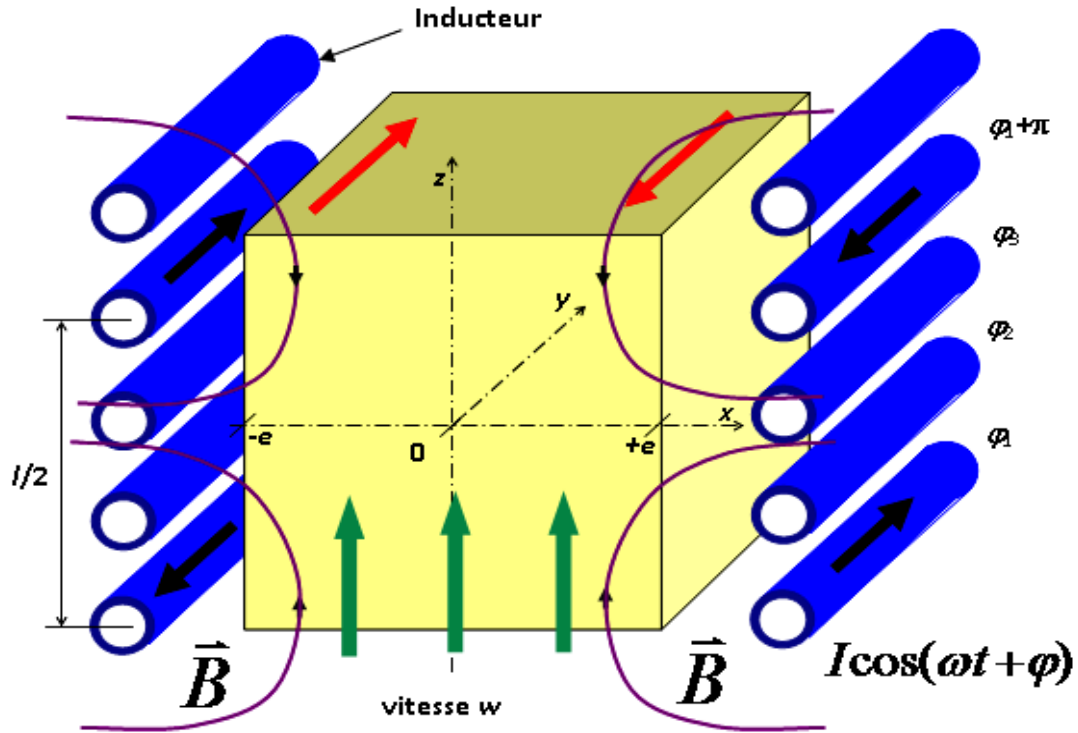


Figure II.7. Schéma de principe d'un système à induction dit à champ glissant

II.2.3. Champs tournants

Les champs magnétiques tournants (RMF pour Rotating Magnetic Field) ont été largement utilisés dans la métallurgie. Le RMF est généré soit par une distribution de courants polyphasés soit par des paires d'aimants permanents tournants. Le métal liquide peut être alors comparé à un rotor d'un moteur asynchrone classique (Figure II.8). Dans le cas d'un inducteur idéal de longueur infinie, la force électromagnétique se réduit à la seule composante tangentielle, R. Moreau [2]. En coordonnées polaires (r ; θ ; z), pour un inducteur à une seule paire de pôle, l'expression générale de la force moyenne est :

$$F_{\theta} = \frac{1}{2} \sigma \omega B^2 R \Phi \left(\frac{r}{R} \right) \quad (\text{II.24})$$

où σ , $\omega = 2\pi f$ et R sont respectivement la conductivité électrique, la pulsation et le rayon de l'échantillon. B est la valeur maximum du champ magnétique. La fonction Φ , dépend de l'épaisseur de la peau, δ_{skin} , qui quantifie la pénétration du champ magnétique dans la charge. Si $\delta_{skin} \gg l$, la distribution du champ magnétique n'est pas modifiée par la présence de l'échantillon métallique. Le principal effet d'un RMF est de générer une force centrifuge. La vitesse azimutale est directement créée par les forces électromagnétiques mais il existe nécessairement un écoulement secondaire (voir illustration figure II.9). En effet, il existe une

zone de basse pression au centre de l'échantillon (vitesse de rotation du fluide plus importante à l'extérieur) responsable d'un effet de pompage centrifuge. Pour de faibles valeurs de champs magnétiques, l'écoulement est généralement laminaire. Le paramètre qui caractérise la transition vers l'apparition des instabilités est le nombre de Taylor magnétique T_{am} (relation II.25). La valeur critique en géométrie infinie est de l'ordre de 10^5 .

$$Ta_m = \frac{\sigma \omega B^2 R^4}{8 \rho \nu^2} \quad (\text{II.25})$$

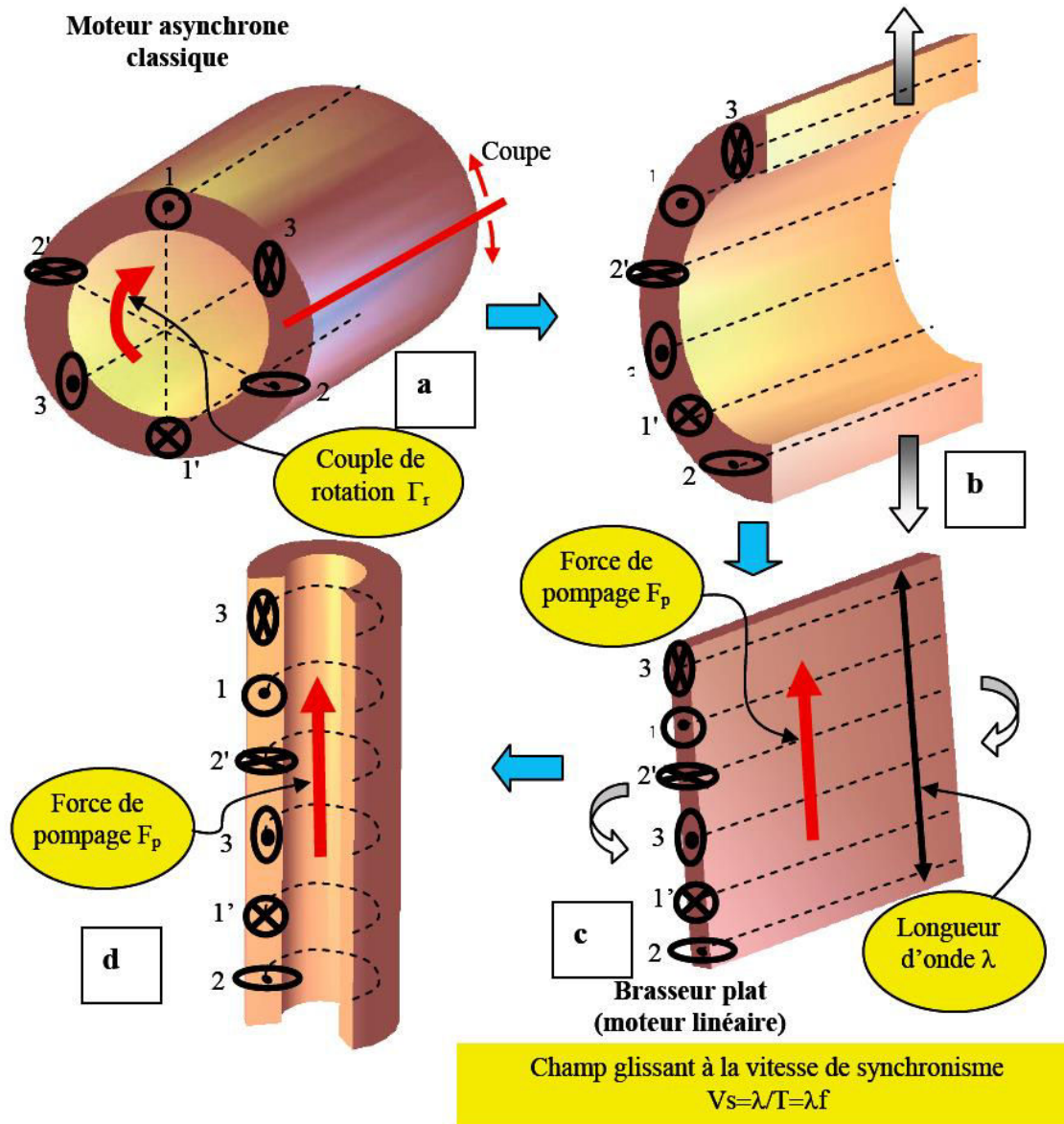


Figure II.8. Schéma explicatif du passage d'un moteur asynchrone vers un brasseur à champ magnétique tournant, puis un brasseur à champ magnétique glissant : a) Moteur asynchrone b) Linéarisation des phases c) Moteur linéaire plat d) Moteur linéaire tubulaire, R.Ernst [61].

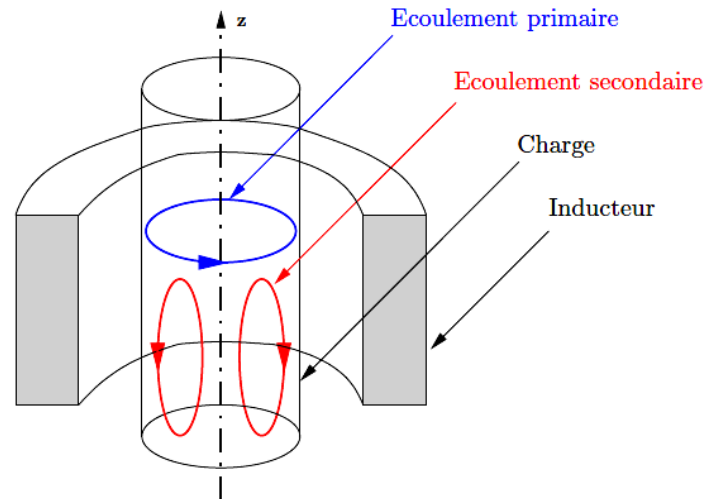


Figure II.9. Schéma de configuration d'écoulement pour un brasseur à champ magnétique tournant.

II.3. RECAPITULATIF DES TRAVAUX MENES SUR L'EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA SOLIDIFICATION DES ALLIAGES METALLIQUES

Dans la littérature, il faut distinguer deux types d'études concernant l'effet de l'EMS sur le processus de solidification. En effet, un nombre conséquent de publications ont été réalisées sur l'étude de la convection des métaux liquides mais nettement moins sur l'influence de cette convection forcée sur la croissance colonnaire. Dans cette partie, un résumé sur les travaux qui se rapportent au premier type d'études sera présenté pour se concentrer plus spécifiquement sur le second. Des travaux expérimentaux et numériques ont été menés dans le but d'étudier les effets du champ magnétique sur la convection induite dans le liquide. On peut citer en exemple les études de brassage électromagnétique en creuset Y. Fautrelle [10], P. Cremer et A. Alemany [11], E. Taberlet & Y. Fautrelle [12], les études sur les convections turbulentes Y. Fautrelle [12], R. Krishnamurti [13], et P. J. Prescott & F. P. Incropera [14], ainsi que certaines approches numériques utilisées dans le but non seulement d'estimer les vitesses du fluide E. D. Tarapore & J. W. Evans [15], mais aussi de caractériser d'autres phénomènes comme les échanges de chaleur S. Cuevas [16]. L'effet de la convection ainsi créée par le champ magnétique sur la croissance colonnaire, n'est pas un phénomène complètement caractérisé. En effet, beaucoup de paramètres sont à prendre en compte : la fréquence et l'intensité du champ magnétique qui crée le brassage, les propriétés physiques du métal liquide et les conditions de croissance elles-mêmes. Il apparaît que l'application de la

MHE dans la croissance d'alliages métalliques comporte deux domaines: la suppression des mouvements de convection naturels et la création de convection forcée vigoureuse (domaine qui comprend l'affinage de grains).

II.3.1. Solidification sous champ magnétique en courant continu

Dans ce cas la force de Lorentz induite par l'action du champ magnétique sur le liquide conducteur est utilisée pour freiner, voir supprimer, la convection naturelle qui peut apparaître lors de la solidification d'alliages. P. Lehmann & R. Moreau [17] appliquent un champ magnétique uniforme dans le but d'éviter la ségrégation d'éléments d'alliages de deux systèmes Cu-Ag et Al-Cu. Un autre exemple d'effet sur la macroségrégation est étudié par Tewari [18] dans le cas d'alliages Pb-Sn, pour lesquels la formation de "freckles" peut être supprimée en limitant la convection naturelle. Les applications concernant la solidification de type Czochralski (croissance de monocristaux) sont également nombreuses, quelques exemples sont donnés dans ces références : S. Kobayashi [19], R. W. Séries [20]. Ces études montrent l'importance de l'orientation du champ par rapport à la direction de croissance pour que l'effet de freinage soit effectif. Notons que dans ces cas l'intensité du champ est de l'ordre du Tesla et que le champ est créé par un courant continu.

Des travaux expérimentaux sur l'effet du champ magnétique à courant continu sur la structure cristalline et les défauts de ségrégation ont été réalisés par Li. Xi [53-56], mettant ainsi en évidence l'effet thermoélectrique magnétique sur la morphologie des structures solidifiées et notamment sur la transition colonnaire-équiaxe (CET). Six alliages ont été solidifiés à des faibles vitesses de croissance ($1-10 \mu m.s^{-1}$) et sous des forts champs magnétiques allant jusqu'à $10T$. Les résultats expérimentaux montrent que l'application d'un fort champ magnétique provoque une fragmentation des dendrites c.-à-d. la CET. Les simulations numériques obtenues par le code FLUX-EXPERT (laboratoire SIMAP/EPM à Grenoble), indiquent que la valeur de la force magnétique thermoélectrique augmente avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique appliqué (voir figure II.10). Un couple est créé sur les cellules/dendrites et les grains équiaxes. Ce couple brise les dendrites et entraîne la rotation de grains équiaxe dans la zone pâteuse qui à son tour détruit les dendrites (figure II.11). Ainsi, avec l'augmentation de l'intensité de champ magnétique et le gradient de température, la fraction volumique de grains équiaxe devant des dendrites colonnaires augmente. Lorsque l'intensité du champ magnétique et le gradient de température atteignent

une valeur critique, la croissance des dendrites colonnaires est bloquée, donc la CET se produit (figure II.12).

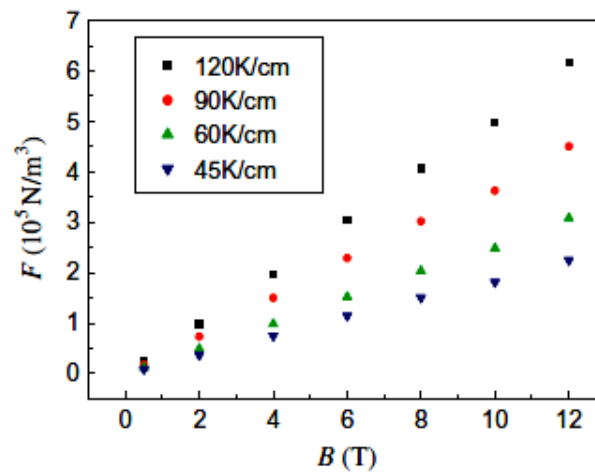


Figure. II.10. Evolution de la force magnétique thermoélectrique imposée aux cellules et grains en fonction de l'intensité du champ magnétique au cours de la solidification dirigée dans un gradient de température donné, X. Li et al [56].

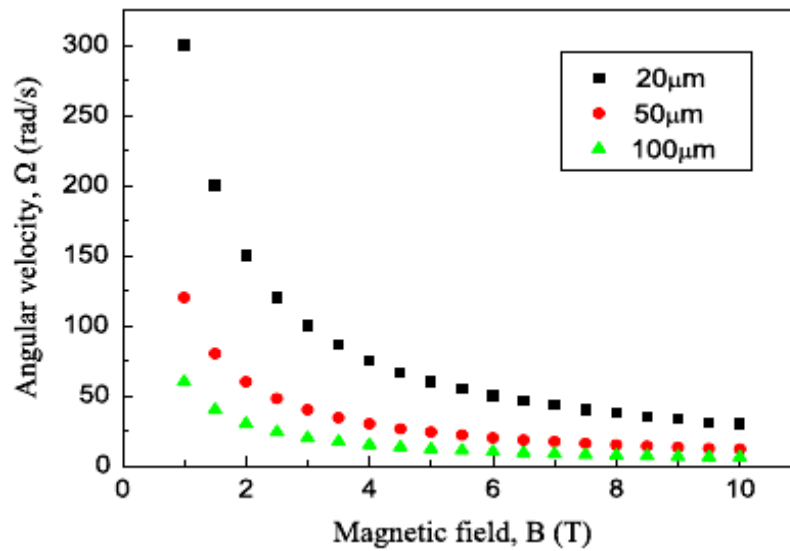


Figure. II.11. Variation de la vitesse angulaire de rotation du grain pour des rayons différents, en fonction de l'intensité du champ magnétique B, X. Li et al [56].

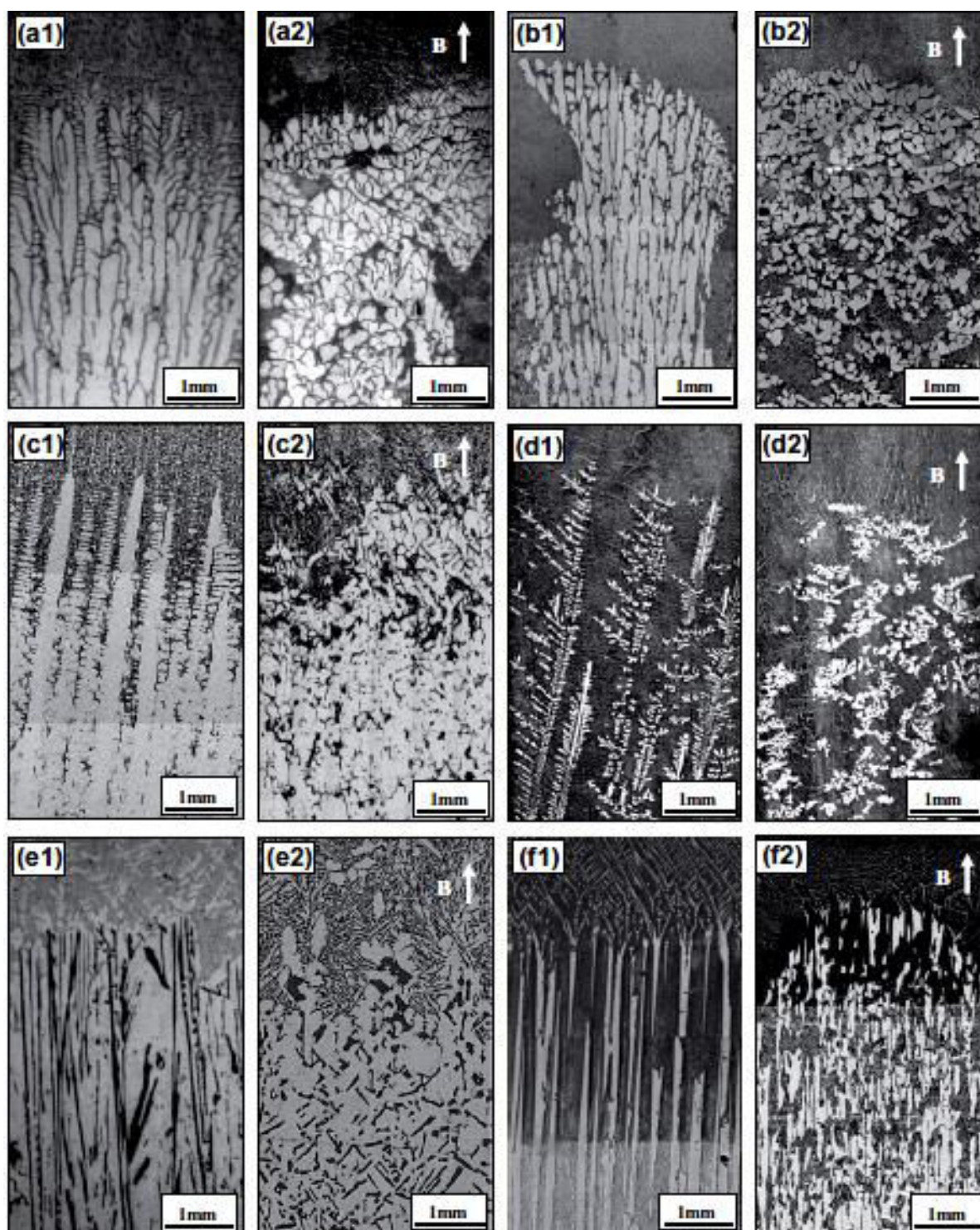


Figure.II.11. Microstructure à l'interface liquide-solide pour une solidification dirigée de six alliages sans et avec un fort champ magnétique: (a) Al dendrites dans l'Alliage Al-4.5wt.%Cu, 10T, $10\mu\text{m.s}^{-1}$, (B) Sn dendrites dans l'alliage Pb-80wt.%Sn, 10T, $1\mu\text{m.s}^{-1}$ (C) γ dendrites dans DZ417G superalliage, 6T, $5\mu\text{m.s}^{-1}$ [58] (d) γ dendrites dans l'alliage Zn-5wt.%Cu, 10T, $10\mu\text{m.s}^{-1}$ (E) Si dendrites dans l'alliage Al-15wt.%Si, 10T, $1\mu\text{m.s}^{-1}$ (f) Al_2Cu dendrites dans l'alliage Al-40wt.%Cu, 10T, $3\mu\text{m.s}^{-1}$, X. Li et al [56].

II.3.2. Solidification sous champ magnétique en courant alternatif

La convection forcée du liquide proche de la zone pâteuse a un effet important sur les propriétés de cette zone, changeant énormément les conditions de solidification. Un certain nombre d'études théoriques sur l'effet de la convection forcée ou naturelle sur la solidification dendritique, ont montré que la distance de diffusion du soluté (δ_c), en avant de la pointe de la dendrite, est fortement perturbée. Les résultats montrent que plus la convection est importante plus δ_c diminue ($\delta_c \approx Re^{-1/2}$) B. Cantor & A. Vogel [21]. En effet, la convection tend à homogénéiser aussi bien la température que la concentration à la pointe de la dendrite S.R. Coriell et al [22], donc à diminuer le rejet de soluté. La vitesse de la pointe de la dendrite s'accroît donc avec la vitesse du fluide [21, 23]. En plus d'influencer sur la direction de croissance des dendrites [24, 25], ces homogénéisations solutales et thermiques autour des dendrites ont l'avantage, dans certains cas, de *limiter* la macroségrégation, d'éviter la formation de porosité et d'affiner la structure.

Lorsque l'on parle de limiter la macroségrégation, ce n'est pas tout à fait vrai car ce phénomène très complexe ne dépend pas que de la convection. En effet, en fonction des conditions expérimentales (gradient de température, vitesse de refroidissement, élément de soluté ...etc.), la macroségrégation peut avoir lieu ou pas.

Au cours de la solidification, le liquide s'enrichit en élément de soluté. De plus, la convection au voisinage de l'interface solide-liquide pénètre dans la zone pâteuse et redistribue le liquide déjà enrichi (le liquide est plus riche pour des fractions de solide élevées). Il est donc évident que plus la vitesse de convection augmente, plus la convection va pénétrer la zone pâteuse, plus la redistribution du liquide enrichi sera importante. Au final, la macroségrégation est accrue [27]. Contrairement au cas précédent, si la solidification est réalisée pour une configuration cylindrique sous une vitesse de tirage moins importante, l'interface solide-liquide reste proche de l'inducteur. On aura alors deux différentes situations : si l'affinage de la structure a lieu, la solidification équiaxe sous convection ne présente plus de régions ségrégées; s'il n'y a pas d'affinage, la ségrégation est localisée au centre de l'échantillon.

Concernant les défauts et plus spécifiquement la porosité, ils sont limités simplement par l'homogénéisation mécanique due au brassage du liquide. Cette diminution, voir élimination, de la porosité a été observée sur plusieurs alliages, aluminiums ([7], brassage mécanique D. Brabazon [28]), aciers et cuivreux G. M. Meseha [8].

Des expériences de solidification dirigée (Bridgman) sous champ magnétique glissant, K. Zaidat [51,52], ont été réalisées sur des échantillons cylindriques d'Al-3.5wt% Ni. L'objectif était de montrer l'influence de la convection forcée sur les ségrégations et la microstructure. L'étude expérimentale s'est essentiellement concentrée sur l'influence de l'intensité du champ magnétique B et du sens de l'écoulement.

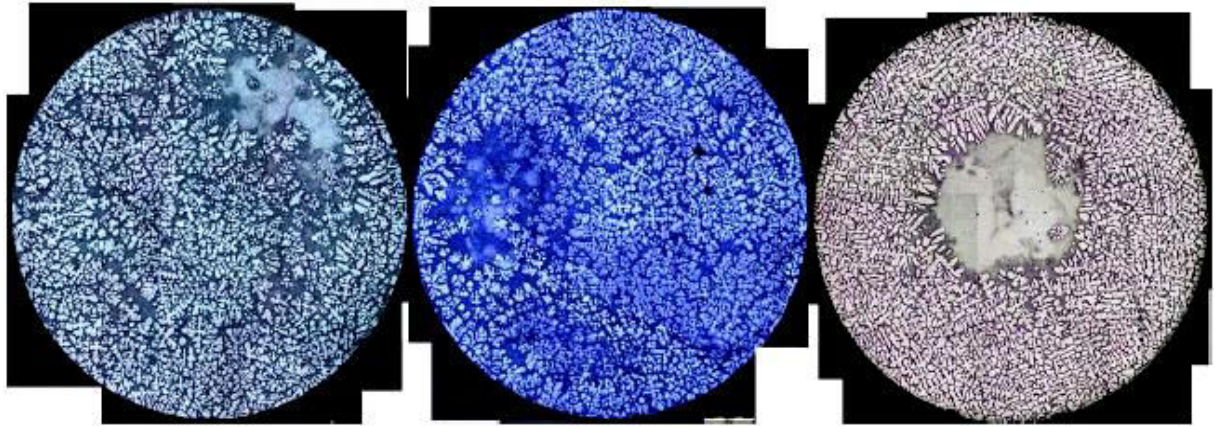


Figure II.12. Coupe radiale après 2 cm de solidification dans le cas d'une force de brassage descendante (F^-). A gauche : $B = 5\text{mT}$ et $G_l = 28\text{ K.cm}^{-1}$. Au milieu $B = 10\text{mT}$ et $G_l = 24\text{ K.cm}^{-1}$. A droite $B = 30\text{mT}$ et $G_l = 22\text{ K.cm}^{-1}$. Pour le cas à 30mT, on distingue un canal central à la concentration eutectique K. ZAIDAT et al [51].

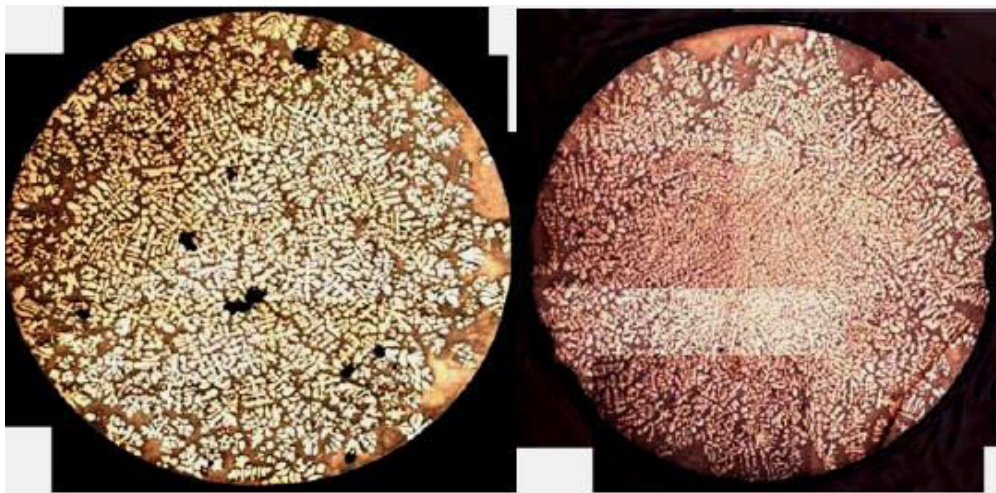


Figure II.13. Coupe radiale après 2 cm de solidification dans le cas d'une force de brassage ascendante (F^+). A gauche : $B = 10\text{ mT}$ et $G_l = 28\text{ K.cm}^{-1}$. A droite $B = 30\text{ mT}$ et $G_l = 24\text{ K.cm}^{-1}$. Dans les deux cas, l'extérieur du lingot est constitué d'une couche eutectique K. Zaidat et al [51].

Dans les deux configurations, les analyses révèlent que la concentration du bord extérieur est à l'eutectique. Dans l'ensemble des expériences, le gradient de température mesuré dans le liquide diminue avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique. On peut résumer les résultats comme suit :

- 1- la convection forcée crée des zones eutectiques dont la localisation change avec le sens du rapport de la convection naturelle sur la convection forcée;
- 2- pour un sens d'écoulement donné, la taille et la stabilité de la zone eutectique sont fonction de l'intensité du champ;
- 3- le gradient de température dans la zone liquide est affecté par l'intensité du champ magnétique.

Notons que l'affinage de la structure est un phénomène complexe que la plupart des études attribuent à la fragmentation des bras de dendrites qui, créant de nouveaux sites de germination, entraîne une croissance équiaxe. Ce phénomène est économiquement crucial pour l'industrie, car il est un moyen d'homogénéiser un produit sans utiliser de substances inoculantes. Cet affinage permet donc d'augmenter les propriétés mécaniques mais aussi de réduire l'anisotropie, la microségrégation et la tendance à la fissuration à chaud.

Dans ce contexte il est très important de citer les résultats prometteurs obtenus dans les travaux de P. Desnain et al [57], dans un lingot parallélépipédique avec un champ magnétique glissant (TMF), et plus tard B. Willers et al [58], sur l'effet du brassage magnétique par un champ tournant (RMF) sur la solidification unidirectionnelle de l'alliage Al-7wt.%Si. Différentes configurations de brassage ont été appliquées : RMF (brassage par application d'un champ magnétique tournant continu) et RMF-PSAD (champ magnétique tournant sous forme de séquences impulsives à directions alternées). L'influence de la convection forcée générée par les différents modes de brassage sur la structure solidifiée a été clairement démontrée par les résultats numériques et expérimentaux (figure II.14-15). L'utilisation de la méthode RMF-PSAD délivre une microstructure équiaxe, sans macroségrégation. Cette nouvelle méthode de brassage par les champs magnétiques tournants impulsifs alternés représente un outil puissant pour contrôler les propriétés physiques des structures cristallines finales. Cependant, le succès de cette technique de RMF-PSAD nécessite un réglage précis du paramètre du champ magnétique par rapport aux propriétés des matériaux, la géométrie des lingots et les conditions de refroidissement.

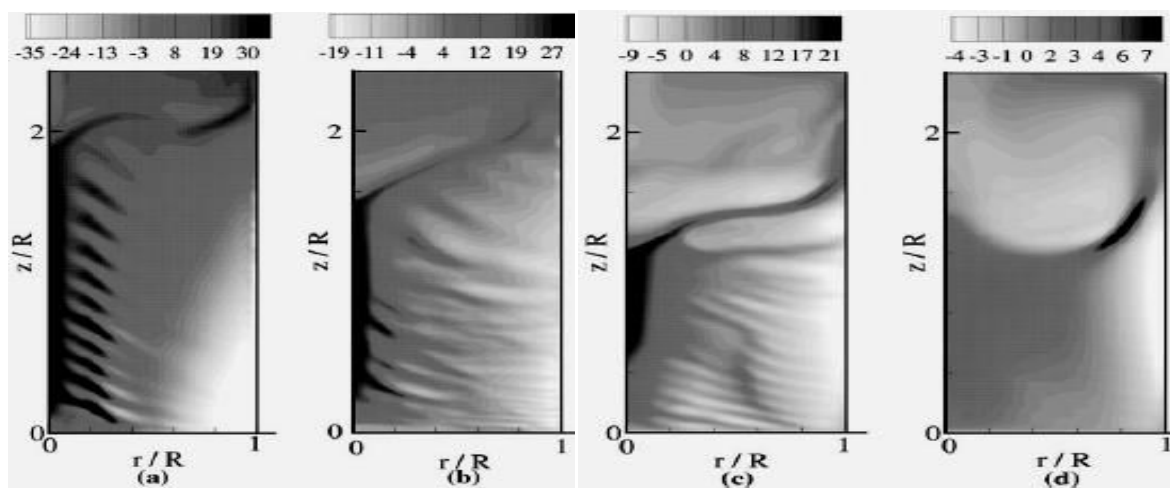


Figure. II.14. Simulation numérique de la solidification de l'alliage Al-7wt.%Si, sous l'influence de RMF pour $B_0=4\text{mT}$ et différents f_p . Tracés de contour de la concentration relative $\frac{c_{\text{Si}}-c_0}{c_0} \cdot 100$ dans l'échantillon solidifié: (a) RMF continu, (b) $f_p = 0,17\text{Hz}$, (c) $f_p = 0,33\text{Hz}$ et (d) $f_p = 0,75\text{Hz}$, B. Willers et al [57].

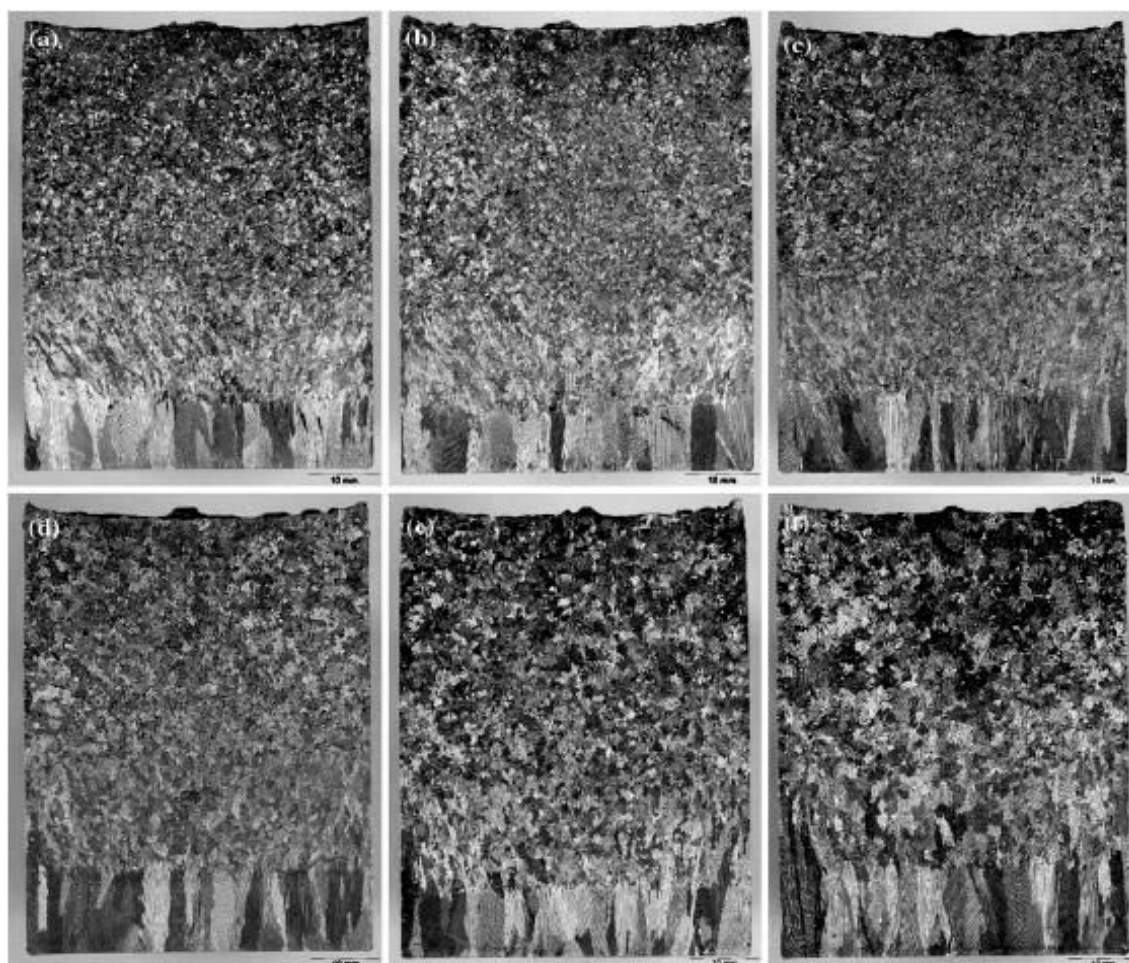


Figure. II.15. Des sections longitudinales montrant les macrostructure des échantillons solidifiés: (a) RMF continu, (b) $f_p = 0,1\text{ Hz}$, (c) $f_p = 0,2\text{ Hz}$, (d) $f_p = 0,3\text{ Hz}$, (e) $f_p = 0,35\text{ Hz}$, et (f) $f_p = 0,45\text{ Hz}$, B. Willers et al [57].

Parmi les travaux récents traitant l'application du champ magnétique à courant alternatif ayant un effet significatif sur la solidification des alliages métalliques, il faut citer le travail de D. Rübiger et al [59]. Dans cette étude, ils utilisent une technique de couplage entre un champ magnétique tournant et un champ magnétique glissant (RMF-TMF). Ce travail examine l'impact de différents champs magnétiques à courant alternatif sur la solidification directionnelle de l'alliage Sn-15wt.%Pb. Une variété de brassage électromagnétique a été obtenue par des combinaisons entre des champs magnétiques tournants et glissants (figure II.16). Les résultats montrent que le brassage par un champ magnétique glissant (TMF) est plus efficace, mais montre une forte tendance à former de vastes zones de ségrégation. L'interférence avec le RMF diminue les phénomènes de ségrégation, mais ne peut pas l'éviter complètement.

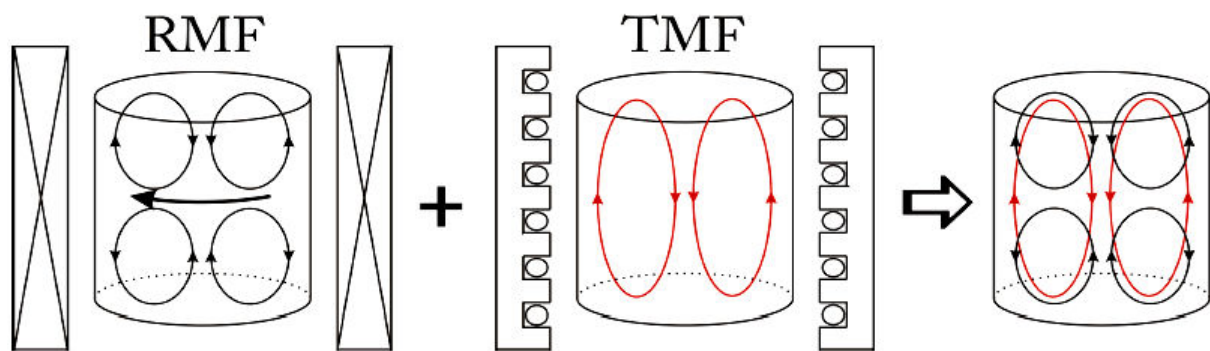


Figure. II.16. Schéma illustratif montrant les configurations d'écoulement provenant de différents types de champs magnétiques, D. Rübiger et al [58].

En principe, dans ce travail les résultats expérimentaux démontrent l'efficacité d'utiliser un couplage entre un champ magnétique tournant RMF sous forme des impulsions successives et un champ magnétique glissant TMF dirigée vers le haut sur la modification de la structure, notamment la CET, le raffinement de la structure des grains et la prévention des ségrégations sous forme de Freckles (voir figure II.17). Cependant, le problème du contrôle de la dynamique du bain liquide lors de la solidification semble être très complexe et nécessite une étude plus approfondie.

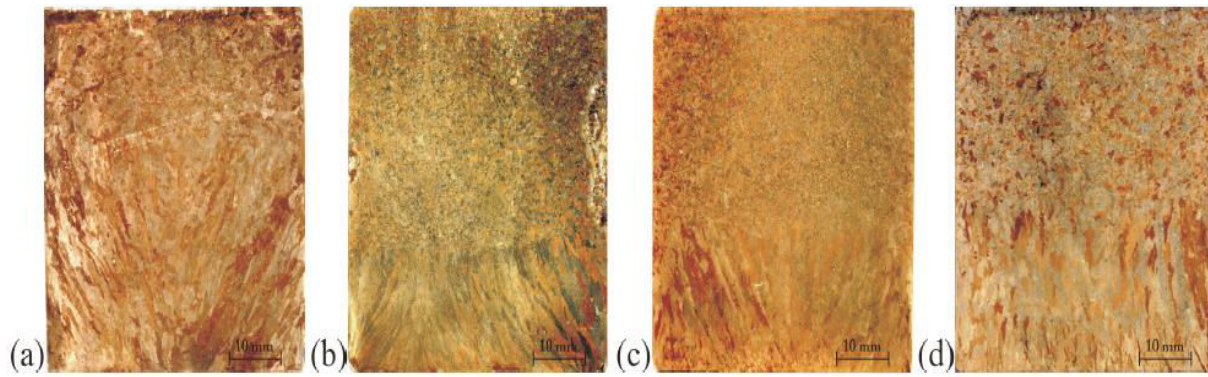


Figure. II.17. Macrostructures des sections longitudinales des échantillons solidifiés sous l'influence de différentes configurations de champ magnétique: (a) RMF continu à 3,5mT (b) TMF upward à 48,5mT, (c) RMF à 3,5mT et TMF downward à 34mT, (d) RMF à 3,5mT et TMF upward à 34mT. D. Rübiger et al [58].

II.4. LE PROCESSUS D’AFFINAGE DES GRAINS PAR FRAGMENTATION DES BRAS DE DENDRITES

En l’absence de particules inoculantes dans le liquide, la formation de grains équiaxes est généralement attribuée à deux types de phénomènes : les conditions de germination en réaction homogène ou hétérogène à partir des impuretés notamment aux parois (gradient de température à l’interface, vitesse de refroidissement, concentration en éléments d’alliage) ou bien par fragmentation des bras de dendrites. Ce dernier permet d’expliquer pourquoi il est possible d’obtenir une croissance équiaxe dans un cas où tous les modèles prédisent une croissance colonnaire. Phénomène très complexe, il n’a été que peu abordé dans la littérature. Seuls quelques auteurs ont décrit les mécanismes de fragmentation de dendrites pendant la solidification.

A la lumière de la littérature effectuée dans ce chapitre on peut définir, d’une façon très générale, cinq étapes fondamentales de formation de grains équiaxes par fragmentation des bras de dendrites :

II.4.1. La fragmentation des bras de dendrites par refusion locale

La fragmentation n’est pas un phénomène bien connu, seules quelques déductions issues d’observations sur la solidification d’alliages organiques ont été faites C. J. Paradies [37] et T. Stato [38]. Comme Jackson [39], Sato et Paradies attribuent cette fragmentation à la conséquence d’une refusion locale des sections les plus fines des bras

de dendrites (effet de "cou", figure. II.17). De son côté, Liu [40] est arrivé à la conclusion que la fragmentation est principalement générée par la dissolution des bras de dendrites, elle-même induite par la décélération de la vitesse de refroidissement. En effet, il minimise le phénomène de refusion thermique des bras en pensant qu'il est possible mais qu'il n'a pas été observé dans leur cas. Il préfère parler de dissolution causée par une variation solutale dans la zone pâteuse. Rejoignant ce concept, la fragmentation a également été étudiée lors de la formation de "Freckles" au cours de la solidification. Gu et Beckermann [40] comme Hellawell [41], attribuent la formation des fragments à la dissolution solutale des dendrites, dans ce cas précis de création de canaux ségrégés. Remarquons que concernant l'effet du mouvement du liquide sur le réseau dendritique, Pilling [42], a définitivement conclu que les déformations mécaniques induites par convection du liquide interdendritique ne pouvaient pas être la cause du détachement des bras de dendrites.

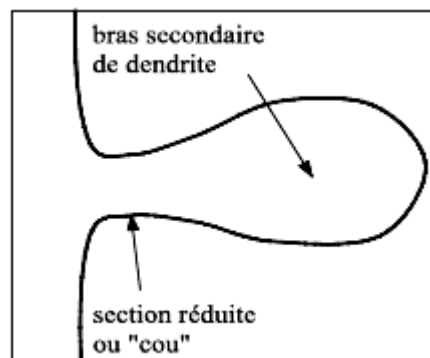


Figure. II.17. Illustration d'un bras secondaire de dendrite. Le phénomène de refusion est localisé sur la partie la plus fine de ce bras secondaire appelé « cou »

Cependant X. Li et al [56], ont montré que dans des configurations de solidification dirigée sous l'effet d'un fort champ magnétique continu, la force magnétique thermoélectrique est suffisante pour provoquer l'arrachement des pointes des cellules/dendrites et même faire tourner les grains équiaxes qui provoquent à leur tour la fragmentation des bras dendritiques, cet arrachement est la conséquence d'un couple de forces généré à l'interface solide-liquide dans la zone pâteuse (figure II.18). Cette force volumique peut atteindre 10^5 N/m^3 pour un gradient de température de 60 K.cm^{-1} et un champ magnétique de 10 T , ce qui renforce la possibilité d'avoir un mode de fragmentation mécanique dominant.

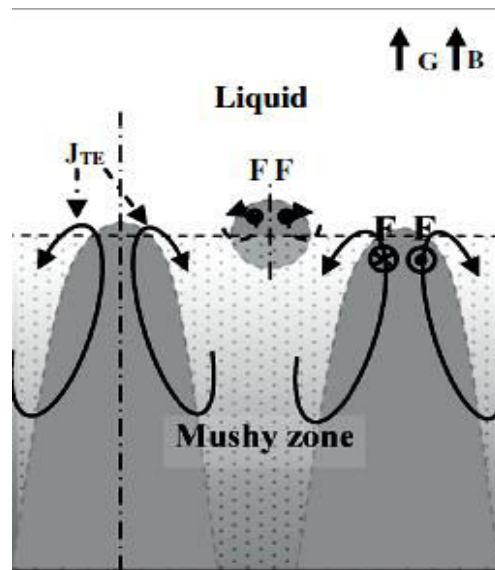


Figure II.18. Schéma explicatif de la force magnétique thermoélectrique imposée à la pointe de cellules ou les dendrites et les grains équiaxes. Li. Xi [56].

II.4.2. Transport des fragments de la zone pâteuse vers le liquide

Le transport des fragments de la zone pâteuse vers le liquide en avant du front de croissance colonnaire est un phénomène qui requiert soit un effet de décantation soit une convection naturelle ou forcée dans la région concernée. Cette étape n'a pratiquement pas été étudiée. Liu [44] suppose que la convection interdendritique est responsable du transport des fragments de la zone pâteuse vers le liquide. Dans le cas du brassage électromagnétique, la convection dans les régions interdendritiques est induite par la convection du liquide, produite en volume. Dans le cas de la formation des "Freckels", le transport des fragments situés au fond du canal est assuré par une convection thermo-solutale, ce transport a d'ailleurs été modélisé par J. P. Gu [40].

II.4.3. La survie des fragments

Les fragments sont amenés vers des régions plus chaudes, leur survie va donc dépendre du parcours qu'ils vont effectuer dans le liquide chaud (soit ils s'éloignent, soit ils se rapprochent du front de solidification), du temps qu'ils vont mettre pour fondre totalement et de l'étendue de la zone en surfusion en avant de l'interface. Seul Q. Han [44] a estimé des vitesses de refusion des fragments dans un cas simple de particules sphériques dans un liquide, donc sans convection. De son côté, J. P. Gu [40] a pris en compte l'influence du

parcours du fragment pour étudier sa survie dans une modélisation numérique, mais seulement dans le cas d'une refusion solutale et d'une convection naturelle.

II.4.4. La croissance et sédimentation

Dans le cas de la survie d'un fragment dendritique, sa croissance peut avoir lieu. Par piégeage (le front de solidification peut piéger un fragment en avançant) ou par sédimentation, la structure équiaxe se met en place. La sédimentation vers le liquide peut engendrer une refusion totale ou partielle des grains.

II.4.5. La formation de la structure équiaxe

La formation des grains équiaxes en avant du front de solidification bloque la croissance des dendrites colonnaires. La structure devient alors équiaxe. Etant un des rares auteurs à étudier ce phénomène lorsqu'il est lié à la fragmentation, Jang [62] a estimé des vitesses de sédimentations dans le cas d'un alliage organique, en utilisant un écoulement de type Stokes, ainsi qu'un critère analytique de blocage de croissance d'un front de solidification colonnaire. Cependant pour des raisons de simplification, nous considérons que du moment que les fragments ont survécu, la structure finale sera équiaxe.

II.4.6. Affinage des grains équiaxes

Les phénomènes responsables de l'affinage des grains sont nombreux et complexes. Il est donc difficile de les cerner. Lors de la recherche bibliographique effectuée dans ce travail nous avons constaté qu'il y a une tendance à considérer que le phénomène prépondérant est la fragmentation des bras de dendrites par refusion locale. L'affinage des grains ne dépendant pas uniquement de la fragmentation, la survie et le parcours des fragments doivent être considérés. S'inspirant des travaux de Beckermann [60], le parcours des fragments et leur croissance peuvent être caractérisés en tenant compte de l'entraînement de ces particules (induit par les mouvements de convection) et de leur croissance sous convection forcée induite par l'effet du champ magnétique (intensité, fréquence, configuration de brassage). Par ailleurs, il est important de prendre en considération l'augmentation de la viscosité du liquide interdendritique due à la présence même de ces fragments, ce qui diminuera certainement la turbulence de l'écoulement mais qui favorisera l'entraînement des fragments.

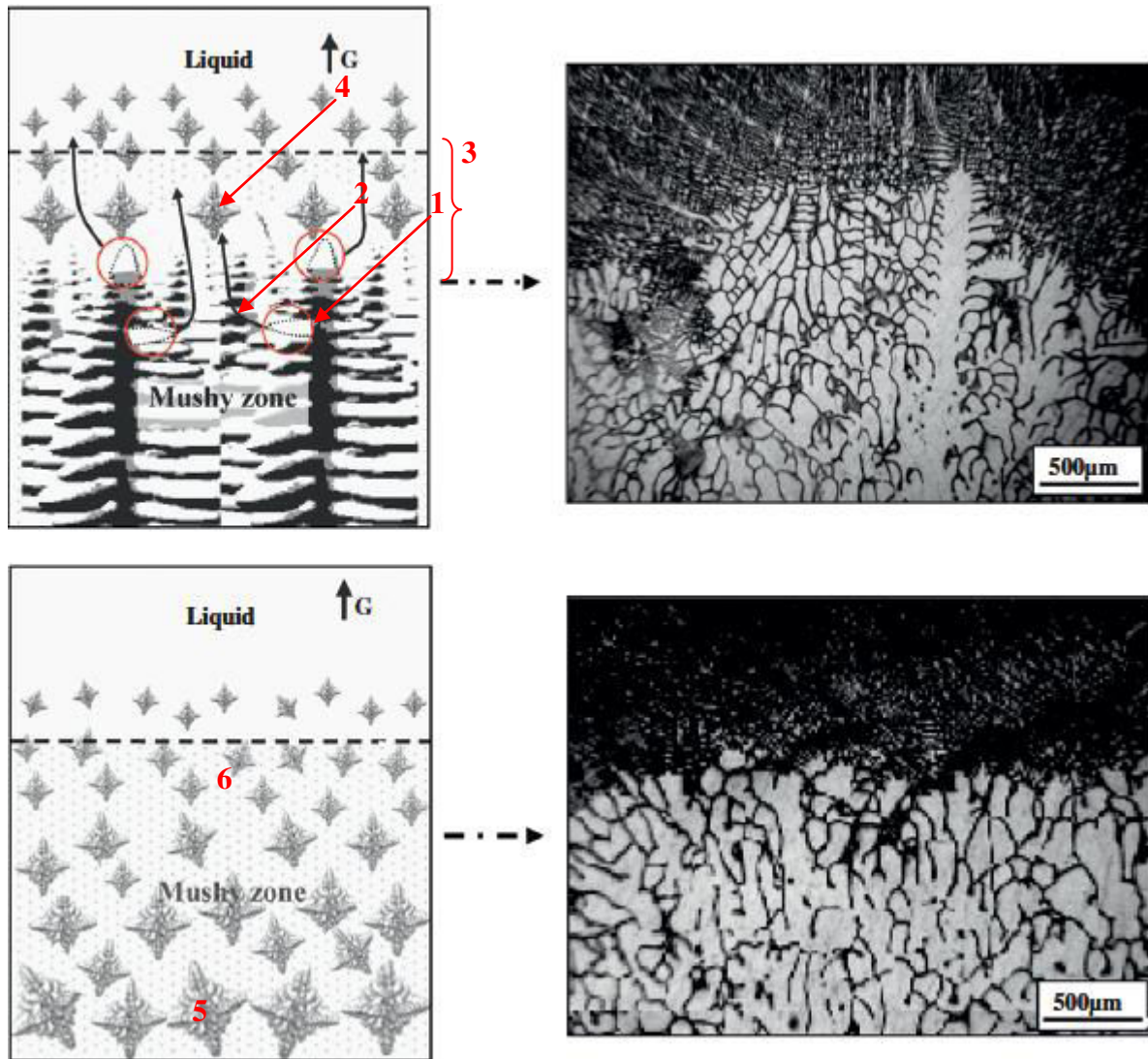


Figure. II.19. Etapes de création de grains équiaxe par fragmentation des bras de dendrite. (1) fragmentation des bras de dendrite, (2) transport des fragments, (3) survie des fragments, (4) croissance et sédimentation (5) formation de la structure équiaxe, (6) affinage des grains. X. Li [56].

II.5. FACTEURS D'INFLUENCE

Les conditions de fragmentation restent assez floues. Cependant l'ensemble des études qui se rapportent à la fragmentation des bras de dendrites s'accorde à dire qu'il existe des paramètres prépondérants :

II.5.1. la vitesse de convection

L'intensité de la convection (donc la puissance de l'induction électromagnétique) diminue les gradients de température et chimique proche de l'interface. Il semble raisonnable de penser que cette diminution des gradients est responsable de la refusion des bras de dendrites. Dans ces conditions, plus la convection est vigoureuse plus l'affinage sera effectif, J. J. Moore [6], Ch. Vivès [29], P. Desnain [30], et W. D. Griffiths [32].

II.5.2. le mode d'écoulement

La présence de convection turbulente ou laminaire semble influencer l'affinage. Kishida [44] a montré, par des mesures de température lors d'une convection turbulente, que les instabilités de température induites par ce mode de convection peuvent favoriser une refonte des bras de dendrites, par déstabilisations du front de solidification.

II.5.3. la concentration en élément d'alliage

Une augmentation de la concentration initiale en élément d'alliage augmente l'étendue de la zone en surfusion en avant du front de solidification. Ce phénomène augmente donc la probabilité de la survie des fragments mais diminue aussi le rayon des dendrites (donc du cou de chaque bras secondaire de dendrite), facilitant la refusion des bras secondaires, T. Sato [37].

II.5.4. la décélération de la vitesse de refroidissement

La décélération de la vitesse de croissance induit une augmentation ponctuelle de la température et de la concentration dans la zone interdendritique. Ce phénomène induit alors la refusion thermique et solutale des bras de dendrite.

II.6. CONCLUSION PARTIELLE

Ce chapitre a permis de présenter les équations de base de la Magnéto-Hydro-Energétique (MHE) qui seront employées par la suite. Les différents nombres adimensionnels utiles à la description et l'analyse des cas traités dans le cadre de ce travail ont été explicités. Seulement l'aspect énergétique de ces équations sous forme d'une énergie de brassage électromagnétique a été abordé, afin de l'adapter aux applications de la solidification des alliages métalliques. Une étude sur les différentes configurations utilisées pour le brassage électromagnétique et leurs influences sur les structures de solidification à été effectuée. Plusieurs techniques de brassage ont montré leur efficacité pour améliorer la structure finale voir le perfectionnement des propriétés physiques des matériaux, notamment la technique du RMF-PSAD (*rotating magnetic field with pulse sequence of alternating direction*) sur la diminution des canaux ségrégés, et la technique de couplage RMF-TMF (*rotating magnetic field-travelling magnetic field*) sur l'affinage de la structure, sans oublier l'effet des forces thermoélectriques induites par des forts champs magnétiques à courant continu sur la favorisation du processus de transition colonnaires-equiaxes (CET).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE II

- [1] R. Berton, "*Magnéto-hydrodynamique*", Masson, 1991.
- [2] R. Moreau, "*The fundamental of MHD Related to crystal Growth*", Progress in crystal growth and characterization of materials, (1999), P.161.
- [3] R. Moreau, "*Magnetohydrodynamics*", Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, 1990.
- [4] Y. Fautrelle, "*Fluid flows induced by alternating magnetic fields, Liquid Metal Magnetohydrodynamics*", Kluwer Academic Publisher, (1989), p. 223-232.
- [5] E. Taberlet, Y. Fautrelle : "*Turbulent stirring in an experimental induction furnace*", journal of Fluid Mech., Vol. 159, 1985, pp. 409-431.
- [6] J. J. Moore, "*Continuous Casting*", V.3. Warrendale, (1984).
- [7] J. L. Meyer, "*Electromagnetic Processes in Aluminium Casthouses and Foundries : An Overview*", in Magnetohydrodynamics in process metallurgy , J. Szekely, The Minerals, Metals & Materials Society, (1991), p. 127.
- [8] G. M. Meseha, "*Electromagnetic Stirring Application in Copper Bar Manufacturing*", , (1997), p. 60.
- [9] P. A. Davidson, "*Magnetohydrodynamics in Materials Processing*", Annual Rev Fluid Mech. V 31, (1999), p. 273.
- [10] Y. Fautrelle, "*Analytical and Numerical Aspects of the Electromagnetic Stirring Induced by Alternating Magnetic Fields*", J. Fluid. Mech., V 102, (1981), p. 405.
- [11] P. Cremer and A. Alemany, "*Aspects Expérimentaux du Brassage Electromagnétique en Creuser*", J. Mécanique appliquée, V 5, (1981), p. 37.
- [12] E. Taberlet and Y. Fautrelle, "*Turbulent Stirring in an Experimental Induction Furnace*", J. fluid Mech., V159, (1985), p. 409.
- [13] R. Krishnamurti, "*On the Transition to Turbulent Convection. Part 2. The Transition to Time-Dependent Flow*", J. fluid Mech., V 42, (1970), p. 309.
- [14] P. J. Prescott and F. P. Incropera, "*The Effect of Turbulence on Solidification of a Binary Metal Alloy with Electromagnetic Stirring*", J. heat transfer, V 117, (1995), p.716.
- [15] E. D. Tarapore and J. W. Evans, "*Fluid Velocities in Induction Melting Furnaces: Part I. Theory and Laboratory Experiments*", Met. Trans. B. V7, (1976), p. 343.
- [16] S. Cuevas, B. F. Pi cologlou, J. S. Walker, G. Talmage and T. Q. Hua, "*Heat Transfer in Laminar and Turbulent Liquid-Metal MHD Flows in Square Ducts with Thin Conducting or Insulating Walls*", Int. J. Eng. Sci., V 35, (1997), p. 505.
- [17] P. Lehmann, R. Moreau, D. Camel and R. Bolcato, "*Modification of Interdendritic Convection in Directional Solidification by a Uniform Magnetic Field*", Acta Mater., V 40, (1998), p. 4067.

- [18] S. N. Tewari, R. Shah and H. Song, "*Effect of magnetic field on the microstructure and macrosegregation in directionally solidified Pb-Sn alloys*", Metall Mater. Trans. A, V25, (1994), p. 1535.
- [19] S. Kobayashi, "*Effects of an External Magnetic Field on Solute Distribution in Czochralski Grown Crystals - A Theoretical Analysis*", J. Crystal Growth, V75, (1986), p. 301.
- [20] R. W. Series, "*Czochralski Growth of Silicon under an Axial Magnetic Field*", J. Crystal Growth, V97, (1989), p. 85.
- [21] B. Cantor and A. Vogel, "*Dendritic solidification and fluid flow*", J. Crystal Growth, V 41, (1977), p. 109.
- [22] S. R. Coriell, G.B. McFadden and R. F. Boisset, "*Effect of forced Couette Flow on Coupled Convective and Morphological Instabilities during Unidirectional Solidification*", J. Crystal Growth, V 69, (1984), p. 15.
- [23] R. Ananth and W. N. Gill, "*Dendritic Growth in Microgravity and Forced Convection*", J. Crystal Growth, V 179, (1997), p. 263.
- [24] Ch. Charbon, A. Jacot and M. Rappaz, "*3D Stochastic Modelling of Equiaxed Solidification in the Presence of Grain Movement*", Acta Metall. Mater., V42, (1994), p. 3953.
- [25] A. Buchholz and S. Engler, "*The Influence of Forced Convection on Solidification Interfaces*", Comp. Mat. Science, V 7, (1996), p. 221.
- [26] M. R. Bridge and G. D. Rogers, "*Structural Effects and Band Segregate Formation during the Electromagnetic Stirring of Strand-Cast Steel*", Met Trans. B, V 15, (1984), p. 581.
- [27] W. D. Griffiths and D. G. McCartney, "*The Effect of Electromagnetic Stirring on Macrostructure and Macrosegregation in the Aluminium Alloy 7150*", mater. Sci. Eng A. V 222, (1997), p. 140.
- [28] D. Brabazon, D. J. Browne and A. J. Carr, "*Mechanical Stir Casting of Aluminium alloys form the Mushy State: Process, Microstructure and Mechanical Properties*", Mater. Sci. Eng, A V326, (2002), p. 370.
- [29] Ch. Vivès, "*Electromagnetic refining of aluminium alloys by the CREM process: Part II. Specific practical problems and their solutions*", Met Trans. B, V20, (1989), p. 631.
- [30] P. Desnain, F. Durand, Y. Fautrelle, D. Bloch, J. L. Meyer and J. P. Riquet, "*Effects of the Electromagnetic Stirring on the Grain Size of Industrial Aluminium Alloys : Experiments and Theoretical Predictions*", in Light Metals 1988, L. G. Boxall, The Metallurgical Society, Inc., (1988), p. 487.

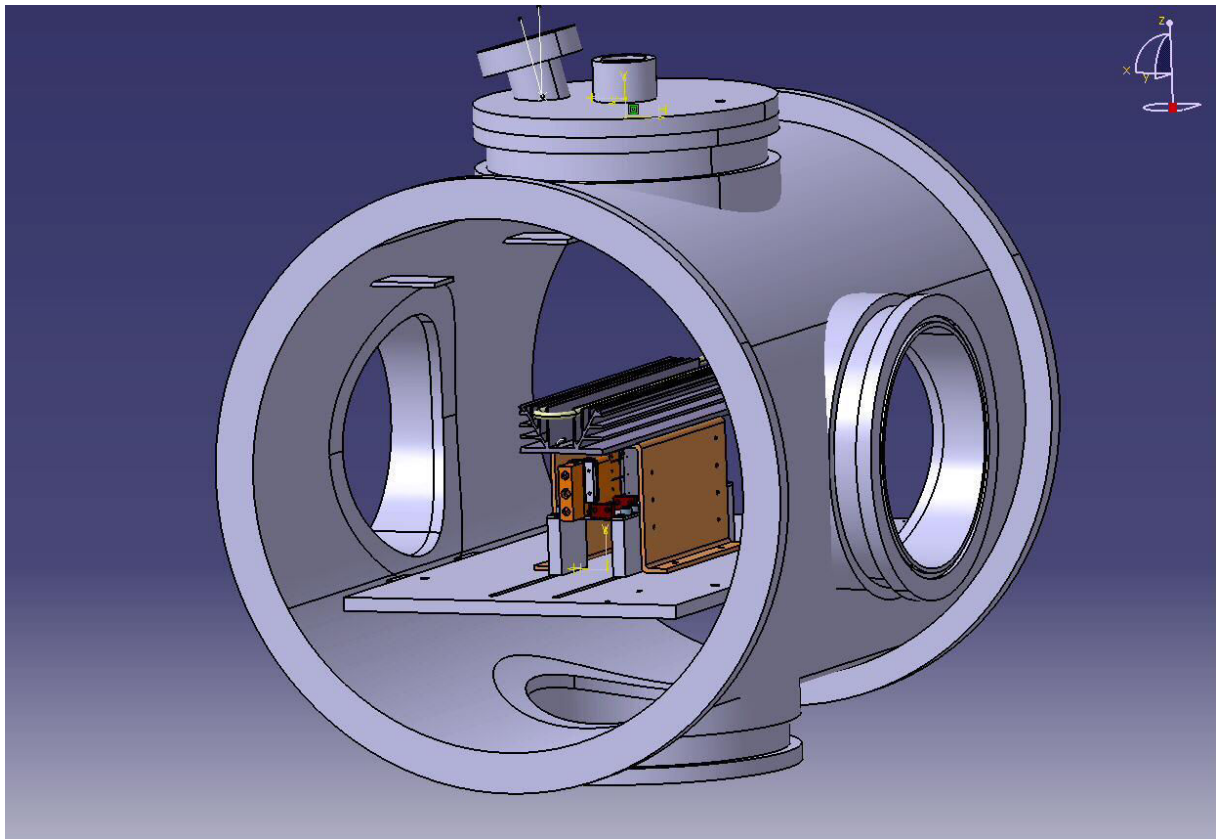
- [31] D. A. Currey and C. A. Pickles, "*Electromagnetic Stirring of Aluminium-Silicon Alloys*", J. Mater. Sci. V 23, (1988), p. 3756.
- [32] W. D. Griffiths and D. G. McCartney, "*The Effect of Electromagnetic Stirring During Solidification on the Structure of Al-Si Alloys*", Mater. Sci. Eng. A, V 216, (1996), p. 47.
- [33] M. C. Flemings, "*Behavior of Metal Alloys in the Semisolid State*", Met. Trans. B, V 22, (1991), p. 269.
- [34] M. Suéry, C. L. Martin and L. Salvo, "*Overview of the Rheological Behaviour of Globular and Dendritic Slurries*", in 4th International conference on semi-solid processing of alloys and composites, The University of Sheffield, England, D. Kürwood et P. Kapranos, 1996), p. 21.
- [35] Ch. Vivès, "Elaboration of semisolid alloys by means of new electromagnetic rheocasting processes", Met. Trans. B, V 23, (1992), p. 189.
- [36] C. J. Paradies, R. N. Smith and M. E. Glicksman, "*The Influence of Convection during Solidification on Fragmentation of the Mushy Zone of a Model Alloy*", Metall. Mater. Trans. A, V 28, (1997), p. 875.
- [37] T. Sato, W. Kurz and K. Ikawa, "*Experiments on Dendrite Branch Detachment in the Succinonitrile-Camphor Alloy*", Trans Of the Japan institute of metals, V 28, (1987), p. 1012.
- [38] K. A. Jackson, J. D. Hunt, D. R. Uhlmann and T. P. Seward, "*On the Origin of the Equiaxed Zone in Castings*", Transaction of the Metallurgical Society of AIME, V 236 (1966), p. 149.
- [39] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "*Dendritic Array Growth in the System NH_4Cl-H_2O and $[CH_2CN]_2-H_2O$: The Detachment of Dendrite Side Arms Induced by Deceleration*", J. Crystal Growth, V 234, (2002), p. 740.
- [40] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, "*Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy*", Metall. Mater. Trans. A, V 28, (1997), p. 1533.
- [41] A. Hellawell, J. R. Sarazin and R. S. Steube, "*Channel Convection in Partly Solidified Systems*", Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, V345, (1993), p. 507.
- [42] J. Pilling and A. Hellawell, "*Mechanical deformation of dendrites by fluid flow*", Mater. Trans. A, V 27, (1996), p. 229.
- [43] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "*Mechanism of Dendrite Fragmentation in Castings*", in Light Metals 1997, The Minerals, Metals & Materials Society, (1997), p. 933.

- [44] Q. Han and A. Hellawell, "*Primary Particle Melting Rates and Equiaxed Grain nucleation*", Metall. Mater. Trans. B, V 28, (1997), p. 169.
- [45] Y. Kishida, K. Takeda, I. Miyoshino and E. Takeuchi, "*Anisotropic Effect of Magnetohydrodynamics on Metal Solidification*", ISIJ Int, V 30, (1990), p. 34.
- [46] K. Mazuruk. "*Control of melt convection using travelling magnetic fields*". Advances in Space Research, 29(4) :541_548, 2002.
- [47] S. McFadden and D. J. Browne. "*Modelling the columnar to equiaxed transition using a front tracking method*". In Howard Jones, editor, 5th Decennial International Conference on Solidification Processing, (2007), p. 172.
- [48] M. Medina. "*Ségrégation par solidification en présence de convection naturelle ou forcée*". Thèse d'état, Institut National Polytechnique de Grenoble, Juin 2000.
- [49] S. Yesilyurt, S. Motakef, R. Grugel, and K. Mazuruk. "*The effect of the traveling magnetic field (TMF) on the buoyancy-induced convection in the vertical bridgman growth of semiconductors*". Journal of Crystal Growth, V. 263, (2004), p.80-89.
- [50] K. Zaidat, N. Mangelinck-Noël, and R. Moreau. "*Control of the solidification of al-ni alloys using a travelling magnetic field: macrosegregation*". In TMS, editor, Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes-XI, (2006), p.341-347.
- [51] K. Zaidat, T. Ouled-Khachroum, G. Vian, C. Garnier, N. Mangelinck-Noël, M. D. Dupouy, and R. Moreau. "*Directional solidification of refined Al-3.5wt%Ni under natural convection and under a forced flow driven by a traveling magnetic field*". Journal of Crystal Growth, (2005), V. 275. (2005), e1501_e1505.
- [52] I. Grants and G. Gerbeth. "*Linear three-dimensional instability of a magnetically driven rotating flow*". Journal of Fluid Mechanics, V. 463, (2002), p. 229-239.
- [53] X. Li, Z.M. Ren, Y. Fautrelle. "*Effect of a vertical magnetic field on the dendrite morphology during Bridgman crystal growth of Al-4.5wt% Cu*". Journal of crystal growth. V. 290. (2006), p 571-57.
- [54] X. Li, Z.M. Ren, Y. Fautrelle. "*Effect of an axial high magnetic field on the microstructure in directionally solidified Pb- Sn eutectic alloy*". Journal of crystal growth. V. 310. (2008), p 3584-3589.
- [55] X. Li, Y. Fautrelle, K. Zaidat, A. Gagnoud, Z. Ren, R. Moreau, Y. Zhang, C. Esling. "*Columnar-to-equiaxed transitions in al-based alloys during directional solidification under a high magnetic field*". Journal of crystal growth. V. 312. (2010), p 267-272.
- [56] X. Li, A. Gagnoud, Y. Fautrelle, Z. Ren, R. Moreau, Y. Zhang, C. Esling. "*Dendrite fragmentation and columnar-to-equiaxed transition during directional solidification at lower growth speed under a strong magnetic field*". Acta Materialia. V. 60. (2012), p 3321-3332.

- [57] P. Desnain, Y. Fautrelle, J.-L. Meyer, J.-P. Riquet, F. Durand, “*Prediction of equiaxed grain density in multicomponent alloys, stirred electromagnetically*”, Acta Met. Mat, V. 38, (1990), p. 1513-1523.
- [58] B. Willers, S. Eckert, P.A. Nikrityk, D. Rübiger, J. Dong, K. Eckert, and G. Gerberth. “*Efficient Melt Stirring Using Pulse Sequences of a Rotating Magnetic Field: Part II. Application to Solidification of Al-Si Alloy*”. The Minerals, Metals & Materials Society and ASM International 2008.
- [59] D Rübiger, M Leonhardt, S Eckert and G Gerbeth. “*Flow control during solidification of SnPb-alloys using timemodulated AC magnetic fields*”. IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering V. 27, (2011), 012053. doi:10.1088/1757-899X/27/1/012053
- [60] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, “*Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy*”, Metall Mater Trans. V 28A, (1997), p.1533.
- [61] R. Ernst, C. Garnier : « *Mesure numérique des caractéristiques d’un circuit oscillant pour le chauffage à induction* », Revue Générale d’Electricité, V 8, (1989), p. 1-8.
- [62] J. Jang and A. Hellawell, “*Use of NH₄Cl-H₂O Analogue Castings to Model Aspects of Continuous Casting. Part 2 : Columnar-Equiaxed Grain Transition and Crystal Sedimentation Rates*”, Ironmaking and steelmaking V 18, (1991), p. 275.

CHAPITRE III

Description de l'installation expérimentale : AFRODITE



Ce chapitre est consacré à la description détaillée de l'installation expérimentale de solidification appelée AFRODITE, réalisée au sein du laboratoire SIMAP/EPM (Sciences et Ingénierie des Matériaux & Procédés/ Elaboration par Procédés Magnétiques) à Grenoble.

III.1. HISTORIQUE DE L'INSTALLATION EXPERIMENTALE : AFRODITE

III.1.1. Benchmark de base : Le dispositif expérimental de Hebditch et Hunt

Le dispositif expérimental de Hebditch et Hunt [1-2], peut être considéré comme l'une des premières expériences menée à petite échelle, afin d'étudier le phénomène de ségrégation c'est-à-dire hétérogénéités de concentration dans les produits solidifiés, (figure III.1). Ce Benchmark de base créé en 1974, représente la source d'inspiration des différentes générations de l'installation expérimentale AFRODITE. Le principe de base de cette installation consiste à couler dans une lingotière de faible épaisseur (1,3 cm) un lingot de 10 cm de longueur et 6 cm de largeur. Celui-ci est ensuite solidifié à partir d'une paroi unique, refroidie de manière continue par un circuit d'eau ou d'air.

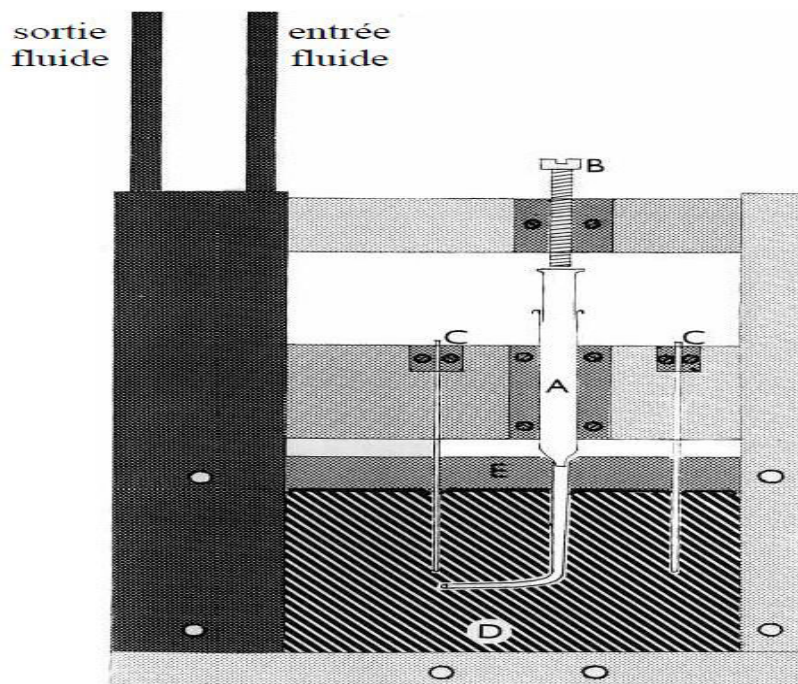


Figure III.1

Schéma présentant l'expérience menée par Hebditch et Hunt. Les thermocouples (C) permettent de suivre l'évolution de la température du lingot qui se développe dans la cavité D. Le refroidissement est assuré par le bloc refroidisseur parcouru par le fluide dont on voit les tubes d'entrée et de sortie, en haut du dispositif. Les autres parois sont adiabatiques [1].

L'étude expérimentale réalisée par Hebiditch et Hunt [1], sur ce dispositif a permis, d'examiner une large gamme d'alliages en composition: Sn-5wt.%Zn, Sn-5wt.%Pb, Pb-48wt.%Sn. La température à laquelle débute le refroidissement a été choisie juste au-dessus de la température de liquidus correspondant à la composition nominale de l'alliage étudié. Les figures (III.2 a, b et c) présentent quelques étapes dans le procédé utilisé pour solidifier ces lingots.

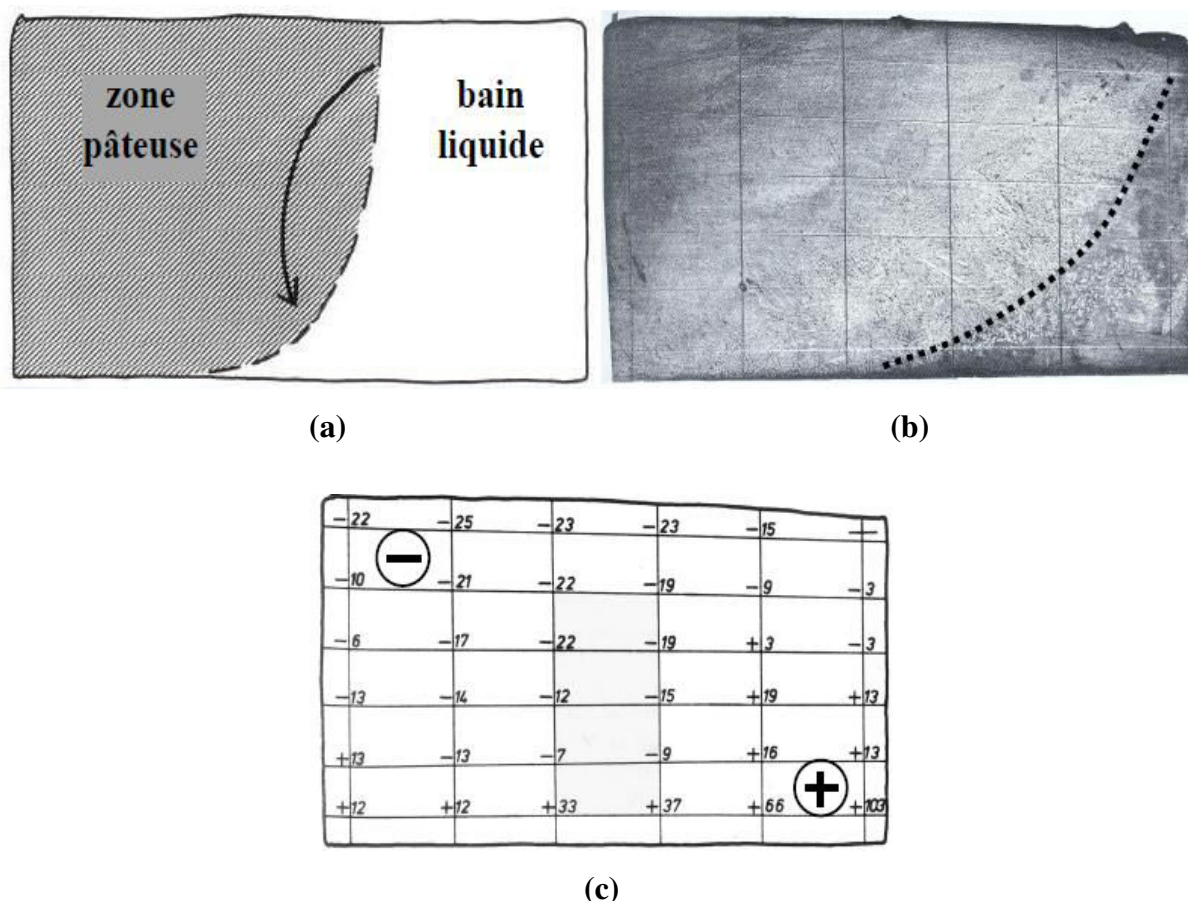


Figure III.2. Schéma présentant a) La position du front de solidification au cours de refroidissement, schématisée à partir des mesures, pour un alliage Sn-5%Pb. Le plomb rejeté provoque la mise en mouvement du liquide dans le sens direct. Ce mouvement entraîne un enrichissement en élément solutal dans la partie basse du lingot ce qui ralentit l'avancée du front. Ce phénomène explique son retard dans cette zone. b) Carte de structure du même lingot en fin de solidification, présentant des domaines colonnaires et équiaxes séparés par la ligne tracée en trait pointillé. c) Carte de composition relative correspondante. Une nette ségrégation dans la partie inférieure droite du lingot est visible (signe +). A l'inverse, la partie supérieure gauche est ségrégée négativement (signe -).

Dans le cadre de ce travail, Hebditch et Hunt ont constaté que les variations de densité du liquide, selon la concentration nominale de l'alliage, sont importantes et que les courants convectifs induits par les gradients solutaux et les gradients de température peuvent évoluer dans des sens contraires. Ils ont montré que les mouvements convectifs au sein de la zone pâteuse et dans le bain liquide, ont un effet très significatif sur le phénomène de ségrégation. Ils ont conclu que le rejet solutal créé un gradient de composition dans le liquide qui induit une force motrice (convection thermosolutale). D'autre part, celui-ci traverse la zone pâteuse, de manière plus ou moins importante selon sa perméabilité, ayant un effet de nettoyant sur les éléments solutaux de l'alliage qui se retrouvent précipités dans le bain liquide (Fig. III.2-a) et que l'une des conséquences directe de ces mouvements est l'apparition d'une stratification importante dans le liquide qui se présente sous forme de couches de mêmes densités.

Par ailleurs, Il est important de noter que cette installation a été un Benchmark de référence pour plusieurs travaux de simulation numériques, notamment ceux d'Ahmad et al. [3] et Jalanti et Combeau [4]. Une étude comparative entre la méthode des volumes finis et la méthode des éléments finis pour prédire la macroségrégation a été présenté dans le travail d'Ahmad et al. [3]. Cette comparaison s'est basée sur les expériences menées par Hebditch et Hunt [1, 2] sur les alliages Pb-48wt.%Sn et Sn-5wt.%Pb. Les conditions thermiques expérimentales utilisées sont estimées à partir du temps total de solidification. Les profils obtenus se révèlent similaires, validant les approches employées (voir la figure III.3). De plus, la méthode en volumes finis a présenté un avantage majeur par rapport à la méthode des éléments finis dans la prédiction des Freckles pour le cas de l'alliage Sn-5wt.%Pb.

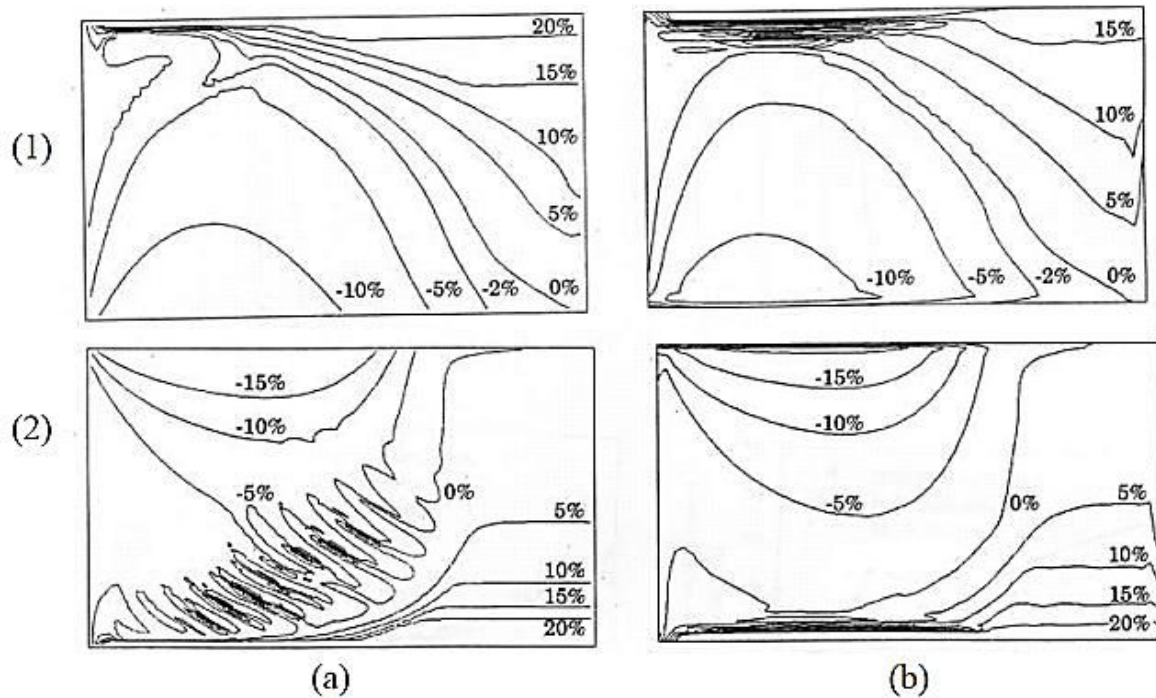


Figure III.3. Comparaison des profils de composition obtenus par : (a) la méthode des volumes finis et (b) la méthode des éléments finis. La simulation numérique a été réalisée pour l'alliage: (1) Pb-48wt.%Sn et (2) Sn-5%pds Pb, Ahmad et al [3].

III.1.2. Evolution de l'installation expérimentale AFRODITE

Le premier modèle de l'installation expérimentale AFRODITE appelé « **AFRODITE-I** » a été conçu dans le cadre de la thèse de Ghislain Quillet, dans le projet européen nommé MAP MICAST (*Microgravity Application Program « Microstructure formation in CASTing »*), soutenu par l'Agence Spatiale Européenne, G. Quillet et al [5]. Ce programme se situait dans la perspective d'améliorer à terme la maîtrise des microstructures de solidification grâce à un brassage contrôlé obtenu par application de champs magnétiques tournants ou glissants. Son objectif fut d'élaborer un modèle global du processus de solidification en s'appuyant sur des démarches expérimentales, dans laquelle il était envisagé, à terme, de recourir à des expérimentations en microgravité.

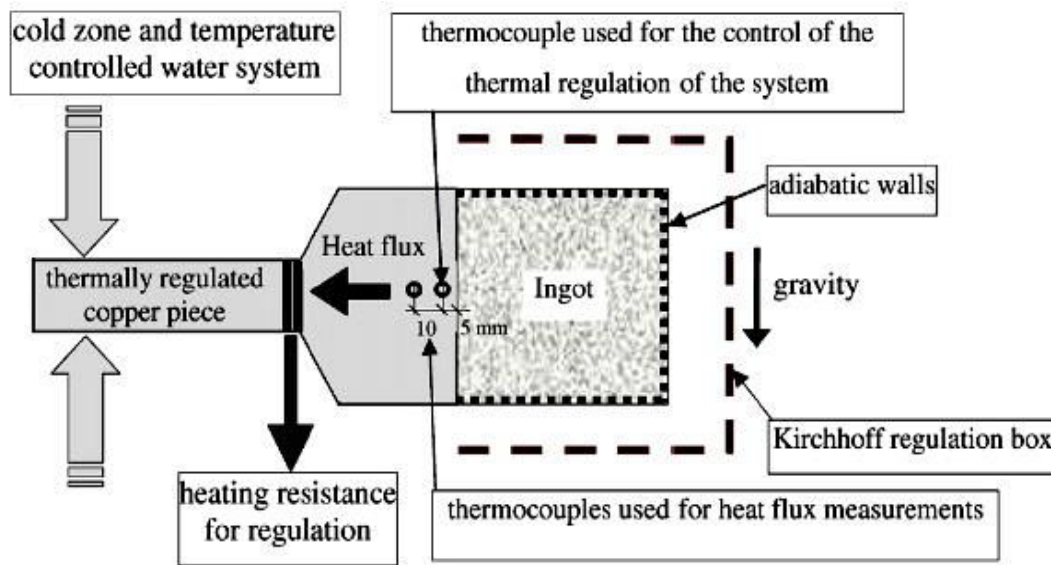


Figure III.4. Schéma illustratif de l'installation expérimentale AFRODITE-I, G. Quillet et al [5].

Les travaux réalisés sur l'installation AFRODITE-1 (figure III.4), ont permis de réaliser une série d'étude expérimentale sur la solidification de l'étain pur et sur le phénomène de formation des mesoségrégations au cours de la solidification de l'alliage métallique Sn-10wt.%Bi (figure III.5),

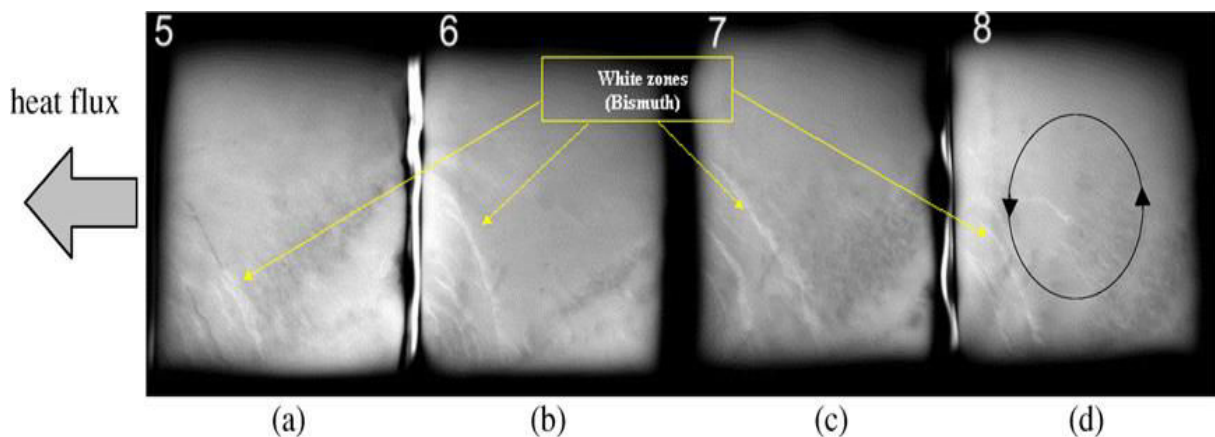


Figure III.5. Analyse post-mortem des ségrégations de bismuth (zones blanches) obtenue à partir des rayons X pour deux vitesses de refroidissement : 2 K.min^{-1} pour (a) et (b) et 5 K.min^{-1} pour (c) et (d); la configuration d'écoulement supposée est représentée en (d), G. Quillet et al [5].

Par la suite et toujours dans la cadre du projet MAP MICAST, X. D. Wang a entamé une nouvelle série expérimentale en 2006, avec des modifications importantes sur le premier modèle (AFRODITE I). Ces modifications peuvent être résumées comme suit :

- 1- Changement de la taille de l'échantillon de $(1 \times 5 \times 6 \text{ cm})$ à $(1 \times 10 \times 6 \text{ cm})$;
- 2- L'ajout d'un deuxième échangeur, ce qui donne deux sources de chaleur pour faire fondre et refroidir afin de contrôler le gradient de température à l'échelle de l'échantillon;
- 3- L'intensification des points de mesures de la température (80 thermocouples de type K) dans le but d'avoir plus de précision dans les cartes thermiques ;
- 4- L'ajout d'un brasseur électromagnétique de type champ magnétique glissant pour brasser la charge liquide afin d'homogénéiser la concentration en élément soluté et d'améliorer les échanges thermiques ;
- 5- Modifications sur le système d'isolation thermique notamment sur la boîte de Kirchhoff, dans le but de réduire les pertes thermiques par rayonnement (pertes $< 0,18 \text{ Watt}$) ;
- 6- Des modifications sur l'enceinte de l'installation pour pouvoir travailler sous un vide primaire (entre 10^{-2} et 10^{-3} mbar) afin de réduire les pertes par convection.

Ces modifications ont débouché à une nouvelle installation nommée « **AFRODITE-II** » (voir figure III.6). Cette dernière a fait l'objet d'un dispositif expérimental de solidification bien documenté et instrumenté X. D. Wang et al [5-8], et elle a été considérée comme une expérience de validation de plusieurs travaux de simulations numériques menées sur la solidification, M. Bellet et al [9], S. Ganian et al [10], R. Boussaa et al [11], T. Carozzani et al [12].

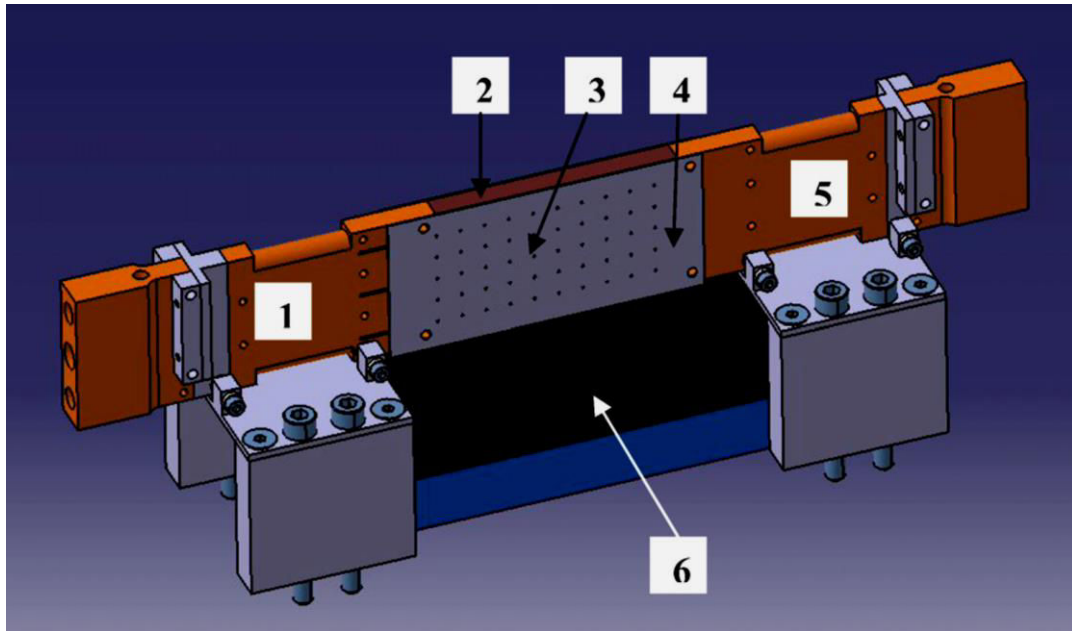


Figure III.6. Le schéma de l'installation expérimentale (AFRODITE-II). 1. Échangeur de chaleur gauche, 2. Échantillon de Sn-10wt.%Pb, 3. Réseau de thermocouples placé sur la face latérale du creuset, 4. Le creuset en acier inoxydable, 5. Échangeur de chaleur droit, 6. Moteur linéaire, X. D. Wang et al [5].

Des études analytiques et expérimentales basées sur AFRODITE-II, ont permis d'analyser la solidification de l'étain pur et de l'alliage binaire Etain-Plomb (Sn-10wt.%Pb). Deux cas de vitesses de refroidissement ($0,02$ et $0,04$ K/s) avec un gradient de température nul, ont été traités dans le travail de X. D. Wang et al [6]. L'évolution temporelle des transferts thermiques due à la convection naturelle (thermosolutale), ainsi que son influence sur la macrostructure de solidification a été examinée (voir figure III.7).

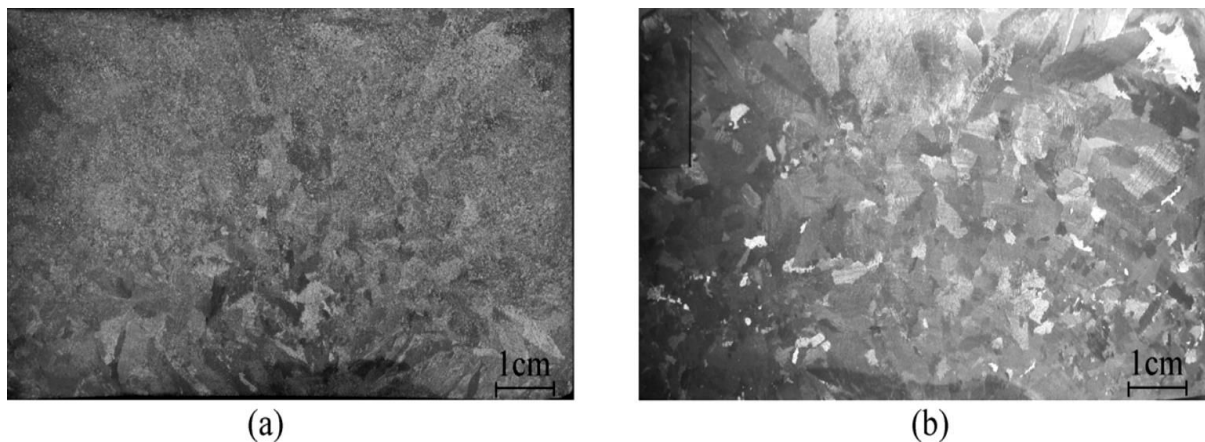


Figure. III.7. Macrostructure de solidification d'alliage de Sn-10wt.%Pb pour deux taux de refroidissement moyen différents : (a) $dT/dt = 0,02$ K/s, (b) $dT/dt = 0,04$ K/s, $\Delta T = 0K$, X. D. Wang et al [6].

Après la fin de la série des travaux expérimentaux réalisée par X. D. Wang, des questions pertinentes restent en suspens sur le flux thermique réellement échangé entre l'échantillon et les deux échangeurs ainsi que sur la puissance du brassage et son influence sur la structure cristalline finale des alliages métalliques binaires. A la lumière de l'étude expérimentale (Partie I) et théorique (partie II) réalisée par X. D. Wang [10], traitant de l'effet du brassage modulé sur la configuration de l'écoulement de l'alliage Ga-In-Sn à la composition eutectique (Ga-21,5wt.%In-10wt.%Sn), B. Saadi a modifié le brasseur dans le but d'augmenter la puissance de brassage, en tenant compte de la contrainte de l'espace disponible qui limite le choix du moteur linéaire. Dans ce contexte une série d'expérience de solidification qui traite l'effet de la variation des conditions expérimentales sur le processus de la solidification de l'alliage Etain-plomb, a été réalisée.

Dans le cadre de cette présente thèse une série de thermocouple a été ajoutée dans les échangeurs (3 thermocouples de chaque côté) dans le but d'estimer le flux thermique réellement échangé au cours du processus expérimental, ainsi que, quelques modifications sur la position verticale et horizontale du brasseur et une révision du système d'acquisition qui feront l'objet des analyses et des discussions menées dans ce chapitre. Ces modifications majeures donnent naissance à l'actuelle installation expérimentale appelée (*AFRODITE-III*).

III.2. CONFIGURATION

La configuration de solidification choisie correspond à un domaine aux parois adiabatiques, à l'exception des deux parois verticales qui permettent la fusion ou la solidification de l'échantillon. Ainsi, l'élément en soluté doit être choisi plus lourd ou plus léger que le solvant, afin de prévoir l'apparition de ségrégations au cours du processus de solidification.

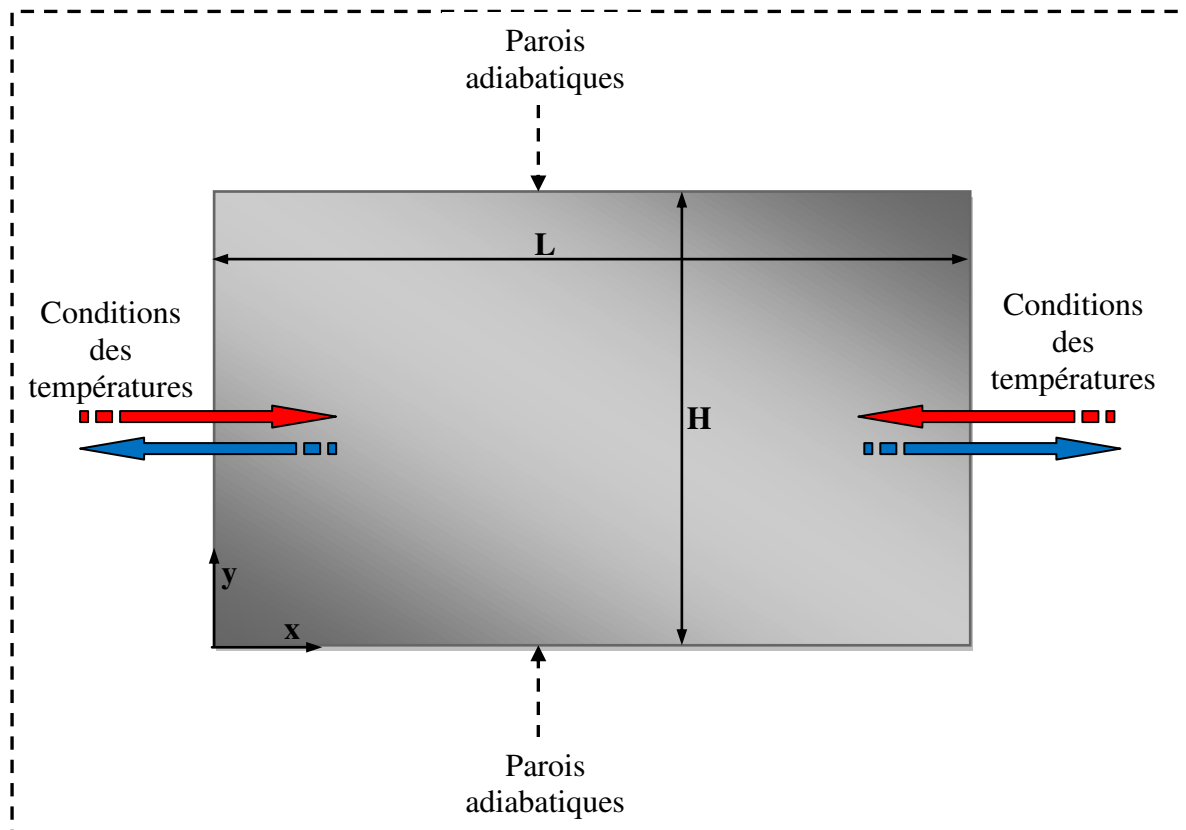


Figure III.8. Configuration thermique de l'expérience.

III.3. ALLIAGE CHOISI

III.3.1. Critères de choix

Il est nécessaire, avant toute chose de définir la géométrie de l'échantillon à solidifier. Plusieurs facteurs entrent en jeu. On peut effectivement observer une prédominance de la bidimensionnalité dans les travaux de simulations numériques menées sur le phénomène de la solidification des alliages métalliques. Les dimensions doivent, autant que faire se peut, tenir compte de cet aspect. Evidemment, il s'agit d'une hypothèse de travail sur l'expérience qui ne peut être vérifiée qu'a posteriori.

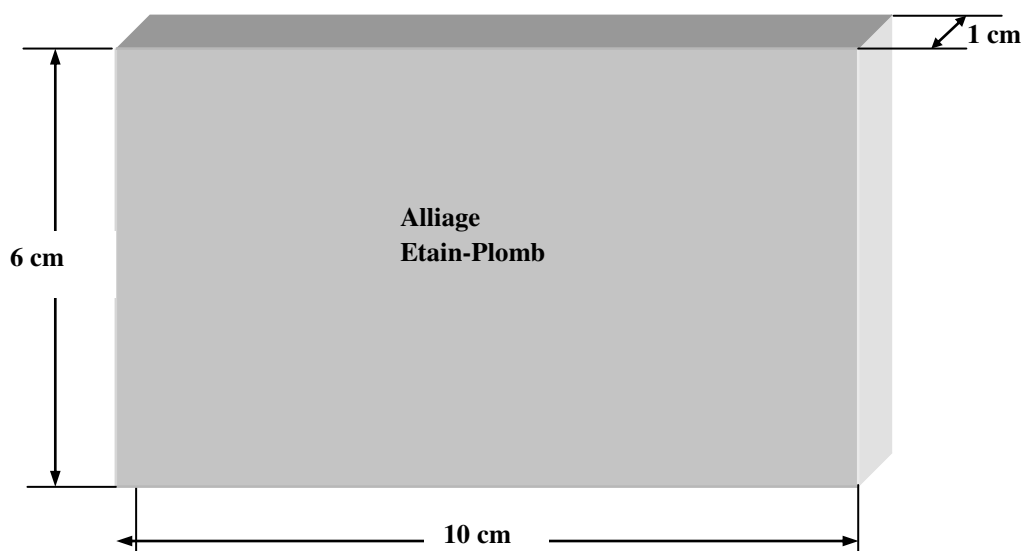


Figure III.9. Géométrie de l'échantillon.

De plus, la configuration thermique et solutale doit favoriser l'apparition du phénomène physique que nous désirons observer : les canaux ségrégés. L'alliage choisi doit également permettre l'apparition de ces derniers. Il doit être suffisamment connu pour avoir des données physiques accessibles dans la littérature, ne pas présenter de contraintes techniques trop pénalisantes (haut point de fusion, toxicité...). Ainsi, la configuration correspond à un petit lingot de six centimètres de hauteur, dix de longueur et un centimètre d'épaisseur (cf. figure III.9). Une épaisseur de un centimètre est un compromis entre un lingot trop fin, où les effets de bords seraient trop conséquents, et un trop épais qui sortirait de notre approximation de se rapprocher d'un système thermique quasi-bidimensionnel. L'alliage, quant à lui, est un Etain-Plomb, dont la concentration varie entre 3 et 10% de masse. La basse température de liquidus de l'alliage ($228,14^{\circ}\text{C}$ pour Sn-3wt.%Pb et $219,6^{\circ}\text{C}$ pour Sn-10wt.%Pb) permet de simplifier les conditions techniques expérimentales.

III.3.2. Préparation des échantillons

Un dispositif particulier a été créé afin d'élaborer les lingots. Il répond à une double contrainte. D'une part, il doit permettre de fabriquer les échantillons aux dimensions désirées avec une grande simplicité de reproduction du procédé ; d'autre part, les lingots doivent être homogènes au niveau de la concentration en soluté. Ces deux critères nous conduisent à un système induction/trempe présenté dans la figure (III.10). A noter que le support du creuset en quartz n'est pas représenté.

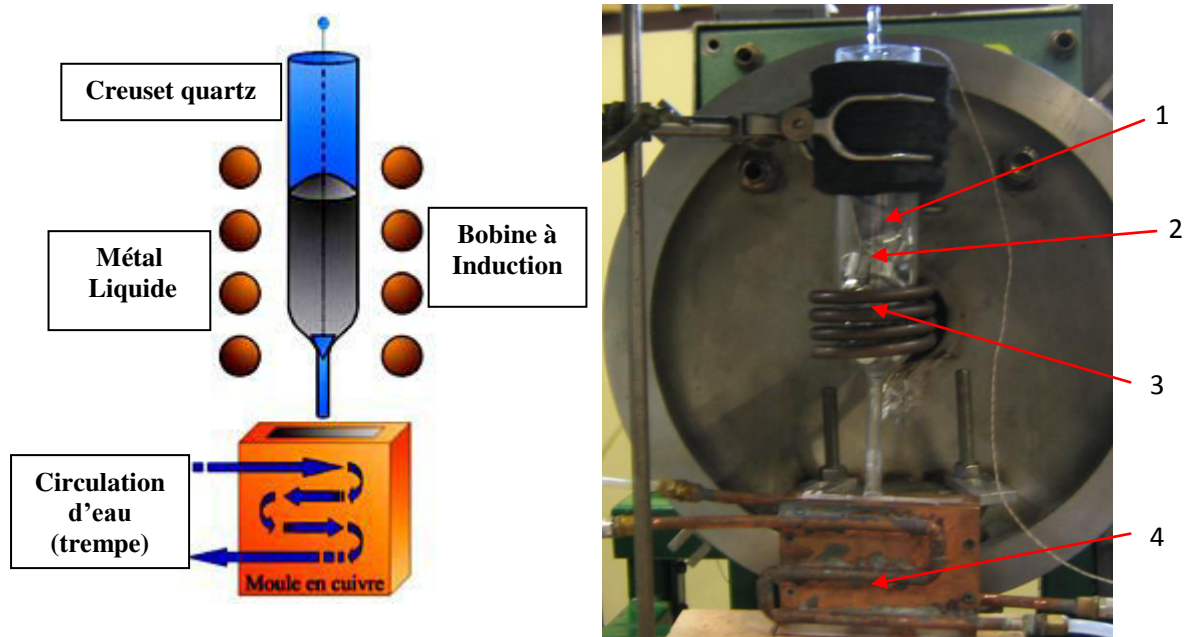


Figure III.10. Dispositif d'induction pour préparer les échantillons 1. Creuset en quartz, 2. Étain et plomb pur, 3. Bobine d'induction, 4. Creuset en cuivre avec un système de refroidissement.

Ce dispositif est constitué de deux parties. La première correspond à un creuset en quartz, dont la sortie est obstruée par une quenouille escamotable. Cette dernière rend le creuset étanche au métal liquide. Le tout est inséré à l'intérieur d'une bobine à induction. Cela permet de fondre et de brasser les composants métalliques disposés dans le creuset. L'alliage est en effet constitué à partir des métaux purs (Étain et Plomb) pesés précisément pour correspondre au volume et à la concentration désirés. Une fusion par induction permet de cantonner les oxydes dans la peau de la surface libre. Un faible diamètre de sortie du creuset entraîne le dépôt des oxydes dans le creuset lors de la vidange de son contenu dans le moule. La deuxième partie du dispositif est justement constituée de ce moule. Ce dernier est en cuivre (grande conduction thermique idéale pour la trempe) et parcouru par une circulation d'eau (en circuit ouvert) qui permet de tremper le métal liquide lorsqu'il envahit le moule. L'intérieur du moule est recouvert d'une légère couche de nitrure de bore (BN D 60 A), afin d'éviter toute interaction chimique entre le cuivre et l'alliage et de favoriser le démoulage. Une analyse chimique de contrôle n'a montré aucune pollution de l'échantillon par du cuivre ou par la couche du nitrure de bore.

III.4. CREUSET

En simulation numérique usuelle, tout se passe comme si le creuset « n'existait pas ». Pratiquement, il faut tenir compte de sa présence, étant donné la capacité calorifique qu'il peut représenter dans les conditions adiabatiques que l'on désire lui imposer.

III.4.1.Problématique

Pour limiter les pertes thermiques, l'usage d'un isolant de type céramique semble convenable et être un choix « naturel ». Toutefois, un simple calcul d'ordre de grandeur montre que plusieurs centimètres d'isolant sont nécessaires pour minimiser les pertes thermiques. Le creuset possède alors une capacité calorifique conséquente compte tenu de la quantité de chaleur à extraire.

Analyse thermique

L'échantillon représente une masse de *410gr* pour un alliage de Sn-3wt.%Pb. Pour un passage de 260°C à 150°C , par exemple, il faut extraire :

$$Q = m_{\text{lingot}} [C_{pl}(T_{\text{ini}} - T_L) + \widetilde{C}_p(T_L - T_S) + C_{ps}(T_S - T_{\text{fin}})] + m_{\text{lingot}}L \quad (\text{III.1})$$

$$Q = 45,52 \text{ KJ}$$

avec :

T_L : Température de liquidus ($228,14^{\circ}\text{C}$)

T_s : Température de solidus (183°C)

L : La chaleur latente pour l'alliage choisi ($57,512 \text{ KJ}$)

- Pour un environnement isolant en céramique (de type *Cotronics 902* par exemple) de un centimètre d'épaisseur tout autour du lingot, on a :

$$V_{\text{céramique}} = 228 \text{ cm}^3$$

$$m_{\text{céramique}} = 524 \text{ gr}$$

$$C_{p(\text{céramique})} = 0,9 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$$

Soit une quantité de chaleur à extraire de $Q = 51,87 \text{ kJ}$.

- De même, pour un creuset en monalyste,

$$m_{\text{monalyste}} = 634,8 \text{ gr},$$

$$C_{p(\text{monalyste})} = 1,05 \text{ J} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1},$$

donc une quantité de chaleur de $Q = 73,32 \text{ kJ}$.

Ainsi, si l'on envisage un creuset en céramique (quelle qu'elle soit), on ne peut s'affranchir de sa présence et de sa capacité calorifique. Au contraire, plus ses propriétés isolantes augmentent, plus sa capacité calorifique augmentera. L'épaisseur du creuset pose le problème de l'unidirectionalité de la solidification par la présence de gradients de température latéraux. Une autre solution doit être envisagée afin de minimiser l'existence du creuset et d'assurer son adiabaticisme.

III.4.2. Creuset en acier inoxydable (Inox 304 L)

A la lumière de l'analyse thermique précédente, le creuset choisi est en acier inoxydable constitué de deux plaques de cinq dixièmes de millimètre d'épaisseur ($0,5\text{mm}$). La jonction des deux demi-tôles se fait au centre du creuset, par une soudure étanche sur la partie basse du creuset par laser (Société THERMOCOAX). Cela représente 62gr d'acier inoxydable, avec une capacité calorifique $C_{p(\text{inox})} = 0,6\text{J.gr.K}$, ce qui donne une quantité de chaleur $Q = 4,09 \text{ kJ}$, soit 9% de la quantité de chaleur à extraire du lingot seul.

Le choix d'utiliser de l'acier inoxydable est un compromis avec, d'une part, la résistance mécanique de l'ensemble supportant soixante-six thermocouples soudés sur ses deux faces (figure III.11), d'autre part, la neutralité chimique du creuset vis à vis du lingot (ceci afin d'éviter toute pollution).

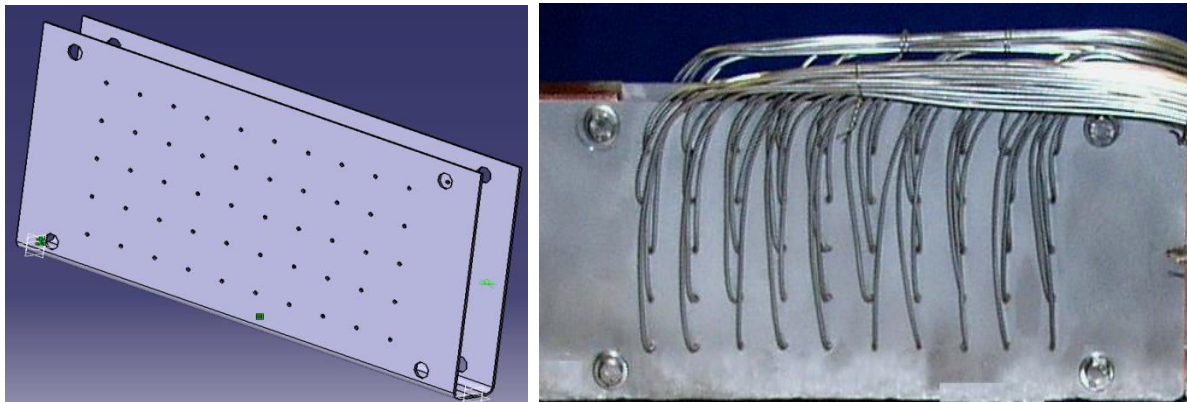


Figure III.11. Creuset en acier inoxydable avec le faisceau d'acquisition de la température qui comporte 66 thermocouples de type K soudés par laser : 50 sur la paroi latérale (vue de face) et 16 sur l'autre paroi latérale.

III.4.3. Fixation des thermocouples sur le creuset

Le creuset inox est composé de deux plaques de cinq dixièmes de millimètre d'épaisseur. Les thermocouples ont un diamètre de cinq dixièmes, le tout pour les considérations thermiques précédemment décrites. La fixation des thermocouples sur ces plaques résulte d'un compromis entre résistance mécanique, pertes thermiques et facilité de reproductibilité du procédé de fixation si besoin. Tous les thermocouples sont pointés par soudage laser, le pointage de tous les thermocouples est bien renforcé, pour avoir la meilleure homogénéité dans la mesure. Les soixante-six (66) thermocouples sont issus de la même bobine de production. Les thermocouples se rejoignent dans une gaine afin de limiter les effets mécaniques lors des manipulations. Vue la difficulté de réalisation, cette tâche a été réalisée par une société spécialisée dans ce domaine de soudure par laser (THERMOCOAX).

Les thermocouples sont disposés sur chaque face selon un quadrillage dont le pas vaut un centimètre horizontalement et verticalement (cf. figure III.12-13).

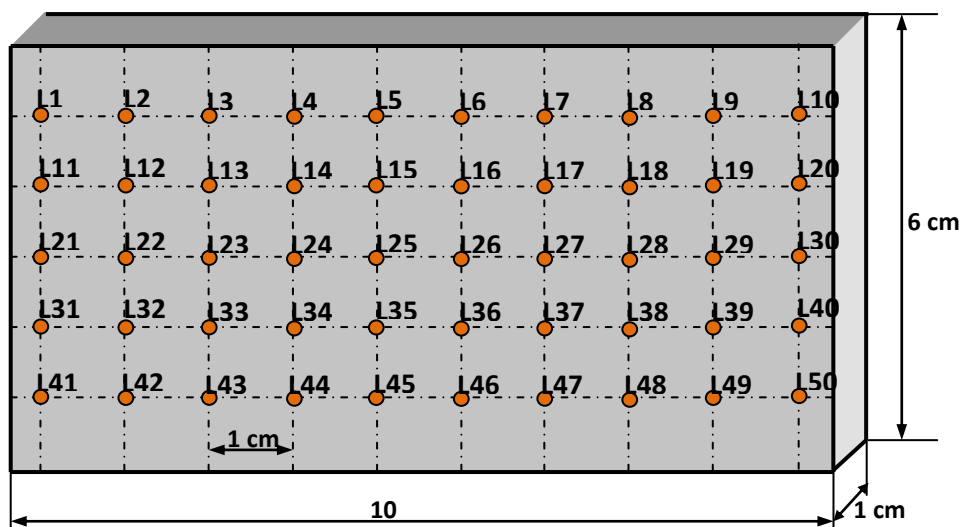


Figure III.12. Positions des thermocouples sur le creuset (vue perspective de face)

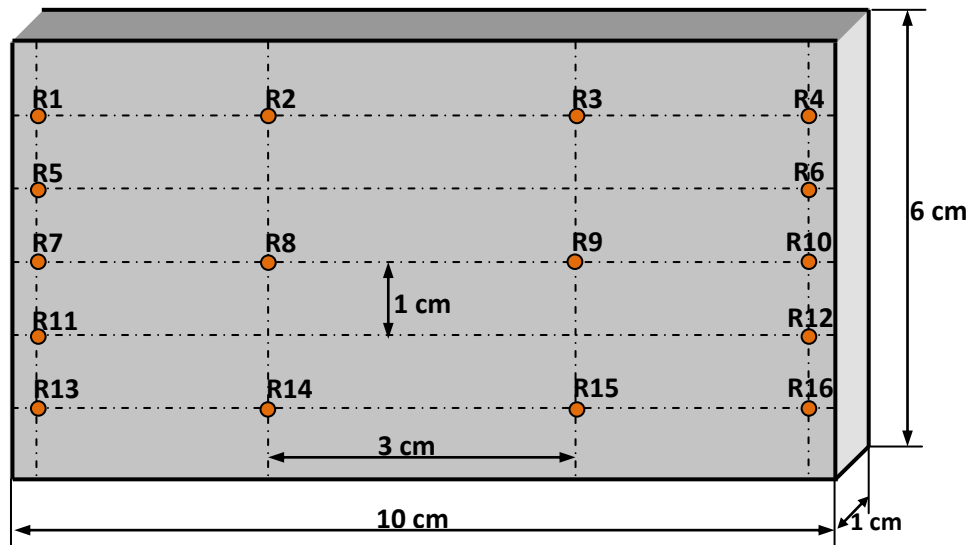


Figure III.13. Positions des thermocouples sur le creuset (vue perspective de derrière)

III.5. ECHANGEURS THERMIQUES

Un contrôle rigoureux de la température des deux faces d'échange et du flux extrait est indispensable. Cela est rendu possible par la grande conductibilité thermique du cuivre ($\lambda_{cu} = 380 W.m^{-1}.K^{-1}$) qui a été utilisé pour réaliser les deux échangeurs représentés sur la figure (III.14). Le choix du cuivre n'est pas anodin car il pose des contraintes chimiques (interaction du cuivre avec l'étain). Thermiquement, ce choix est indispensable. La neutralité chimique est assurée par une mince couche de chrome et la pulvérisation d'un spray de nitrure de bore sur la face de contact de chaque échangeur avec le métal liquide. L'élément (2) sur la figure (III.14) représente un block en cuivre qui contient une gorge parcourue par un écoulement d'eau thermostatée. Cette zone constitue une source froide qui permet d'extraire de la chaleur de l'ensemble du dispositif lorsque nécessaire. L'eau, couplée au cuivre, permet d'avoir des échanges thermiques optimaux. Suit une zone permettant la fixation de l'ensemble sur son support. Une pièce en inox est fixée (l'élément 3 sur la figure III.14) de 8 mm d'épaisseur qui sépare le block de refroidissement et l'élément chauffant. La conception thermique de cet élément a été faite dans l'objectif de ralentir l'échange thermique afin de pouvoir contrôler le taux de refroidissement. La partie responsable de l'échange de chaleur avec le lingot est composée d'une gorge en cuivre parcourue par une résistance chauffante. Il s'agit d'un élément monofilare, de diamètre 1,5 mm, à extrémités froides afin de déporter les connecteurs vers une zone moins élevée en température.

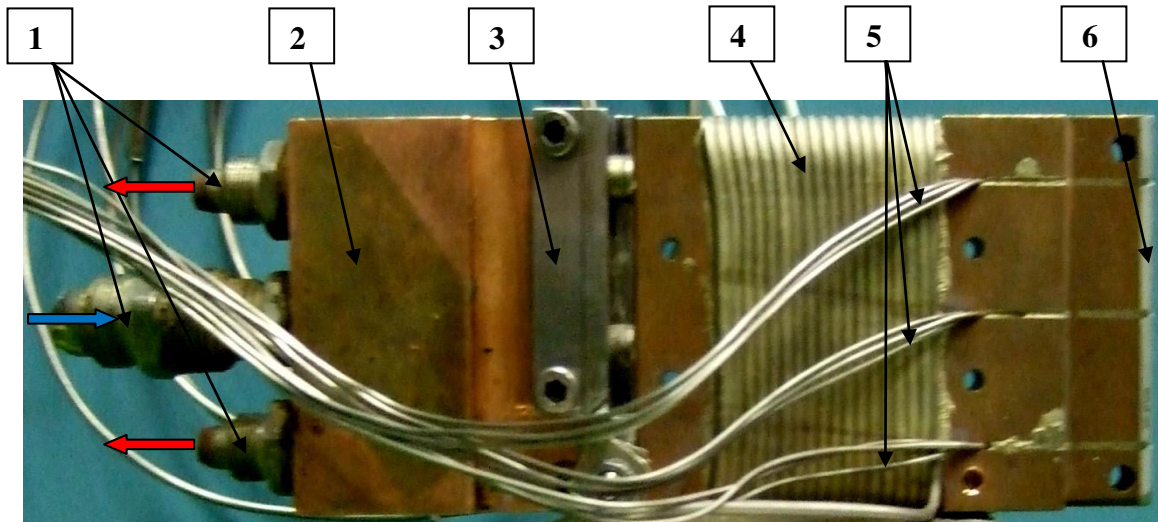


Figure III.14. Photo de l'échangeur de chaleur du côté gauche: 1. Circulation d'eau de refroidissement, 2. Block en cuivre de refroidissement, 3. Pièce en acier inoxydable pour retarder la diminution de la température, 4. Élément chauffant par résistance électrique, 5. Neuf thermocouples pour contrôler le flux thermique échangé, 6. Couche de chrome.

La gaine de cet élément chauffant est en inox, laquelle est directement brasé dans la gorge, à l'aide d'argent, en assurant le meilleur contact thermique possible entre la résistance et l'échangeur pour optimiser les transferts de chaleur. Cette résistance est asservie à la consigne en température imposée à la paroi d'échange thermique avec le lingot à fondre ou à solidifier. Cet asservissement a lieu par l'intermédiaire d'un PID relié à son alimentation. Les deux parois des deux échangeurs sont directement en contact avec le métal liquide (ou solide). La partie parallélépipédique qui la précède est la zone de contrôle de la température et de la mesure du flux thermique. En effet, cette zone est traversée par neuf thermocouples de chaque échangeur, positionnés au cœur du cuivre (à mi-épaisseur) avec une distance de 2cm verticalement et $1,5\text{cm}$ horizontalement (figure III.14). Le thermocouple FL3 pour l'échangeur gauche et FR3 pour l'échangeur droit (les plus proches de l'interface échangeur-échantillon à mi-hauteur) permettent, par l'intermédiaire d'un PID, de contrôler les températures imposées sur les parois d'échanges. Les autres thermocouples permettent, par extrapolation, de vérifier la température à l'interface et de déterminer le flux extrait. La figure (III.15) permet de visualiser les interactions entre les échangeurs, l'échantillon et le creuset.

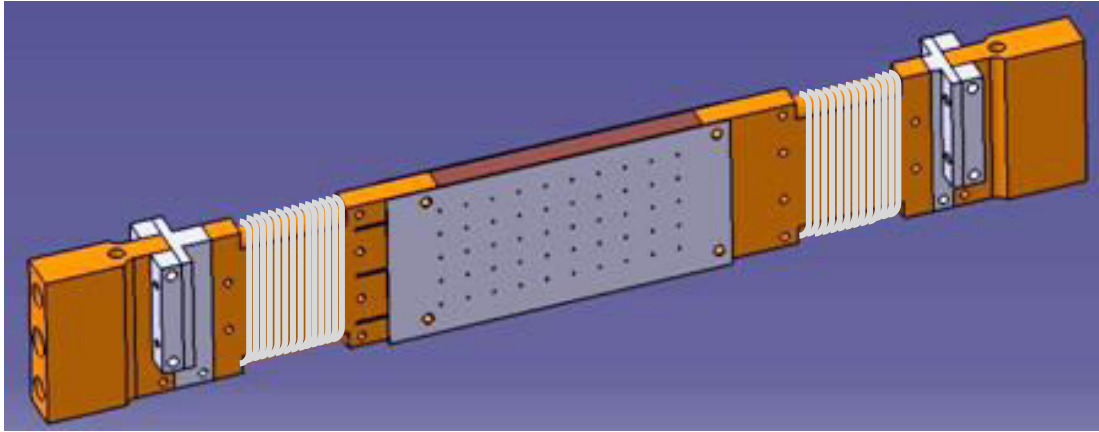


Figure III.15. Schéma illustratif de l'assemblage entre le creuset, l'échantillon et les deux échangeurs thermiques.

III.6. ISOLATION THERMIQUE DU CREUSET

Pour résoudre le problème de l'adiabatisme. La première étape consiste à placer l'échantillon, le creuset et les échangeurs thermiques dans une enceinte sous vide afin de réduire les pertes thermiques au simple rayonnement.

III.6.1. Les pertes thermiques par rayonnement

Pour un corps qui rayonne vers un deuxième corps qui l'entoure complètement (l'enceinte considérée comme un corps noir), ces pertes peuvent être approchées par la loi de Stefan :

$$P = \sigma_{stefan} \varepsilon S (T_1^4 - T_2^4) \quad (III.2)$$

avec σ_{stefan} qui représente la constante de Stefan ($5,67.10^{-8} W.m^{-2}.K^{-4}$), ε l'émissivité du corps rayonnant (0,8 pour l'inox 304L oxydé), S la surface rayonnante du premier corps ($2 \times 0,1 \times 0,06$) m².

Ainsi, si l'on considère le lingot à une température de 533K (260°C) et l'enceinte sous vide qui l'entoure à 293K (20°C), on a une perte due au rayonnement de $P_r = 39,92 W$ pour le creuset en inox. Or, si l'on compare aux 45,52 kJ à extraire (pour un $\Delta T = 110^\circ C$), en un temps d'environ trente minutes, on a $P_{ex} = 25,29 W$. Il est donc crucial de réduire les pertes thermiques par rayonnement car, pour un refroidissement lent, elles sont plus de une fois et demie par rapport à l'extraction ($P_r > 1,5 P_{ex}$). Conformément à la formule de Stefan, comme

il nous est difficile de réduire la surface rayonnante, les deux paramètres sur lesquels nous pouvons agir sont l'émissivité et la température du corps 2.

Un des moyens de réduire l'émissivité est d'employer de l'or : $\varepsilon_{or} = 0,02$. Les pertes seraient alors de $1,16W$. Soit $4,59\%$ de l'extraction de chaleur. Une telle valeur serait satisfaisante pour considérer un adiabatisme expérimental et assurer l'unidirectionnalité du flux extrait durant le processus de solidification. La seule possibilité est d'effectuer la dorure du creuset. Celle-ci ne pouvant avoir lieu que par électrolyse, cela est rendu difficile par la présence de thermocouples sur les parois du creuset. Leur fixation peut être grandement gênée par la présence d'or. Cette solution a donc été abandonnée. Le paramètre à travailler est alors la température du corps récepteur du rayonnement du creuset inox.

III.6.2. La boîte de Kirchhoff.

Comme il est peu pratique d'agir sur la température de l'enceinte elle-même, une boîte thermostatée en cuivre est installée autour de l'échantillon (figure III.16). Cette boîte est appelée « boîte de Kirchhoff ». Si l'on considère deux corps dont l'un entoure totalement l'autre, il est possible d'affirmer, en accord avec la loi de Kirchhoff, qu'à température donnée, l'émissivité et l'absorption de n'importe quelle surface solide sont les mêmes quand le rayonnement est en équilibre entre les surfaces solides. Cela est également valable si l'on considère les longueurs d'ondes séparément. Qui plus est, il est possible de considérer que les surfaces rayonnantes des deux corps ici en présence (le creuset en inox et la boîte de Kirchhoff en cuivre) ne sont pas polies, ce qui donne une émissivité de $0,8$ pour l'inox (304 L oxydé) et $0,65$ pour le cuivre.

- Analyse thermique

Si l'on considère un corps à T_1 entourant un second corps de surface S (surface du creuset) à une température de T_2 , il est possible d'évaluer la borne supérieure des pertes, en utilisant la relation suivante.

$$P = \frac{\sigma_{stefan} S (T_1^4 - T_2^4)}{\frac{1-\varepsilon_1}{\varepsilon_1} + 1 + \frac{1-\varepsilon_2}{\varepsilon_2}} \quad (III.3)$$

Les mesures expérimentales montrent que l'écart maximal (δT) entre la température moyenne de la grande face du creuset et la température mesurée sur la surface de la boîte de Kirchhoff ne dépasse pas $4^\circ C$, lorsque la charge est complètement liquide et elle vaut $7^\circ C$ à l'état

pâteux. Donc si on considère que T est la température de la boîte de Kirchhoff, la température moyenne du creuset sera $(T + \delta T)$, et la loi de Stefan Boltzmann s'écrit :

$$P = \frac{\sigma_{stefan} S [(T + \delta T)^4 - T^4]}{\frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} + 1 + \frac{1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_2}}$$

$$P = \frac{\sigma_{stefan} S [4\delta T^3 + 6\delta^2 T^2 + 4\delta^3 T + \delta^4]}{\frac{1 - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} + 1 + \frac{1 - \varepsilon_2}{\varepsilon_2}} \quad (III.4)$$

Celle-ci est estimée à $1,8 \text{ W}$ (20 fois moins que l'estimation faite précédemment). Les températures du creuset et de la boîte de Kirchhoff doivent donc être très voisines. La boîte est située à $4,5 \text{ cm}$ de part et d'autre du creuset en inox, 3 cm au niveau du fond. Sa longueur est suffisante pour intercepter le rayonnement à partir d'un angle de 45° pour les zones les plus proches de l'échangeur, un angle de 18° pour les parties les plus lointaines (cf. figure III.17). Il y a donc un angle de fuite si l'on a un rayonnement totalement hémisphérique. L'objectif principal reste de compenser les pertes thermiques par rayonnement du creuset. Or, pendant le processus de solidification, il existe un gradient horizontal de température le long du creuset.

Afin de tenir compte de ce gradient, la boîte comporte une résistance chauffante. Cette résistance chauffante entoure la boîte de cuivre à ses deux extrémités. Cette résistance comporte un thermocouple monté en opposition avec un autre thermocouple de part et d'autre du creuset inox (thermocouple L25). Il est possible de jouer sur cette consigne pour compenser les pertes par rayonnement. Cette résistance permet de créer le long de la boîte de Kirchhoff un gradient de température qui permet de corriger au mieux les pertes thermiques par rayonnement, ainsi que l'angle de fuite ou la direction de rayonnement (facteur de forme). Cette résistance reste asservie tout au long du processus de solidification. Le réglage de consigne se fait lorsque le lingot est à l'état liquide et l'ensemble à l'équilibre.

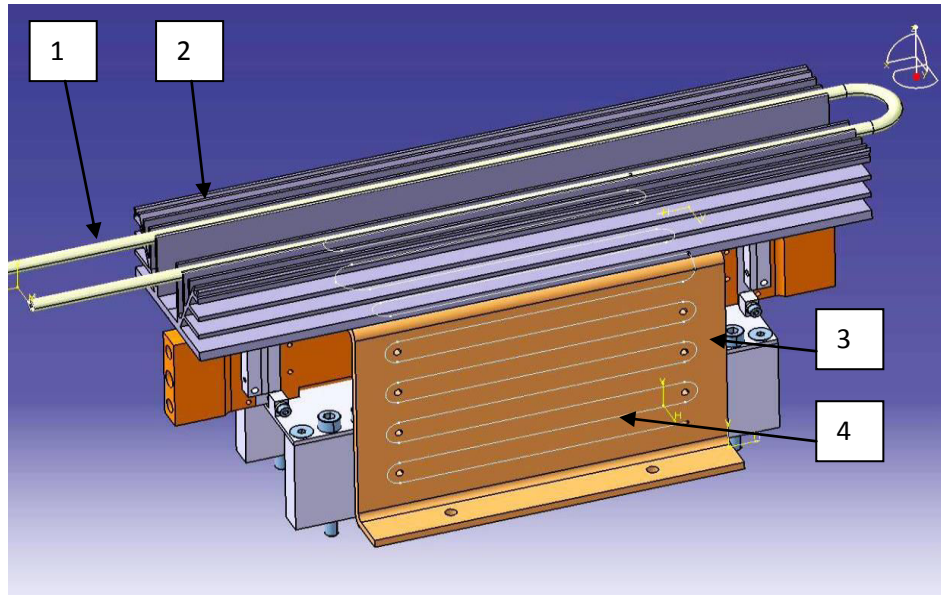


Figure III.16. Schéma descriptif de la boîte de Kirchhoff : 1. Tube de cuivre de circulation d'eau, 2. échangeur thermique (block à ailettes), 3. Plaque en cuivre, 4. Élément chauffant par résistance électrique.

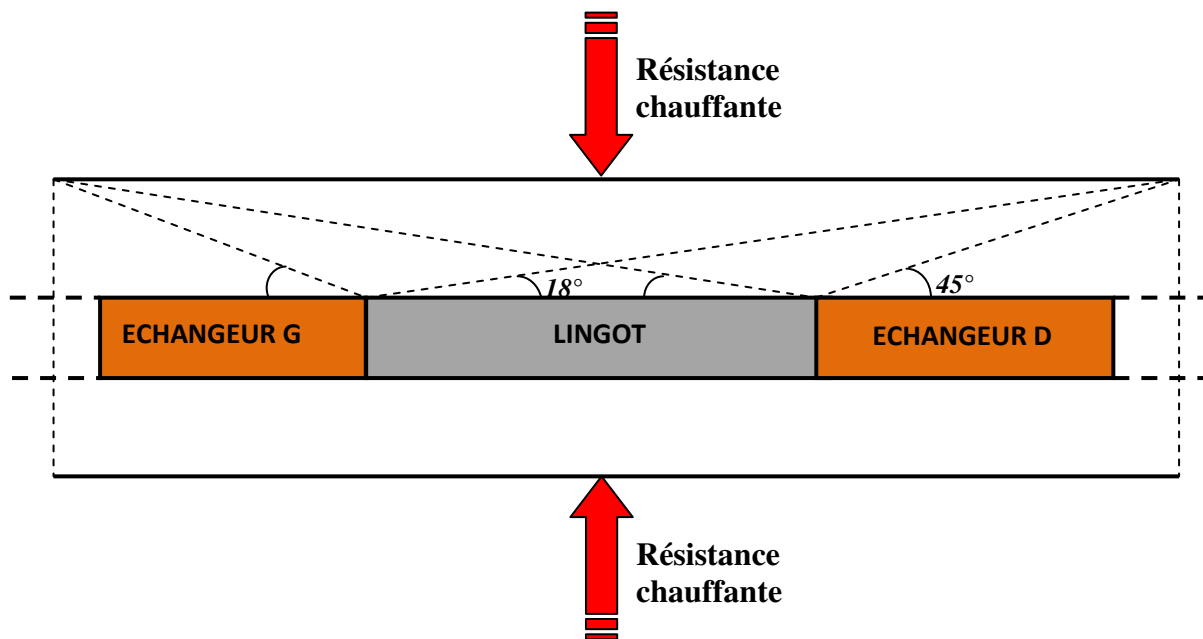


Figure III.17. Boîte de Kirchhoff (coupe médiane vue de dessus).

III.7. BRASSEUR ELECTROMAGNETIQUE

Le brassage électromagnétique à basse fréquence est considéré comme un outil efficace pour contrôler le processus de la solidification des alliages métalliques. Nous avons déjà montré dans le deuxième chapitre, qu'un champ magnétique glissant (TMF), peut

significativement influencer, le transfert de chaleur et de masse, la croissance dendritique, la diffusion solutale et la configuration de la convection.

Le brasseur électromagnétique utilisé dans l'installation expérimentale AFRODITE (voir figure III.18), est un inducteur linéaire (référence technique TL12), situé à 5mm au-dessous de la base du creuset. Il mesure 24,4cm de longueur, 8,6cm de largeur et 3cm de hauteur.

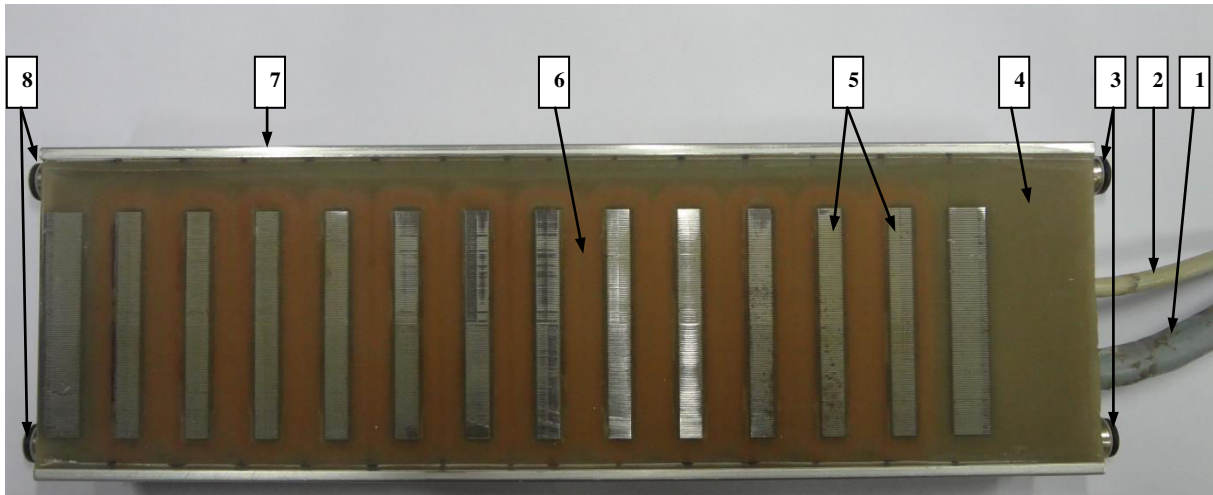


Figure III.18. Moteur linéaire à champ glissant (TL12): 1. Alimentation électrique (triphase), 2. Thermocouple de protection, 3. Entrée de l'eau de refroidissement, 4. Résine, 5. Culasse magnétique (encoches en acier), 6. Bobine électrique, 7. Couvercle, 8. Sortie de l'eau de refroidissement.

Ce genre de brasseur, présente une contrainte technique qui réside dans la température limite d'utilisation. En effet, la température maximale de son entourage ne doit pas dépasser 40°C. Pour vaincre cette contrainte on a utilisé un étui isolant (voir figure III.19), composé d'un tissu réfractaire (type aérogel) contenant une poudre isolante ($\lambda = 0,023 \text{ W/m. } ^\circ\text{C}$).



Figure III.19. Le Moteur linéaire revêtu par son étui isolant.

III.8. LA CIRCULATION DE L'EAU DE REFROIDISSEMENT

Ce circuit assure l'extraction de la chaleur du dispositif durant la solidification. En effet, ces connexions doivent être sérieusement surveillées d'un point de vue thermique afin que les gradients de température parasites ne faussent pas les signaux mesurés.

Le schéma général est visible figure (III.20). Le contrôle thermique des connexions se fait par de l'eau en circuit fermé : une pompe assure le mouvement, un échangeur contrôlé par un PID (par l'intermédiaire d'une sonde *PT100*) assure le maintien de la température à une consigne donnée (25°C). Un refroidisseur permet d'évacuer la chaleur accumulée lors du passage dans les différents éléments du dispositif. Une telle régulation à 25°C permet d'éviter les problèmes de condensation sur les tuyaux (la condensation est un changement de phase entraînant des pertes d'énergie considérables). De plus, les différents tuyaux d'arrivée d'eau ont été isolés.

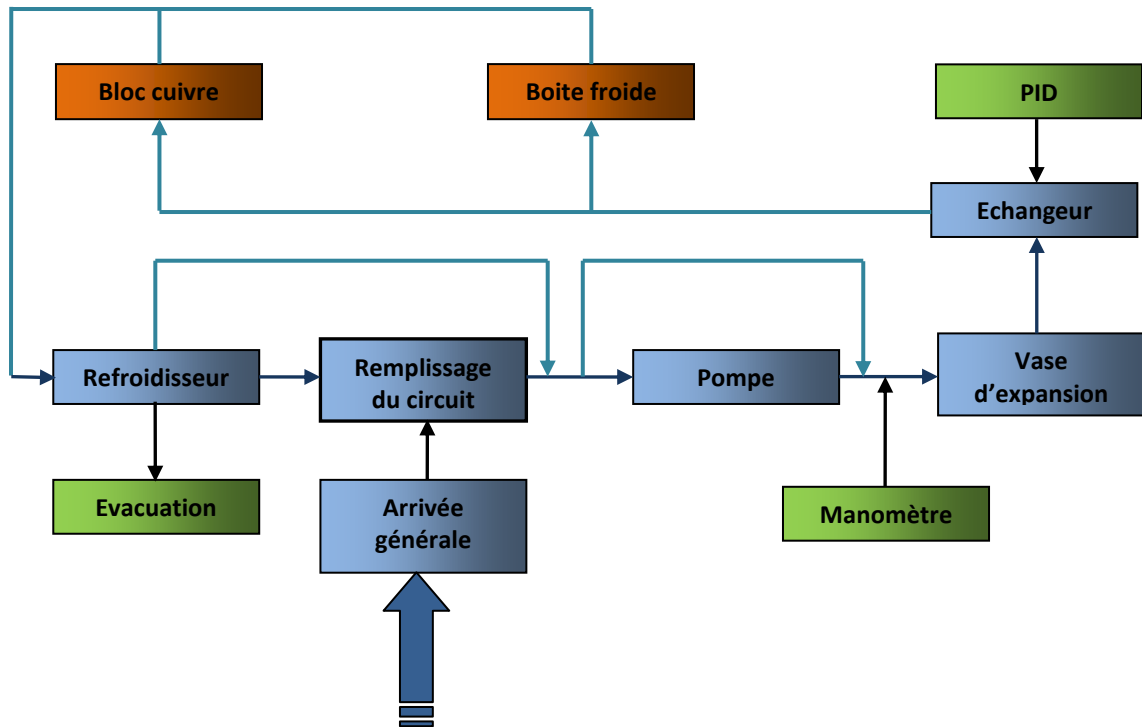


Figure III.20. Schéma descriptif du circuit d'eau thermostatée.

III.9. LA CHAÎNE D'ACQUISITION

La chaîne de mesure principale part des thermocouples se situant sur l'échantillon jusqu'à l'ordinateur chargé de recueillir les données. Une deuxième chaîne de mesure part du cœur du refroidisseur vers le système d'acquisition (cf. figure III.21).

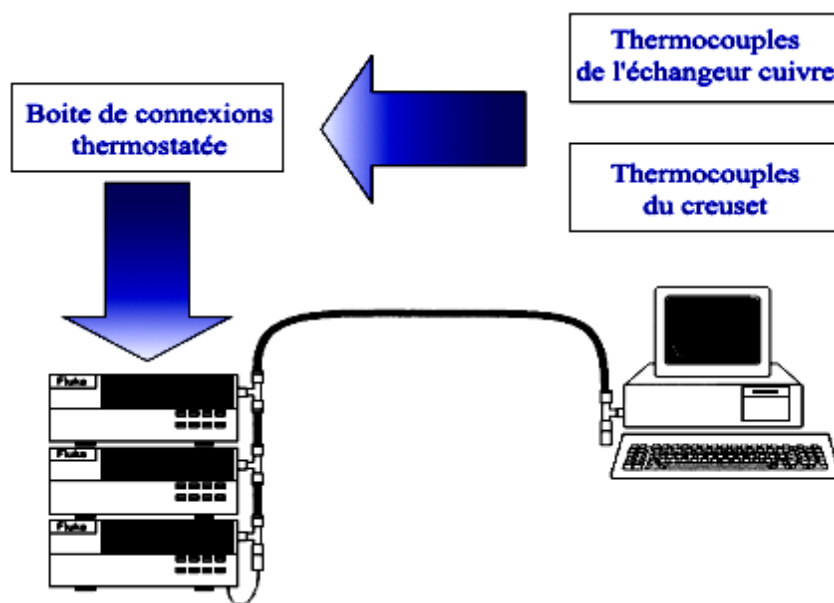


Figure III.21. Schéma descriptif de la chaîne de mesure.

III.10. CONCLUSION PARTIELLE

L'ensemble du dispositif expérimental a été présenté et décrit. Nous avons soulevé les différentes problématiques et contraintes techniques rencontrées lors de la conception de cette installation. Des réponses et des solutions techniques ont été apportées. Certaines limites apparaissent d'ores et déjà, notamment, l'éventuelle apparition des résistances thermiques aux interfaces de contact entre l'échantillon et les deux échangeurs thermiques due au rétrécissement de l'échantillon lorsque celui-ci se solidifie, les compensations des pertes thermiques par rayonnement, et l'interaction chimique entre le cuivre et l'étain.

La description des principes et des solutions techniques a été faite de la manière la plus détaillée possible pour permettre la réutilisation du dispositif et son perfectionnement.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE III

- [1] D. J. Hebditch, « *Segregation in Castings* », Ph.D. Thesis, Département de Métallurgie, Université d'Oxford, 1973
- [2] D.J. Hebditch et J. D. Hunt, “*Observations of Ingot*” *Macrosegregation on Model Systems*”, Metall. Trans., Vol. 5, (1974), p. 1557-1564.
- [3] N. Ahmad, H. Combeau, J.-L. Desbiolles, T. Jalanti, G. Lesoult, J. Rappaz, M. Rappaz et C. Stomp, “*Numerical Simulation of Macrosegregation: A Comparison between Finite Volume Method and Finite Element Method Predictions and a Confrontation with Experiments*”, Metall. Mater. Trans. A, Vol. 29, (1998), p. 617-630.
- [4] T. Jalanti, « *Etude et modélisation de la macroségrégation dans la coulée semicontinue des alliages d'aluminium* », Thèse n° 2145, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse, 2000
- [5] G. Quillet, A. Ciobanas, P. Lehmann, Y. Fautrelle, “*A benchmark solidification experiment on an Sn–10%wtBi alloy*”. International Journal of heat and mass transfer, V. 50, (2007) p. 654–666.
- [6] X. D. Wang, P. Petitpas, C. Garnier, J P. Paulin, Y. Fautrelle, “*A quasi two-dimensional benchmark experiment for the solidification of a tin–lead binary alloy*”. International Journal of heat and mass transfer, C. R. Mécanique V 335 (2007), p 336–341.
- [7] X. d. Wang, Y. Fautrelle, “*An investigation of the influence of natural convection on tin solidification using a quasi-two dimensional experimental benchmark*”, International Journal of Heat and Mass Transfer V 52 (2009), p. 5624–5633
- [8] X. D. Wang, R. Moreau, J. Etay, and Y. Fautrelle, “*A Periodically Reversed Flow Driven by a Modulated Traveling Magnetic Field: Part I: Experiments with Ga-In-Sn*. MET. MAT. TRANS. B V 48, (2009), p. 82-90.
- [9] X. D. Wang, R. Moreau, J. Etay, and Y. Fautrelle, “*A Periodically Reversed Flow Driven by a Modulated Traveling Magnetic Field: Part II. Theoretical Model*”. MET. MAT. TRANS. B V 48, (2009), p. 104-113.
- [10] M. Bellet, H. Combeau, Y. Fautrelle, D. Gobin, M. Rady, E. Arquis, O. Budenkova, B. Dussoubs, Y. Duterrail, A. Kumar, C.A. Gandin, B. Goyeau, S. Mosbah, M. Zaloznik, “*Call for contributions to a numerical benchmark problem for 2D columnar solidification of binary alloys*”, International Journal of Thermal sciences. V 48 (2009) 2013–2016.
- [11] S. Ganina, V. Ginkin, O. Budenkova, B. Saadi, L. Hachani and Y. Fautrelle, “*Comparison of Two Models for Simulation of Binary Alloy Solidification*”, Defect and Diffusion Forum V. 326-328 (2012), p. 599-604.

- [12] R. Boussaa, O. Budenkova, L. Hachani, X-D. Wang, B. Saadi, K. Zaidat, H. BenHadid and Y. Fautrelle, “*2D and 3D Numerical Modeling of Solidification Benchmark of Sn-3Pb (%wt.) Alloy under Natural Convection*”, CFD Modeling and Simulation in Materials (TMS) 2012.
- [13] Thèse de Ghislain QUILLET « *Influence de la convection, naturelle ou forcée, sur l'apparition des mésoségrégations lors de la solidification des alliages métalliques* », Université de Grenoble INP, 2003.
- [14] A. M. Bianchi, Y. Fautrelle et J. Etay. Livre « *transfert thermique* », Agence universitaire francophonie, presses polytechniques et universitaires romandes.
- [15] T. Carozzani, C. A. Gandin, H. Dignonnet, M. Bellet, K. Zaidat, and Y. Fautrelle. « *Direct Simulation of a Solidification Benchmark Experiment* », Met. Mat. Trans. A, (2012)

CHAPITRE IV

SOLIDIFICATION SOUS L'EFFET DE LA CONVECTION THERMO- SOLUTALE

Ce chapitre est consacré à l'exploitation et le traitement numérique des résultats obtenus à partir des diverses expériences de solidification sous l'effet de la convection thermosolutale, réalisées avec le dispositif expérimental *AFRODITE*, décrit dans le chapitre III. L'ensemble des expériences exploitées dans ce chapitre sont présentées dans l'annexe (II). L'organisation de ce chapitre comprend deux parties essentielles. Premièrement, nous procéderons à une vérification des hypothèses de base considérées dans la partie descriptive de l'installation afin de vérifier si notre système répond aux objectifs envisagés. Cela permettra de confirmer ou de nuancer certaines hypothèses faites sur le système expérimental et de tester partiellement sa validité. Dans la deuxième partie, les résultats des mesures seront présentés dans leur ensemble, tant pour l'étain pur que pour un alliage étain-plomb de différentes concentrations massique et en fonction des deux paramètres expérimentaux principaux : gradient de température et vitesse de refroidissement.

IV.1. PROCESSUS EXPERIMENTAL

Le processus expérimental se compose de cinq étapes essentielles présentées sur la figure (IV.1). Le contrôle du processus s'effectue à travers des consignes imposées sur le thermocouple *FL3* de l'échangeur gauche et le thermocouple *FR3* de l'échangeur droit à l'aide d'un système de régulation automatique PID (*proportionnel intégral dérivé*), qui contrôle la puissance électrique émise par le fil de résistance de chaque échangeur.

IV.1.1. Etape 1 : La fusion de la charge

Pour la majorité des expériences, l'état initial correspond au lingot solide à 25°C . Une première rampe de température est appliquée sur les surfaces d'échanges entre le lingot et les deux échangeurs, à une vitesse de chauffage d'environ $0,052\text{K/s}$. Cette première rampe est suivie par un palier à la température 140°C pendant 15mn , puis une deuxième rampe d'une vitesse de fusion différente selon le cas traité. Notons que pour la plupart des expériences réalisées cette rampe de fusion est égale à la vitesse de refroidissement ($CR = 0,03\text{K/s}$). La température finale de cette étape est de 260°C pour les alliages étain-plomb et 300°C pour l'étain pur (barrière thermique de fusion des corps purs).

Les durées de temps pour cette première étape pour les cas de solidification à des vitesses de refroidissement de $0,02$, $0,03$ et $0,04\text{K/s}$ sont respectivement $2\text{h } 40\text{mn}$, $2\text{h } 6\text{mn } 4\text{s}$, et $1\text{h } 50\text{mn}$, respectivement.

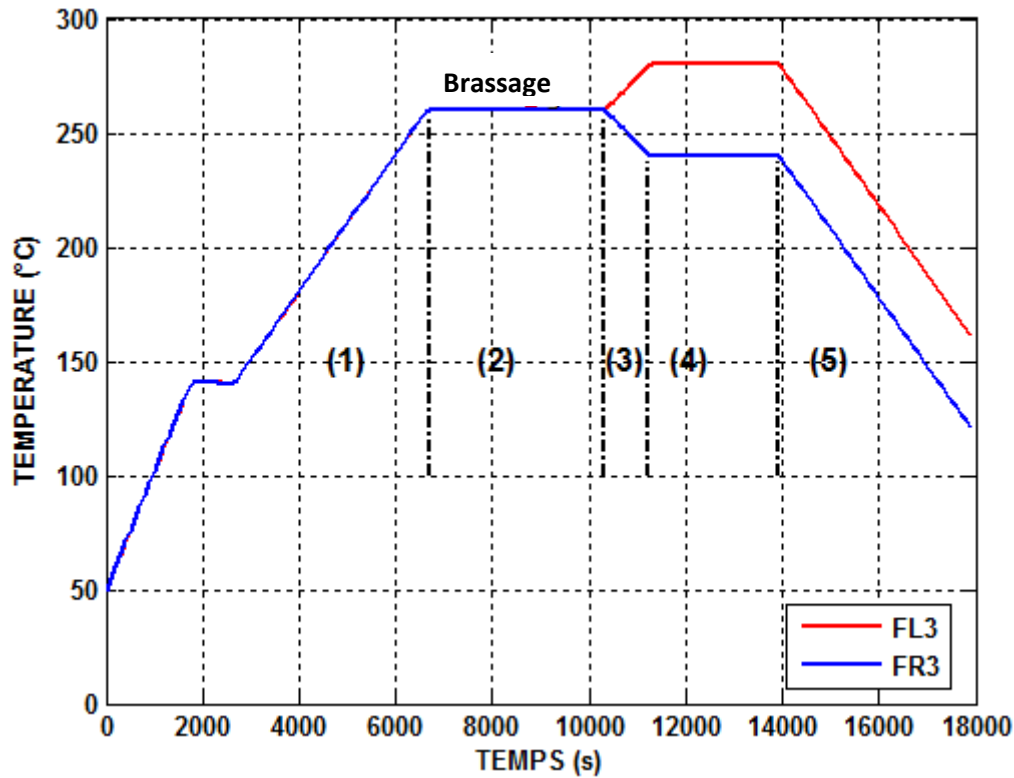


Figure. IV.1. Processus expérimental pour une différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$ et une vitesse de refroidissement $CR = 0,03K / s$. Les cinq étapes sont illustrées: (1) la fusion, (2) première étape de stabilisation thermique, (3) Application de la différence de température entre les deux parois d'échangeur, (4) la deuxième étape de stabilisation du champ de température et (5) la solidification.

IV.1.2. Etape 2 : Première étape de stabilisation

Dans cette étape les températures des deux échangeurs de chaleur sont maintenues pendant *1h 20min* à la température $260^{\circ}C$ pour toutes les expériences réalisées sur l'alliage étain-plomb, et $300^{\circ}C$ pour celles réalisées sur l'étain pur. Au cours de cette étape, un brassage électromagnétique est appliqué à l'aide d'un moteur linéaire placé à une distance de *5mm* sous le creuset et qui sert à générer un champ magnétique glissant. Le brassage a un double effet, en premier lieu avoir un état thermique stationnaire (stabilisation thermique du lingot) et deuxièmement l'homogénéisation de la concentration en élément de soluté dans le cas des alliages.

IV.1.3. Etape 3 : Application d'une différence de température moyenne

La différence de température expérimentale moyenne (ΔT), est appliquée entre les deux surfaces d'échange thermique, à l'aide du système PID qui pilote les consignes imposées sur les deux thermocouples pilotes, $FL3$ et $FR3$. Par exemple, pour une différence de température de $40K$, une augmentation de la température de $260^{\circ}C$ à $280^{\circ}C$ est imposée sur le thermocouple $FL3$ (coté chaud) et une diminution de $260^{\circ}C$ jusqu'à $240^{\circ}C$ sur le thermocouple $FR3$ (coté froid). Dans toutes les expériences réalisées la durée de l'application de cette différence de température est $15mn$. Il est très important de noter que cette dernière représente l'étape qui distingue les deux modes de solidification naturelle ou forcée, car dans le cas de la solidification sous l'effet de la convection naturelle (thermosolutale) le brassage électromagnétique s'arrête au début de cette étape, par contre pour le cas de la solidification sous l'effet de la convection forcée le brassage est maintenu jusqu'à la fin du processus expérimental.

IV.1.4. Etape 4 : Deuxième étape de stabilisation

Après avoir appliqué la différence de température expérimentale (ΔT), entre les deux échangeurs thermiques, une deuxième étape de stabilisation est imposée pendant $45mn$. Au cours de cette étape les deux températures des thermocouples $FL3$ et $FR3$, sont maintenues constantes ($FL3 = 280^{\circ}C$ et $FR3 = 240^{\circ}C$), afin de permettre à la convection de bien s'établir. La déformation des lignes des isothermes donne des indications sur la configuration de l'écoulement générée par la convection naturelle.

IV.1.5. Etape 5 : Solidification

La dernière étape concerne l'étape de refroidissement ou de solidification. La même vitesse de diminution de température est imposée sur les deux échangeurs à travers le contrôle de la température des deux thermocouples $FL3$ et $FR3$, dans le but d'avoir une solidification sous une différence de température constante. Notons que dans toutes les expériences de solidification réalisées, l'extraction de la chaleur se fait par le côté droit. Cependant, au cours de la solidification sous une vitesse de refroidissement très lente (par exemple $CR = 0,02K/s$), l'échange de chaleur à travers l'échangeur droit est insuffisant pour extraire la quantité de chaleur dégagée par le liquide et la chaleur latente dégagée par les couches solides formées, dans ce cas, le système de régulation fait intervenir le deuxième échangeur du côté gauche et

l'extraction se fait par les deux cotés tout en gardant une différence de température constante.

IV.2. ANALYSE GLOBALE DES CONDITIONS EXPERIMENTALES

Les études menées dans cette partie consistent à vérifier la conservation de notre système thermique, notamment la nature adiabatique du creuset et le comportement des isothermes entre le lingot à solidifier et les deux échangeurs de chaleur, par la suite il sera précisé comment déterminer les cartes de température (autrement que par la simple définition théorique du refroidissement) et les méthodes d'estimation du flux extrait seront présentées.

IV.2.1. Configuration des mesures de température effectuées

Les cartes de température représentent une part très importante des mesures effectuées. Ces mesures s'effectuent en temps réel et de manière non destructive (au contraire des analyses de concentration par exemple). Elles ont eu lieu sur de l'étain pur ainsi que sur l'alliage étain-plomb. Elles permettent de tester la répétabilité des expérimentations en utilisant les mêmes conditions expérimentales de solidification. L'étain permet en effet, de par son palier de solidification, de positionner les mesures des thermocouples par rapport à la température de fusion de l'étain. De plus, il permet de faire des cycles de fusion/solidification, ce que n'autorise pas l'alliage de par la présence de ségrégations après le processus de solidification. Les thermocouples seront repérés et numérotés conformément à la configuration discernée dans la figure (IV.2), et ceci pour l'ensemble des mesures qui seront présentées.

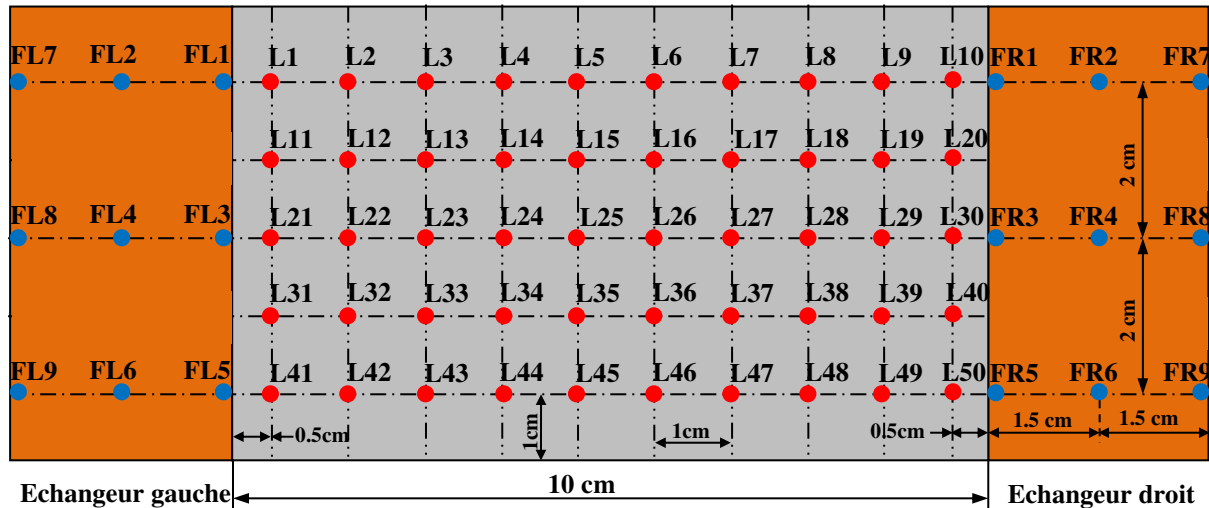
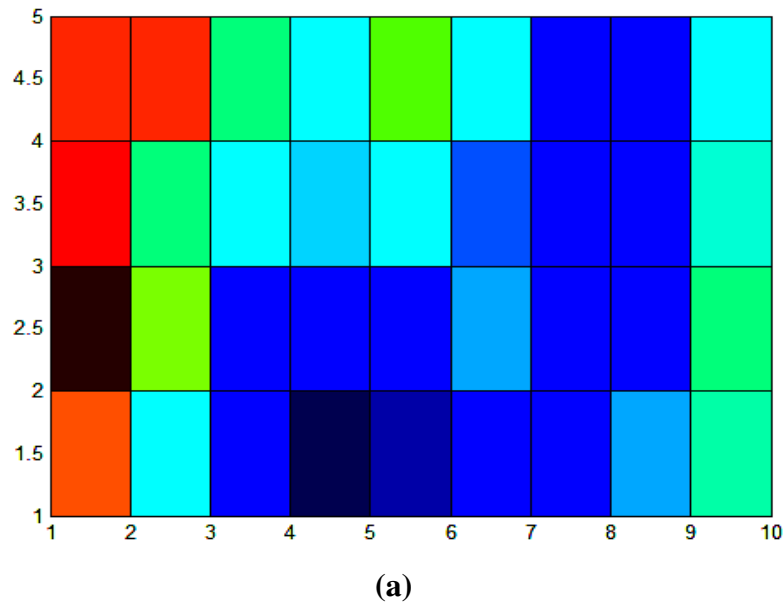


Figure IV.2. Schéma illustratif de la répartition de l'ensemble des thermocouples (L1 à L50) soudés sur l'une des plus grandes surfaces du creuset, les thermocouples (FL1 à FL9) de l'échangeur gauche et (FR1 à FR9) pour l'échangeur droit.

IV.2.2. Etalonnage des thermocouples.

Les cartes de température obtenues à partir des mesures instantanées du champ de température, présentées sur la figure (IV.3), montrent qu'avec l'utilisation de la boîte de compensation (*boîte de Kirchhoff*), au cours de la première phase de stabilisation l'écart entre le point le plus chaud et le point le plus froid à l'état liquide est inférieur à trois degrés ($(T_{max} - T_{min}) < 3^{\circ}\text{C}$). Cette configuration de température est stable (moyennant les légères fluctuations thermiques) à travers le temps ce qui signifie que nous sommes à l'équilibre thermique. Cette carte n'est pas stratifiée ce qui montre que nous sommes dans une situation de conditions adiabatiques et non pas une situation d'équilibre entre deux extrémités à deux températures différentes. Cette situation d'équilibre permet d'apporter des corrections sur les mesures de chaque thermocouple. En effet, les thermocouples utilisés sont de type K avec une tolérance donnée par le constructeur de $\pm 2,5^{\circ}\text{C}$ dans la gamme de température $-40/+330^{\circ}\text{C}$. Cela signifie qu'une température mesurée par un thermocouple est considérée comme correcte (en valeur absolue), lorsqu'elle se situe à moins de 2,5K de différence de la température de référence à mesurer. La correction se fait pour s'aligner sur la température théorique supposée du lingot liquide (257°C par exemple) car toutes les mesures sont relatives. Cet écart peut être considéré comme constant au long d'une même expérience. En revanche au cours du temps, il est nécessaire de recalibrer au début de chaque expérience pour tenir compte au mieux du

vieillessement, de la dérive et de la maturation du thermocouple et de l'environnement expérimental.



$$\left\{ \begin{array}{cccccccccc} 256.8 & 256.3 & 256.0 & 256.3 & 255.9 & 256.8 & 256.2 & 256.6 & 256.2 & 255.9 \\ 256.8 & 256.9 & 257.1 & 256.6 & 257.1 & 256.9 & 256.5 & 256.2 & 256.2 & 256.1 \\ 257.2 & 257.1 & 257.6 & 256.9 & 257.3 & 257.0 & 256.7 & 256.3 & 256.4 & 256.6 \\ 258.7 & 257.1 & 257.0 & 257.0 & 256.8 & 256.8 & 256.3 & 256.6 & 256.2 & 256.1 \\ 257.6 & 257.3 & 256.9 & 256.9 & 257.3 & 256.4 & 256.5 & 256.6 & 256.3 & 256.0 \end{array} \right\}$$

$$[T_{max} = 258,7^{\circ}\text{C} ; T_{min} = 255.9^{\circ}\text{C}, T_{moy} = 256.7^{\circ}\text{C}]$$

Figure IV.3. Exemple de carte de température (a) ; Valeurs numérique brutes à l'instant 9500 s (b). Expérience : Sn-3wt.%Pb (Réf L1) ; $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03 \text{ K/s}$

Cela nous donne, à titre d'exemple la matrice de correction suivante pour un alignement sur 257°C :

$$\left\{ \begin{array}{cccccccccc} +0.2 & +0.7 & +1.0 & +0.7 & +1.1 & +0.2 & +0.8 & +0.4 & +0.8 & +1.1 \\ +0.2 & +0.1 & -0.1 & 0.4 & -0.1 & +0.1 & +0.5 & +0.8 & +0.8 & +0.9 \\ -0.2 & -0.1 & -0.6 & +0.1 & -0.3 & +0 & +0.3 & +0.7 & +0.6 & +0.4 \\ -1.7 & -0.1 & +0 & +0 & +0.2 & +0.2 & +0.7 & +0.4 & +0.8 & +0.9 \\ -0.6 & -0.3 & +0.1 & +0.1 & -0.3 & +0.6 & +0.5 & +0.4 & +0.7 & +1.0 \end{array} \right\}$$

Cet alignement est réalisé sur la température moyenne des thermocouples afin de s'affranchir de l'influence des fluctuations thermiques lors de l'établissement de la matrice de correction.

IV.2.3. Evolution des isothermes au niveau des parois des échangeurs en cuivre

Une étude thermique des échangeurs et de l'échantillon réalisée sous ANSYS (dans des conditions théoriques presque similaires aux conditions expérimentales), montre que les isothermes dans les deux échangeurs en cuivre, à proximité de la paroi d'échange, sont quasiment des plans parallèles à cette paroi (figure IV.4). L'écart de température entre la partie inférieure et supérieure de la paroi est inférieur au dixième de degré ($< 0,1K$) à consigne de température constante.

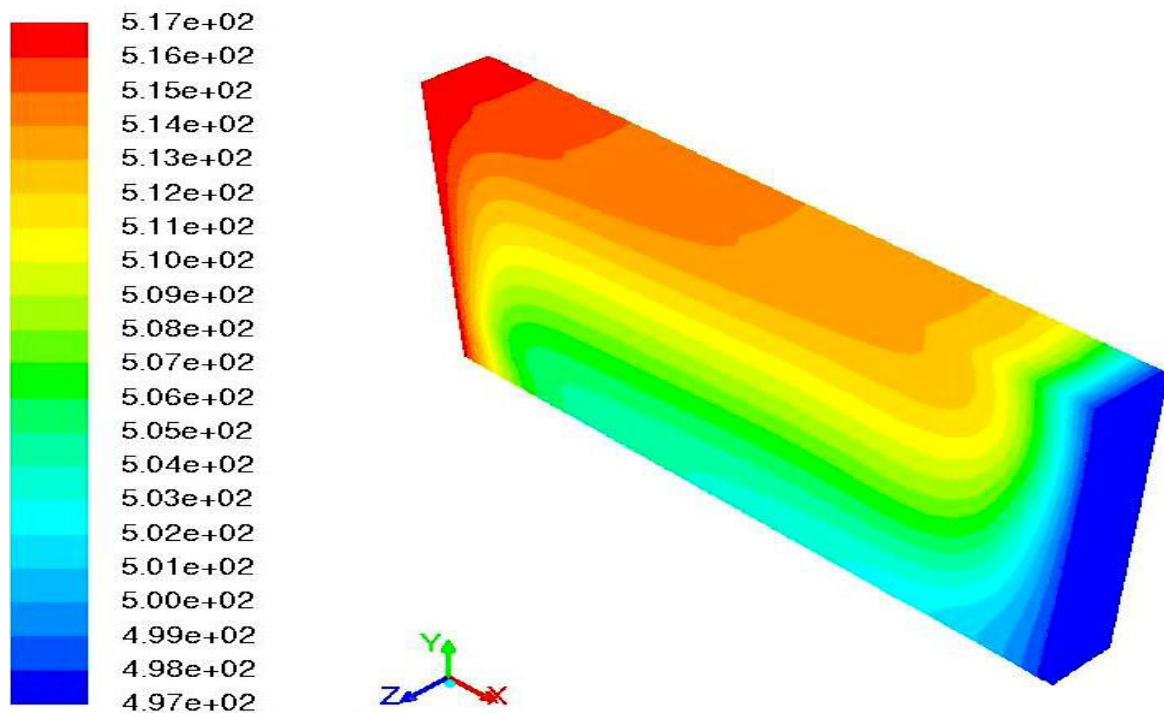


Figure IV.4. Evolution 3D de la thermique à l'instant (161 s), obtenue par la simulation numérique sous Fluent (ANSYS) pour le cas de la solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb sous l'effet de la convection thermosolutale. $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03 K/s$

La référence expérimentale de la consigne de chaque échangeur (FL3 et FR3) se situe au milieu de la paroi. Ses extrémités se situent à trois centimètres de ce point de référence, ce qui représente au plus un temps caractéristique de diffusion de huit secondes, soit

$$\tau_D = \frac{H^2}{\alpha} \approx 8 \text{ secondes} \quad (IV.1)$$

où : H est la demi-hauteur de l'échangeur en cuivre ($H = 3cm$) et α est la diffusivité thermique du cuivre ($\alpha = 1.1 \times 10^{-4} m^2.s^{-1}$)

En pratique, le déplacement des isothermes à l'intérieur de la charge suit une direction horizontale et non pas verticale. L'exploitation numérique des résultats expérimentaux a

permis le suivi du déplacement horizontal des isothermes (quasi verticales), et elle montre que le temps de diffusion est d'environ cent quatre-vingt secondes (180s) pour une distance de un centimètre. Par comparaison avec la vitesse de refroidissement imposée (0,03 degrés par seconde) qui donne des temps de solidification de vingt-cinq minutes (25mn), cela ne met pas en défaut l'hypothèse de paroi d'échange isotherme. Il est important de noter que la conductivité thermique de l'échangeur en cuivre est six fois supérieure à celle du lingot en étain ou celle du lingot en étain-plomb.

IV.2.4. Analyse thermique des flux échangés.

La température de chaque paroi est asservie à une consigne par l'intermédiaire d'un PID. Sa température peut donc être déduite. Il est possible d'estimer la température de la paroi en fonction du temps grâce aux mesures effectuées par les neuf thermocouples situés dans l'échangeur cuivre. L'extrapolation de ces mesures permet de déterminer approximativement la température de la paroi. Il est à noter que le premier thermocouple de mesure dans chaque échangeur cuivre se situe à 5 dixièmes de millimètres de la paroi d'échange ce qui donne un temps de diffusion très négligeable devant le temps d'acquisition lors des expériences de solidification qui vaut une seconde. Il n'est donc pas pertinent de rechercher des phénomènes plus rapides car ils seront tous « filtrés » par l'acquisition. C'est pour cette raison que nous nous contenterons d'une extrapolation basée sur la méthode de l'élément quadratique complet (éléments finis), qui nous permet d'estimer les flux thermiques échangés. Le développement de la méthode utilisée, est présenté dans l'annexe II (Annexe II.2), et les équations d'estimation des flux échangés dans les deux cotés gauche et droit, sont présentées dans les équations (IV.1) et (IV.2).

- Flux thermique du côté droit

$$\begin{aligned} \phi_R(t) = \frac{\lambda.s}{h_\xi} \left(-\frac{FR1(t)}{2} + \frac{2}{3}FR2(t) - 2FR3(t) + \frac{8}{3}FR4(t) - \frac{1}{2}FR5(t) + \frac{2}{3}FR6(t) - \right. \\ \left. \frac{1}{6}FR7(t) - \frac{2}{3}FR8(t) - \frac{1}{6}FR9(t) \right) \end{aligned} \quad (IV.1)$$

- Flux thermique du côté gauche

$$\begin{aligned} \phi_L(t) = \frac{\lambda.s}{h_\xi} \left(\frac{FL1(t)}{2} - \frac{2}{3}FL2(t) + 2FL3(t) - \frac{8}{3}FL4(t) + \frac{1}{2}FL5(t) - \frac{2}{3}FL6(t) + \right. \\ \left. \frac{1}{6}FL7(t) + \frac{2}{3}FL8(t) + \frac{1}{6}FL9(t) \right) \end{aligned} \quad (IV.2)$$

où, λ_{Cu} est la conductivité thermique du cuivre ($\lambda_{Cu} = 386 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$), S la surface d'échange thermique ($S = 6 \times 10^{-4} \text{ m}^2$), et h_z le pas selon la direction horizontale ($h_z = 15 \text{ mm}$). ($FL1, FL2, \dots, FL9$) et ($FR1, FR2, \dots, FR9$), sont les thermocouples de l'échangeur gauche et droit respectivement.

IV.2.5. Différence de température effective

Dans le but d'estimer la différence de température effective appliquée réellement sur le lingot, une extrapolation des températures aux interfaces d'échange entre le lingot et le deux échangeurs s'avère importante. Ces températures représentent les conditions aux limites thermiques pour les travaux de simulations numériques. Le calcul est basé sur le principe de conservation du flux thermique échangé de chaque côté, exprimé par les équations (IV.3) et (IV.4) :

$$\lambda_{lingot}(T_{interface\ left} - T_{21})/e = \varphi_L \quad (IV.3)$$

$$\lambda_{lingot}(T_{30} - T_{interface\ right})/e = \varphi_R \quad (IV.4)$$

où, λ_{lingot} est la conductivité thermique du lingot, $e = 5 \text{ mm}$, est la distance entre les interfaces verticales d'échanges et les thermocouples les plus proches ($L21$ pour le côté gauche et $L30$ pour le côté droit).

Le calcul montre qu'il y a une différence entre les températures mesurées par les thermocouples $FL3$ et $FR3$ (partiellement en contact avec l'échantillon) et les températures extrapolées ($T_{Interface_Left}$, $T_{Interface_Right}$) qui peut atteindre 10°C . Cela peut être expliqué par l'existence d'une importante résistance thermique de chaque côté entre l'échangeur et l'échantillon. L'origine de cette dernière est due à:

1. Une mince couche de nitrure de bore est déposée sur les deux surfaces de contact entre le cuivre et l'échantillon afin d'éviter une réaction chimique entre l'échantillon et les deux échangeurs thermiques. Ce qui donne lieu à la création d'une résistance thermique due la faible conductivité thermique de la couche de nitrure de bore.
2. Au cours de l'étape de solidification de l'alliage étain-plomb, un phénomène de retrait a été observé. Le vide créé va être rempli par une poche d'air, ce qui entraîne une résistance thermique supplémentaire.

Notons qu'il est nécessaire de quantifier cette résistance afin d'estimer la différence de température effective appliquée sur la paroi du lingot et déterminer les conditions aux limites thermiques dans les modèles de simulation numérique.

Un calcul par extrapolation des températures aux interfaces d'échanges pour le cas de la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb (*Réf LH33*) sous une différence de température expérimentale moyenne de 40K et une vitesse de refroidissement de 0,03K/s sans aucun brassage, est présenté sur la figure (IV.5). Les courbes des deux températures extrapolées montrent que la différence de température effective est environ 23,5°C, ce qui donne une résistance thermique de 8,25°C de chaque côté.

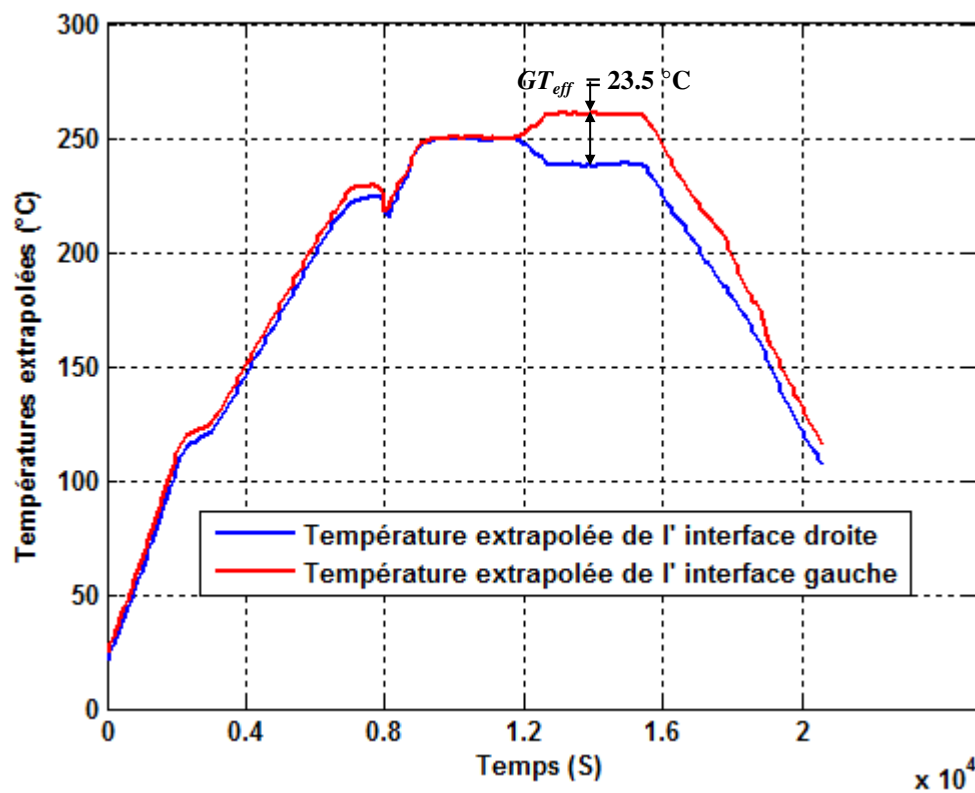


Figure. IV.5. L'évolution temporelle des températures extrapolées au cours de la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Différence de température effective $\Delta T \approx 23,5$ K, la vitesse de refroidissement est $CR = 0,03$ K/s.

IV.2.6. Vérification du comportement adiabatique du système

Une deuxième méthode (indirecte) est accessible. Elle découle d'une approximation du bilan thermique sur le lingot (en considérant les faces comme adiabatiques, conformément à notre configuration théorique).

$$mC_p \frac{dT}{dt} = P_{extraite} + \rho L \frac{\partial f_s}{\partial t} + \text{fuites éventuelles} \quad (IV.5)$$

où, m est la masse de l'échantillon $m(\text{Sn}) = 400\text{gr}$, $m(\text{Sn-3wt.\%Pb}) = 410\text{gr}$ et $m(\text{Sn-10wt.\%Pb}) = 470\text{gr}$.

$\bar{T}$: Température moyenne du lingot, elle est calculée en effectuant la moyenne des mesures des cinquante thermocouples.

$$\bar{T}^k = \frac{1}{50} \sum_{i=1}^{50} T_i^k \quad (\text{IV.6})$$

C_p : La capacité calorifique, supposée identique dans le liquide et le solide.

L : chaleur latente (les valeurs numériques sont données dans l'annexe I)

$$P_{\text{extraite}} = \phi_L(\text{échangeur gauche}) - \phi_R(\text{échangeur droit}) \quad (\text{IV.7})$$

Φ_L et Φ_R , flux thermiques échangés par l'échangeur gauche et droit respectivement calculés par la formule (IV.1) et (IV.2)

Pour la détermination de la masse volumique (ρ), Une étude expérimentale par rayon γ , a été réalisée par R.A. Khairulin et S.V. Stankus [7], afin de donner une estimation de l'évolution de la masse volumique pour les alliages étain-plomb. Cette étude révèle que la densité varie avec la température et la concentration dans les gammes de température entre 183 et 767 °C, selon la formule semi-empirique suivante:

$$\rho(C, T) = 7359.5 + 47.6554C - 0.10063C^2 - (0.74284 + 5.8927 \times 10^{-3}C)T \quad (\text{IV.8})$$

C et la concentration atomique du plomb (at %Pb) et T la température en Kelvin.

La fraction du solide dans la zone pâteuse est déterminée par le modèle de Scheil, avec les hypothèses de bases (pas de diffusion solutale, un liquide parfaitement homogène et les lignes de solidus et liquidus ont des pentes constantes).

$$f_s = 1 - \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\frac{1}{k-1}} \quad (\text{IV.9})$$

D'où, la dérivée partielle temporelle de la fraction solide a été développée dans le travail de C.A. Siqueira [8]:

$$\frac{\partial f_s}{\partial t} = \frac{1}{(k-1)(T_m - T_L)} \left(\frac{T_m - T}{T_m - T_L} \right)^{\frac{2-k}{k-1}} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} \quad (\text{IV.10})$$

Toutefois, hors de la zone de solidification (et donc de changement de phase), lorsque le lingot est entièrement liquide ou entièrement solide, il est possible d'utiliser l'expression suivante :

$$(P_{\text{extraite}})_{\text{solide ou liquide}} = m \cdot C_{p_{\text{solide ou liquide}}} \frac{dT}{dt} \quad (\text{IV.11})$$

Au contraire, en dehors de ces zones (zone liquide ou zone solide), cette expression représente l'évolution du stockage de chaleur à l'intérieur du lingot. Un point à vérifier est de savoir si, au niveau de la masse et de la capacité calorifique à prendre en compte, il faut considérer l'échantillon seul ou l'échantillon et son creuset en inox. Cette expression est à comparer avec le flux estimé grâce aux thermocouples situés dans les échangeurs en cuivre. L'avantage de la première méthode est de déterminer le flux extrait, que le lingot soit liquide, pâteux ou solide. En toute rigueur, cette méthode devrait permettre d'accéder à une estimation de la quantité instantanée de chaleur latente rejetée pendant la solidification.

Notons qu'une estimation de l'évolution du stockage de la chaleur dans le lingot sera présentée dans la partie suivante concernant l'exploitation des résultats expérimentaux obtenus à travers le cas de la solidification de l'étain pur sous une différence de température expérimentale nulle ($\Delta T = 0K$) et une vitesse de refroidissement de $0,03K/s$.

IV.3. EXPERIENCES DE SOLIDIFICATION REALISEES SUR L'ETAIN PUR

Deux expériences avec de l'étain pur ont été réalisées (Annexe II tableau II.1). Elles concernent toutes deux une vitesse de $0,03K/s$ pour la fusion et le refroidissement. L'objectif primordial de ces expériences est de vérifier le bon fonctionnement du dispositif expérimental avant de se préoccuper de l'alliage étain-plomb. Notons que ces dernières sont réalisées sous l'effet de la convection naturelle (brassage appliqué seulement durant la première phase d'homogénéisation thermique).

IV.3.1. Résultats pour l'expérience Sn (Réf LH28)

Une expérience de solidification référencée (LH28) a été réalisée sous l'effet de la convection thermosolutale et les conditions expérimentales (différence de température nulle et vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$). Une différence de température nulle ($\Delta T = 0K$) indique que les évolutions temporelles de la température des deux thermocouples pilotes (FL3 et FR3) sont identiques au cours du processus expérimental. Le processus expérimental est indiqué sur la figure (IV.6).

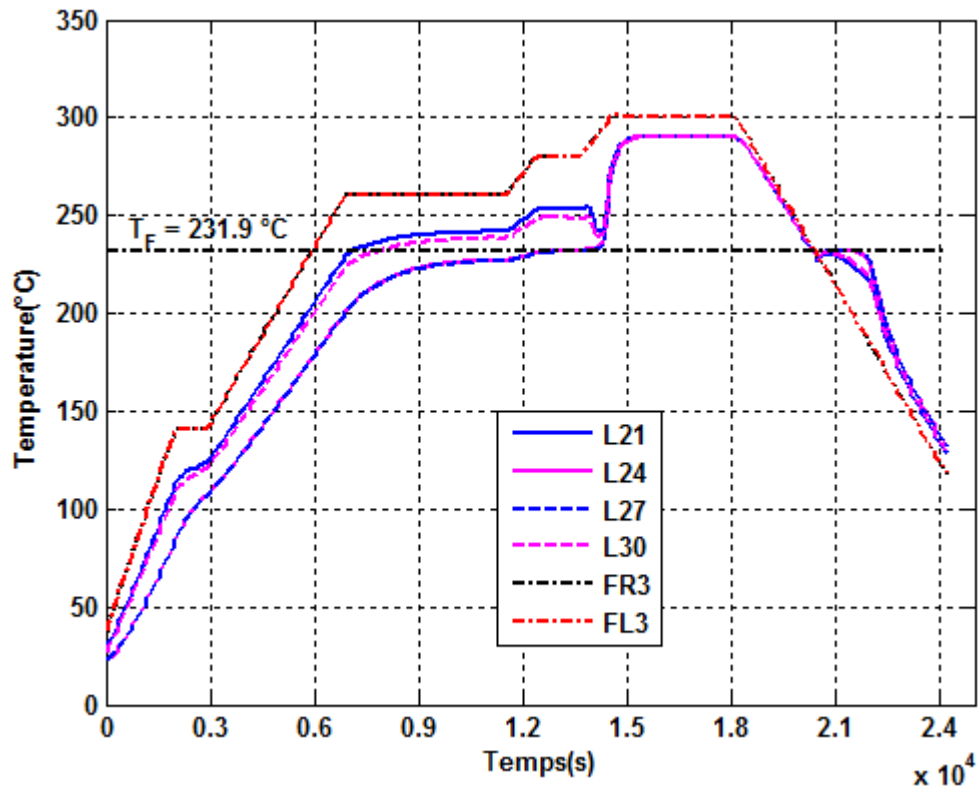


Figure. IV.6. Processus expérimental appliqué pour une expérience de solidification de l'étain pur sous une différence de température appliquée nulle et vitesse de refroidissement ($CR=0,03K/s$). La figure montre également l'évolution temporelle des thermocouples de ligne située à mi-hauteur du lingot (L21, L24, L27 et L30) avec les thermocouples pilotes : FL3 de l'échangeur gauche et FR3 de l'échangeur droit (voir figure IV.7).

Dans cette expérience, les températures les plus élevées correspondent aux températures de la première et la dernière colonne (colonnes les plus proches des parois d'échange thermique), c'est à dire les thermocouples de la colonne (de L1 à L5) du côté gauche et de la colonne (de L10 à L50) du côté droit (figure IV.8). La zone se situant au milieu entre les deux parois de refroidissement se solidifie en rejetant de la chaleur latente (changement de phase). Ce rejet de chaleur infléchit l'évolution temporelle des rangées de thermocouples. Au fur et à mesure que l'étain se solidifie, il rejette de plus en plus de chaleur latente, entraînant l'apparition d'un palier thermique explicite d'environ 1200s pour les mesures des thermocouples les plus éloignés des parois de refroidissement (colonnes 4, 5 et 6), qui à leurs tours présentent une surfusion de presque $6,4^{\circ}C$ c'est-à-dire des températures inférieures à la température de fusion du métal pur (figure IV.9), suivie d'une recalescence. Ces mesures de température permettent de reconstituer des cartes instantanées de température. Les cartes de température présentées auront toujours les mêmes conditions de refroidissement ainsi que les thermogrammes qui les précèdent.

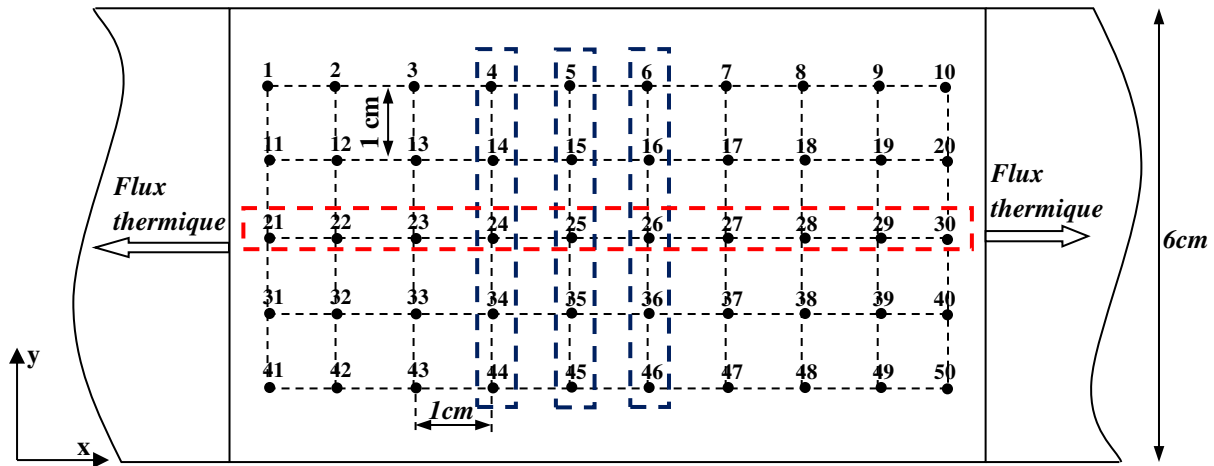


Figure. IV.7. Schéma de l'emplacement des thermocouples, le cadre en ligne rouge discontinue montre la position des thermocouples situés à mi-hauteur (L21-L30), les colonnes 4,5 et 6 sont encadrées par des lignes discontinues bleues.

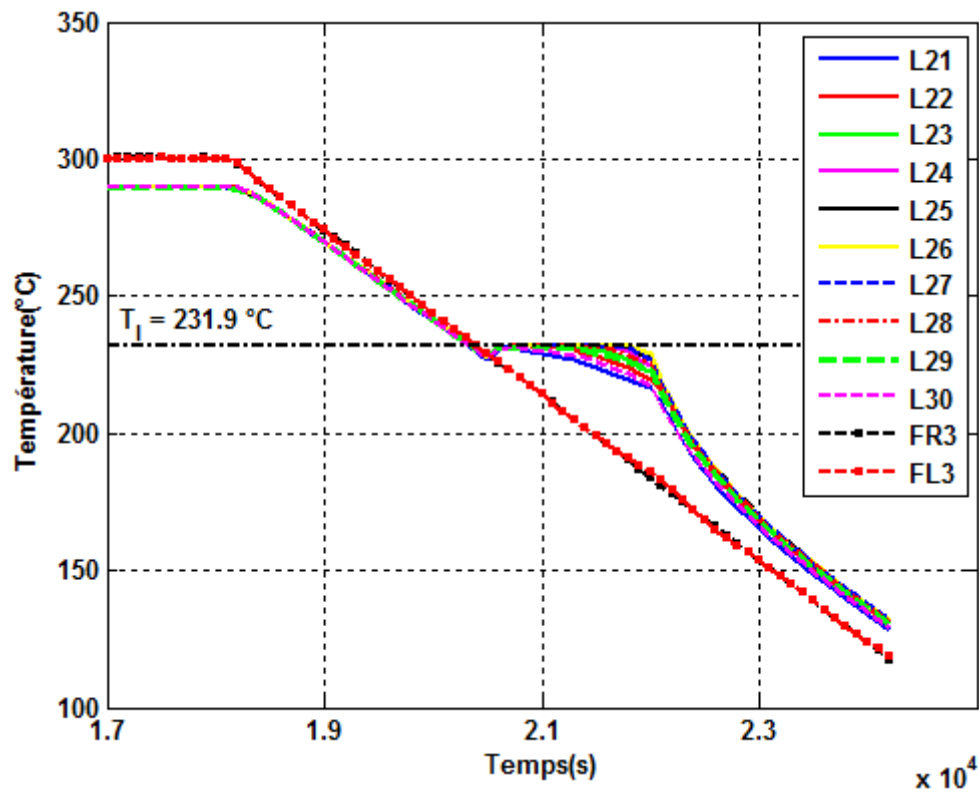


Figure. IV.8. Evolution temporelle des thermocouples de ligne situé à mi-hauteur du lingot (L21-L30) avec les thermocouples pilotes : FL3 de l'échangeur gauche et FR3 de l'échangeur droit. Expérience : Sn (pur), $\Delta T = 0K$; $CR=0,03$ K/s.

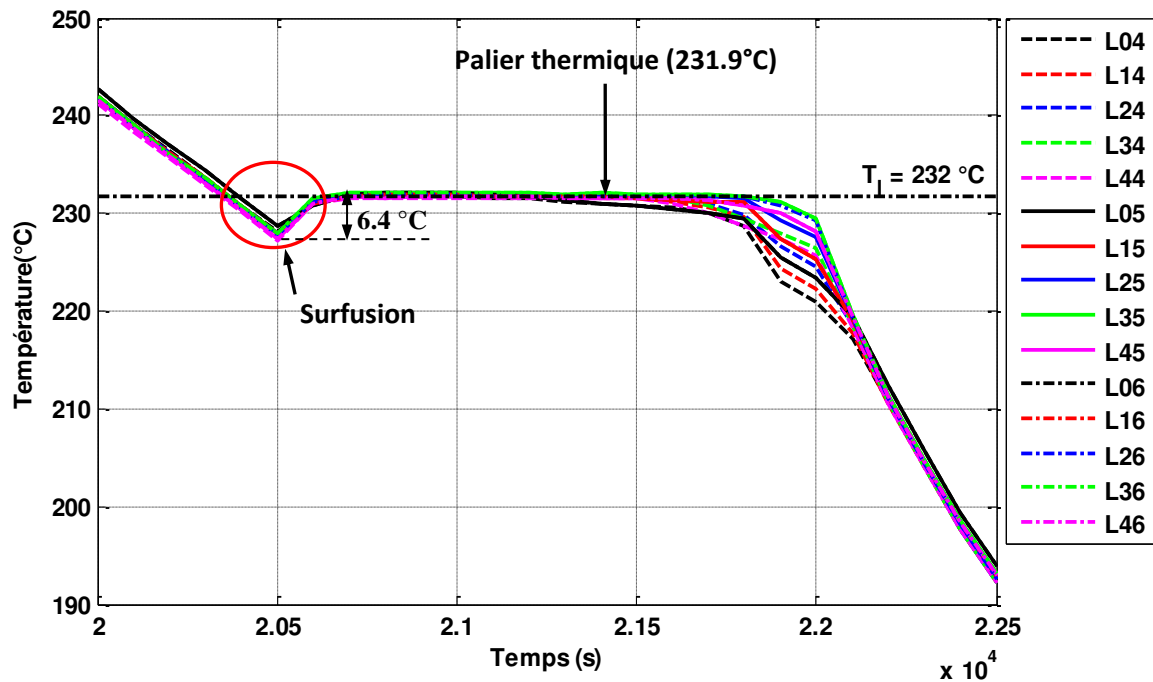


Figure. IV.9. *Evolutions temporelles de trois colonnes de thermocouples : colonne 4 (L4-L44), colonne 5 (L5-L45) et la colonne 6 (L6-L46). Les courbes montrent clairement une surfusion d'environ 6,4°C suivie d'une recalescence et un palier à la température de fusion ($T_F = 231,9^\circ\text{C}$) pour tous les thermocouples. Expérience : Sn (pur), $\Delta T = 0\text{K}$; $CR=0,03\text{ K/s}$.*

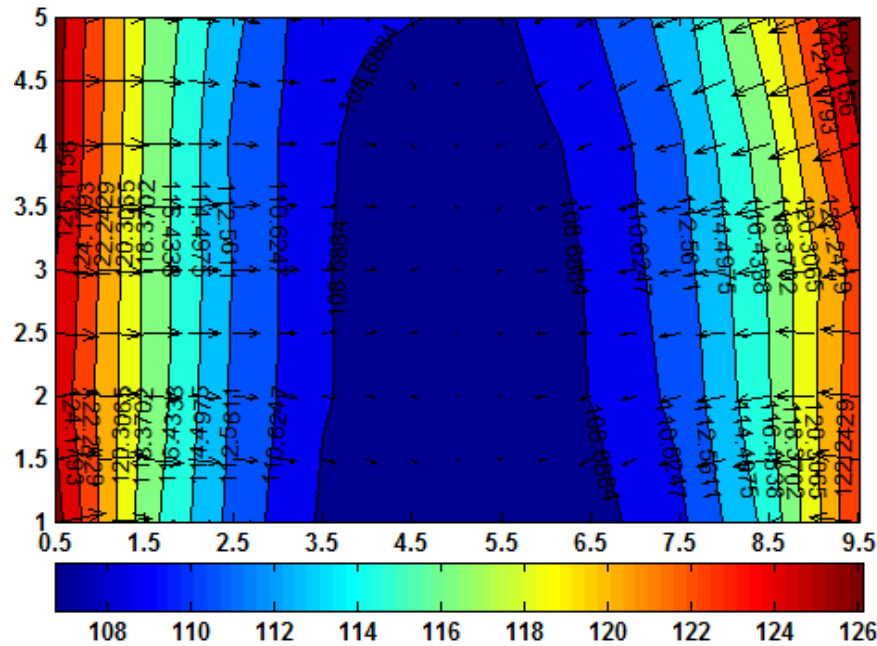
La figure (IV.10) présente les cartes de température de trois phases du lingot de l'étain pur : échauffement, fusion et solidification. Les valeurs numériques correspondantes sont données dans l'annexe dans le tableau (II.2). Les cartes de température couplées aux vecteurs du gradient thermique local, permettent de mettre en évidence une légère inhomogénéité des échanges thermiques qui ont lieu entre les parois d'échange thermique et le lingot solide avant la phase de fusion. Les gradients de température ont été calculés à chaque emplacement du thermocouple à partir de la différence de température entre deux points adjacents à l'aide d'un schéma numérique de différences centrées, donné par la formule (IV.11). La température est quasiment uniforme sur toute l'épaisseur de l'échantillon, ce que confirme la bi-dimensionnalité du processus thermique. Les flèches noires dans l'ensemble des figures correspondent au vecteur $-\vec{\nabla T}$ qui est proportionnel à la densité locale de flux de chaleur. Les vecteurs indiquent clairement le transfert de chaleur à l'intérieur de l'échantillon. Comme prévu, le gradient de température est faible dans la zone du dernier liquide (cf. figure. IV.10.c).

$$\overrightarrow{\nabla T}(i,j,k) = \left(\frac{T(i,j+1,k) - T(i,j-1,k)}{2\delta x} \right) \overrightarrow{e_x} + \left(\frac{T(i+1,j,k) - T(i-1,j,k)}{2\delta y} \right) \overrightarrow{e_y} \quad (\text{IV.11})$$

$\overrightarrow{e_x}$ et $\overrightarrow{e_y}$ désignant des vecteurs unitaires portés par les axes Ox et Oy.

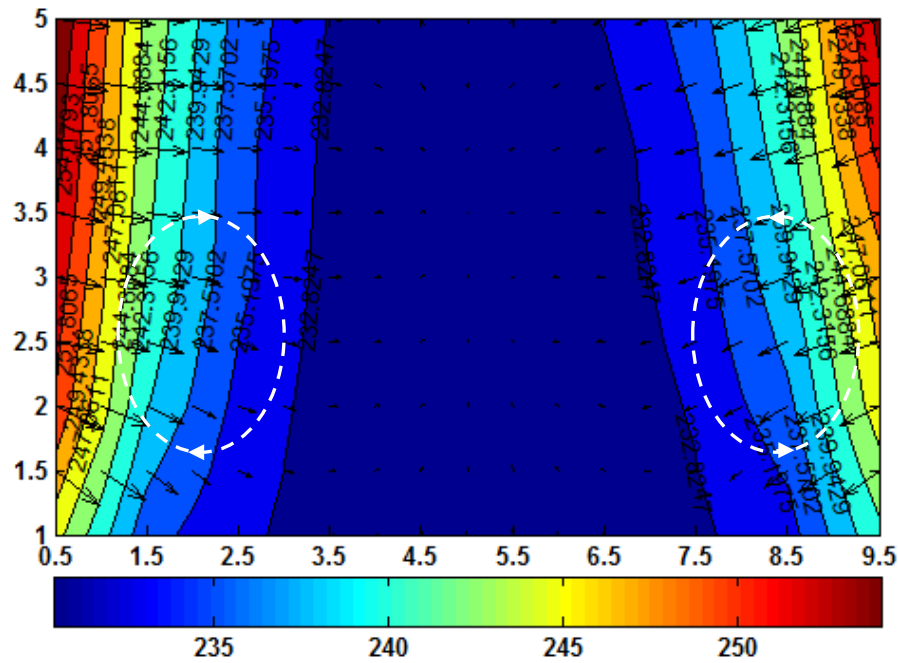
Il est aisé de constater la déformation des lignes des isothermes, notamment à la partie centrale du lingot (cf. figure IV.10-a). Ceci peut être expliqué par la convection naturelle et peut être aussi par l'existence de la résistance discutée précédemment, qui se trouve entre les parois de fusion et le lingot. En revanche, dès que le lingot est entièrement liquide (figure IV.10-b), on constate que le métal liquide épouse parfaitement les parois d'échange thermique. La déformation des isothermes indique clairement le développement de deux boucles convectives quasiment symétriques, générées par les gradients thermiques locaux.

L'étape de solidification est présentée sur la figure (IV.10-c). Dès que les premières couches se développent au niveau des parois froides des deux échangeurs, il y a de nouveau la création de la résistance thermique aux interfaces d'échanges thermiques du au phénomène de retrait de la phase solide. Cette résistance perturbe légèrement la symétrie du refroidissement. Cependant, les flèches des vecteurs des gradients thermiques locaux et la déformation des isothermes montrent la création de deux vortex convectifs entre le cœur chaud du lingot et les parois froides.



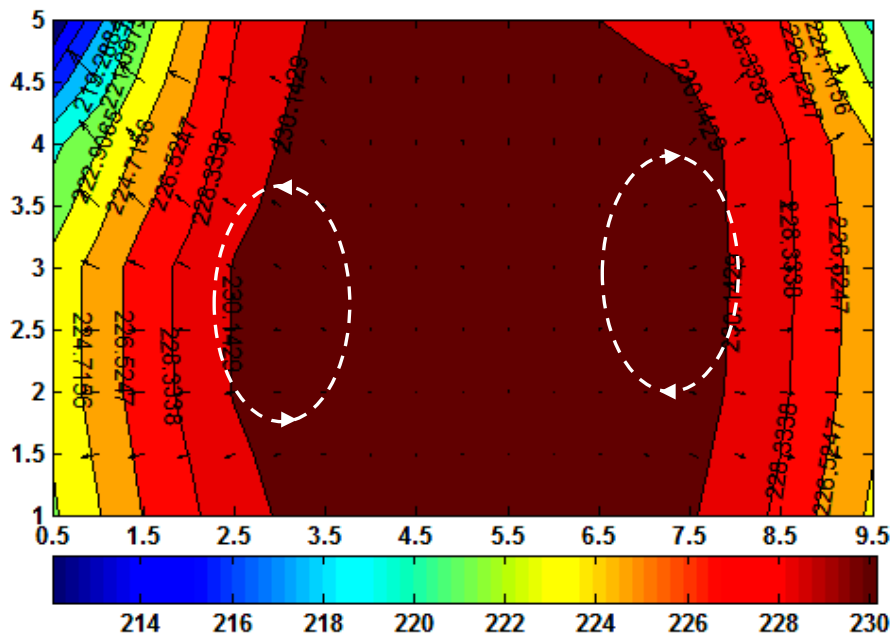
$$T_{\max} = 128.05 \text{ }^{\circ}\text{C}, T_{\min} = 106.75 \text{ }^{\circ}\text{C}, T_{\text{moy}} = 113.76 \text{ }^{\circ}\text{C},$$

(a) $t = 3000 \text{ s}$ (étape de chauffage)



$$T_{\max} = 256.05 \text{ }^{\circ}\text{C}, \quad T_{\min} = 229.05 \text{ }^{\circ}\text{C}, \quad T_{\text{moy}} = 236.90 \text{ }^{\circ}\text{C}$$

(b) $t = 13500 \text{ s}$ (étape de fusion)



$$T_{\max} = 256.05 \text{ }^{\circ}\text{C}, \quad T_{\min} = 229.05 \text{ }^{\circ}\text{C}, \quad T_{\text{moy}} = 236.90 \text{ }^{\circ}\text{C}$$

(c) $t = 21550 \text{ s}$ (étape de solidification)

Figure IV.10.

Cartes de température de l'expérience de solidification de l'étain pur (Sn) à différents instants choisis, $\Delta T = 0 \text{ K}$; $CR = 0,03 \text{ K/s}$, (a) étape d'échauffement ($t = 3000 \text{ s}$), (b) étape de fusion ($t = 13500 \text{ s}$), (c) étape de solidification ($t = 21550 \text{ s}$). La figure montre également les vecteurs proportionnels à la densité du flux thermique.

IV.3.2. Evolution du stockage de chaleur dans le lingot

L'évolution de la température moyenne du lingot représentée sur la figure (IV.11) montre clairement un choc thermique dans la phase de refroidissement au début de la solidification sous forme d'une recalescence et un pseudo palier, en regard de l'évolution de la puissance instantanée présentée sur la figure (IV.12), la période de rejet de chaleur latente est très visible. La puissance instantanée extraite lorsque le lingot est entièrement liquide ou entièrement solide est ici calculée suivant la formule suivante :

$$P^n = (m_{Sn} C_{p_{Sn}} + m_{creuset} C_{p_{creuset}}) \frac{\bar{T}^{n+1} - \bar{T}^n}{\Delta t} \quad (IV.12)$$

Sachant que la capacité calorifique de l'étain, est une propriété thermique variant fortement avec la température, notre estimation est basée sur des expressions dépendantes de la température (*Smithells Metals Reference Book*) afin de bien prendre en compte l'état solide ou l'état liquide du lingot. Ces expressions sont les suivantes :

Pour l'état liquide :

$$C_p = 4.1868 (8.29 - 2.2 \times 10^{-3} T) \quad (IV.13)$$

Pour l'état solide :

$$C_p = 4.1868 (5.16 + 4.34 \times 10^{-3} T) \quad (IV.14)$$

Cependant, les relations (IV.13-14) donnent des valeurs pour la capacité calorifique exprimées en $J/(K.mol)$, donc une conversion vers le système d'unité $J/(kg. K)$ est nécessaire. Le volume molaire de l'étain est $(16,3 cm^3/mol)$, donc une masse volumique de l'étain de $6,986 g/cm^3$ à l'état solide et $7,28 g/cm^3$ à l'état liquide on aura :

Pour l'état liquide :

$$C_p = 36.9 (8.29 - 2.2 \times 10^{-3} T) \quad (IV.15)$$

Pour l'état solide :

$$C_p = 35.41 (5.16 + 4.34 \times 10^{-3} T) \quad (IV.16)$$

T désignant la température en degré Kelvin (K)

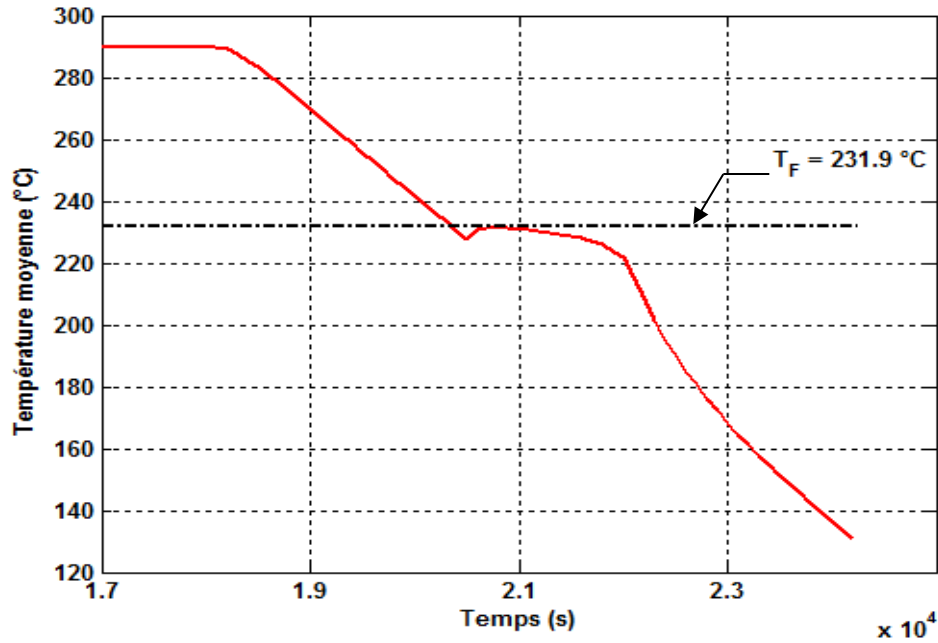


Figure IV.11. Evolution temporelle de la température moyenne. Expérience, Sn (pur), $\Delta T = 0K$; $CR=0,03$ K/s.

Le suivi de l'évolution temporelle des flux thermiques échangés entre le lingot et les deux échangeurs thermiques a permis d'estimer la chaleur latente au cours de la fusion et la solidification. La méthode d'estimation est basée sur le principe de conservation d'énergie présenté dans l'équation (IV.17), en calculant l'intégration des courbes des deux coté d'échange pendant le processus de changement de phase (fusion, solidification). Ceci donne la possibilité d'estimer la chaleur latente comme suit :

$$L_s(\rho_s + \rho_l)V/2 \approx \int_{t_{dp}}^{t_{fp}} mC_p \frac{dT}{dt} dt - \int_{t_{dp}}^{t_{fp}} (\phi_{gauche} - \phi_{droit}) dt - pertes \quad (IV.17)$$

ou ρ_s et ρ_l sont les masses volumiques à l'état solide et liquide de l'alliage, V et le volume ($V=60cm^3$). t_{dp} et t_{fp} sont le temps du début et de la fin du processus de changement de phase, respectivement.

L'intégration des zones situées sous les courbes des puissances échangées entre 13180-15000s pour le processus de fusion et entre 2050-23180s pour le processus de solidification, fournit pour la phase de fusion une énergie thermique ($P_e = 29,67$ kJ) et une quantité de chaleur stockée ($P_C = -5,36$ kJ). La valeur expérimentale de la chaleur latente est $P_e + P_C = 24,31$ kJ. En outre, dans le processus de solidification, ($P_e = 17,60$ kJ, $P_C = 6,68$ kJ), donc $P_e + P_C = 24,28$ kJ, il est important à remarquer que les deux variations thermiques sont approximativement égale à la valeur théorique de la chaleur latente $L(\rho_s + \rho_l)V/2 = 24,279$ kJ.

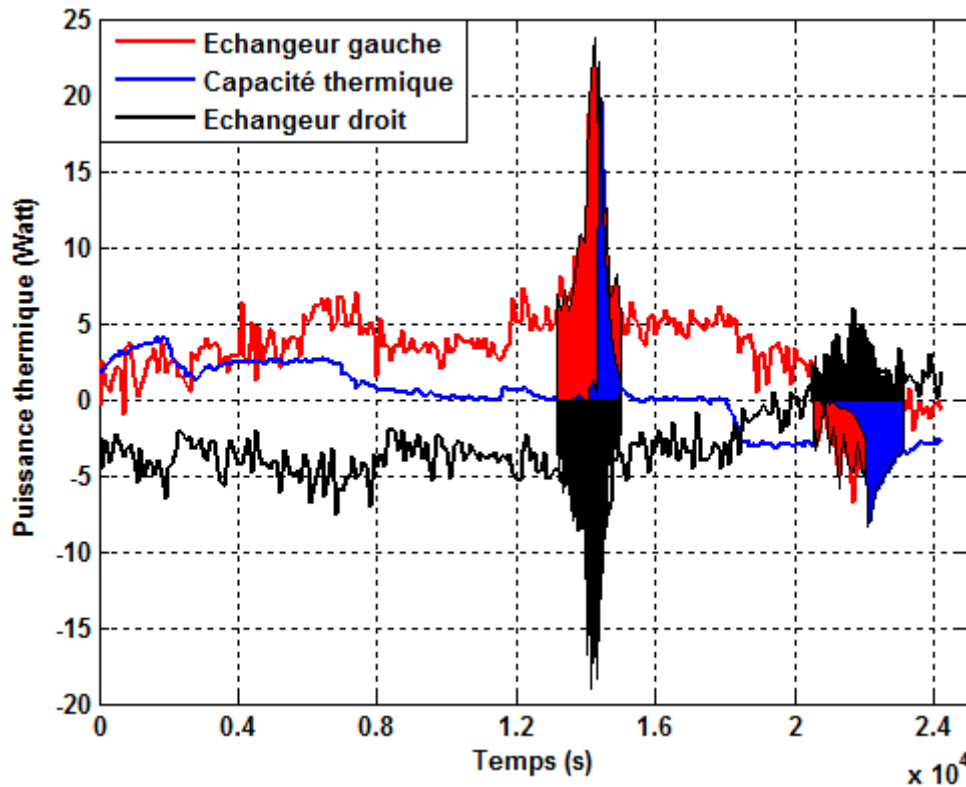


Figure IV.12. Evolution des puissances thermiques échangées entre les deux échangeurs et le lingot et la chaleur stockée en (Watt). Expérience, Sn (pur), $\Delta T = 0K$; $CR=0,03$ K/s.

La figure (IV.13) présente la courbe de vérification de la conservation du système thermique durant le processus expérimental. Nous remarquons que hormis les deux zones : fusion et solidification, il existe un décalage d'environ un à deux watts entre les puissances extraites. Cette différence est imputable à la méthode de calcul de la température moyenne pour le tracé de la courbe de la puissance instantanée stockée qui n'est fait qu'à partir de la moyenne des cinquante mesures des thermocouples et les deux puissances des deux échangeurs thermiques calculées à partir de neuf thermocouples de chaque côté. La disposition des thermocouples laisse de côté des bandes de un centimètre en haut et en bas du lingot, d'un demi-centimètre à gauche et à droite. Ainsi, la température moyenne calculée correspond plus à celle de l'intérieur du lingot qu'à celle du lingot complet. Consécutivement, l'évolution temporelle de la température moyenne calculée présente une erreur qui transparaît au niveau de la puissance extraite calculée. Il existe une résistance de contact thermique entre le lingot en cours de solidification et la paroi de refroidissement. Cette résistance perturbe l'évaluation du flux extrait.

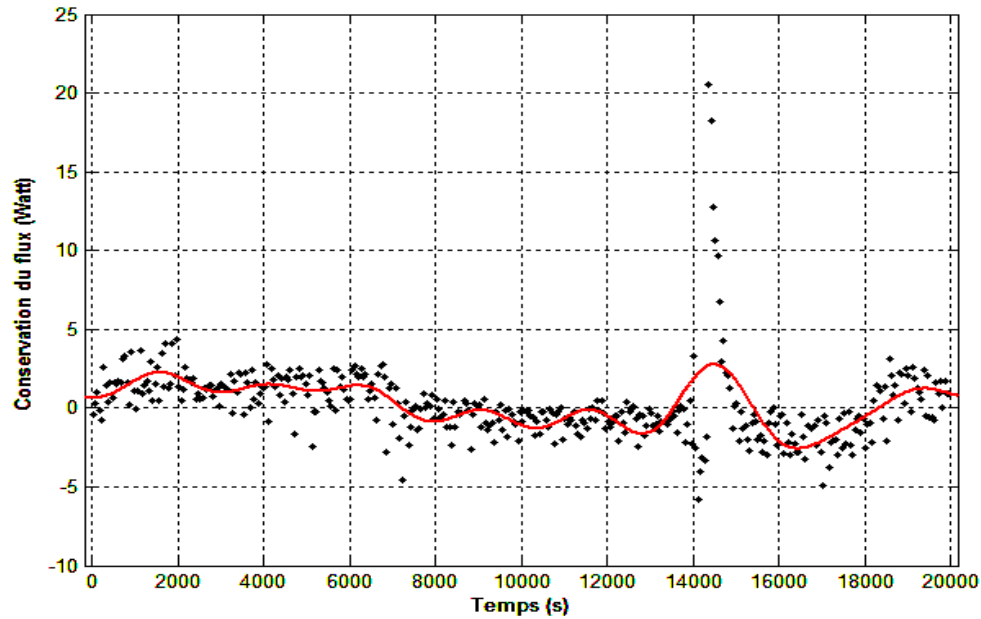


Figure IV.13. Conservation des flux échangés entre les deux échangeurs et le lingot en (Watt) avec filtrage. Expérience, Sn (pur), $\Delta T = 0K$; $CR=0,03$ K/s.

Compte tenu de l'étude de vérification et des résultats obtenus à partir des expériences de solidification de l'étain pur, présentés précédemment, aucune information ne met réellement en défaut les hypothèses faites sur la viabilité de notre système expérimental. La validité du système semble confortée. Le système et le principe des corrections à apporter ont été précisés.

IV.4. EXPERIENCES REALISEES SUR L'ALLIAGE ETAIN-PLOMB

Différentes expériences ont été effectuées sur l'alliage étain-plomb sous l'effet de la convection naturelle d'origine thermosolutale. Deux concentrations ont été choisies (3 et 10% en masse) les vitesses de refroidissement varient entre 0,02 et 0,04K/s. La différence de température expérimentale appliquée est fixée à 40K. L'étalonnage des thermocouples s'effectue toujours à la température moyenne de la première phase de stabilisation qui correspond à l'état liquide thermiquement stationnaire pendant lequel le système de compensation des pertes thermiques (boîte de Kirchhoff) peut considérablement faire varier la température. Un tableau récapitulatif de l'ensemble des expériences est donné dans l'annexe II (Tableaux II.3 et II.11).

Nous présentons dans ce qui suit un exemple complet du modèle d'exploitation thermique des résultats expérimentaux obtenus à partir des expériences mentionnées dans l'annexe des résultats, et qui sera généralisé pour tout le reste des exploitations.

IV.4.1. Expérience de solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb référencée (LH1)

Cette expérience de solidification a été réalisée sur l'alliage étain-plomb de concentration massique 3% avec les conditions expérimentales (différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$ et vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$). Le processus expérimental correspondant est présenté dans la figure (IV.14). Les cinq étapes du processus ont été l'objet d'une étude détaillée du paragraphe I dans le début de ce chapitre.

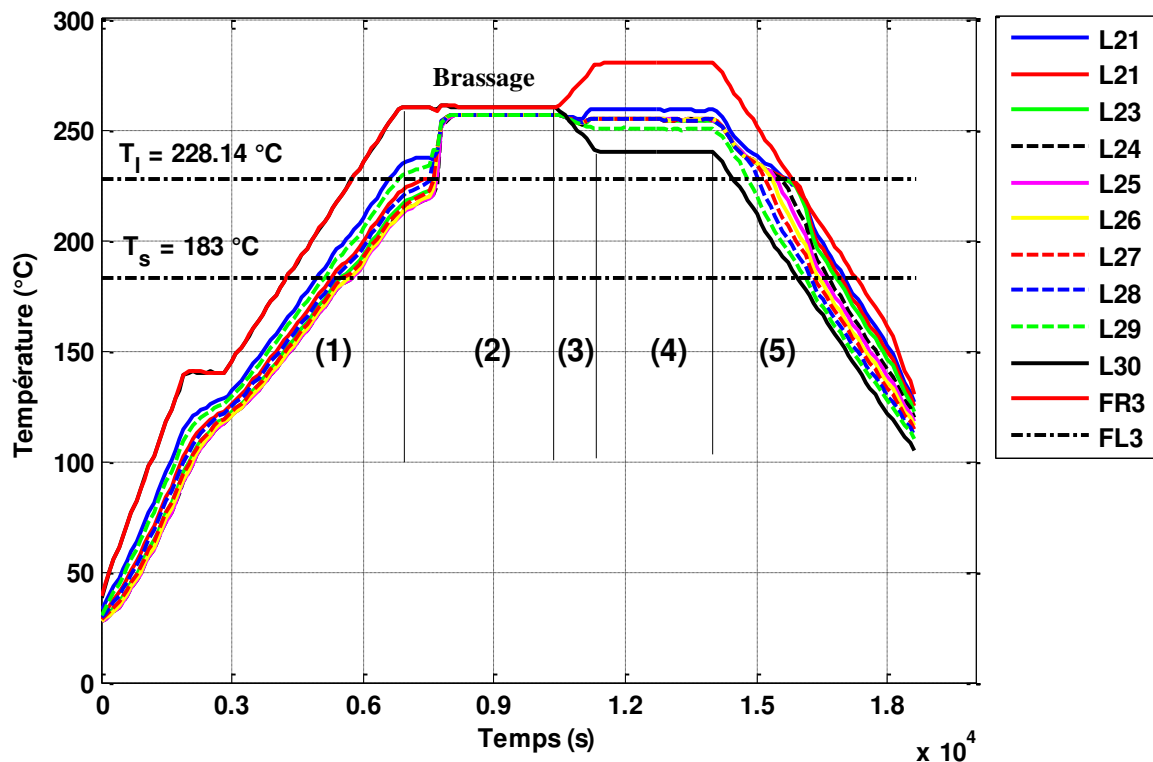


Figure. IV.14.

Evolution temporelle des thermocouples de ligne situés à mi-hauteur du lingot (L21-L30) avec les thermocouples pilotes : FL3 de l'échangeur gauche et FR3 de l'échangeur droit. Expérience : Sn-3wt.%Pb, $DT = 40K$, $CR = 0.03 K/s$.

IV.4.1.1. Cartes de température et gradient thermique local

Les contours de température et les gradients thermiques locaux correspondants à quatre instants sélectionnés (14500, 15000, 15500 et 16000s) lors du refroidissement sont présentés sur la figure (IV.16). Les valeurs numériques correspondantes du champ de température instantanée sont données dans le tableau (IV.4). Les conditions expérimentales sont : $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$. La différence de température entre les deux côtés des échangeurs de chaleur correspond à une température de paroi gauche de $T_L = 280^\circ C$ et $T_R = 240^\circ C$ pour la paroi droite. Dans cette expérience, la résistance thermique de contact entre les échangeurs de chaleur et les parois de l'échantillon entraîne une différence de l'ordre de $5K$ à l'état de liquide et $9K$ à l'état solide.

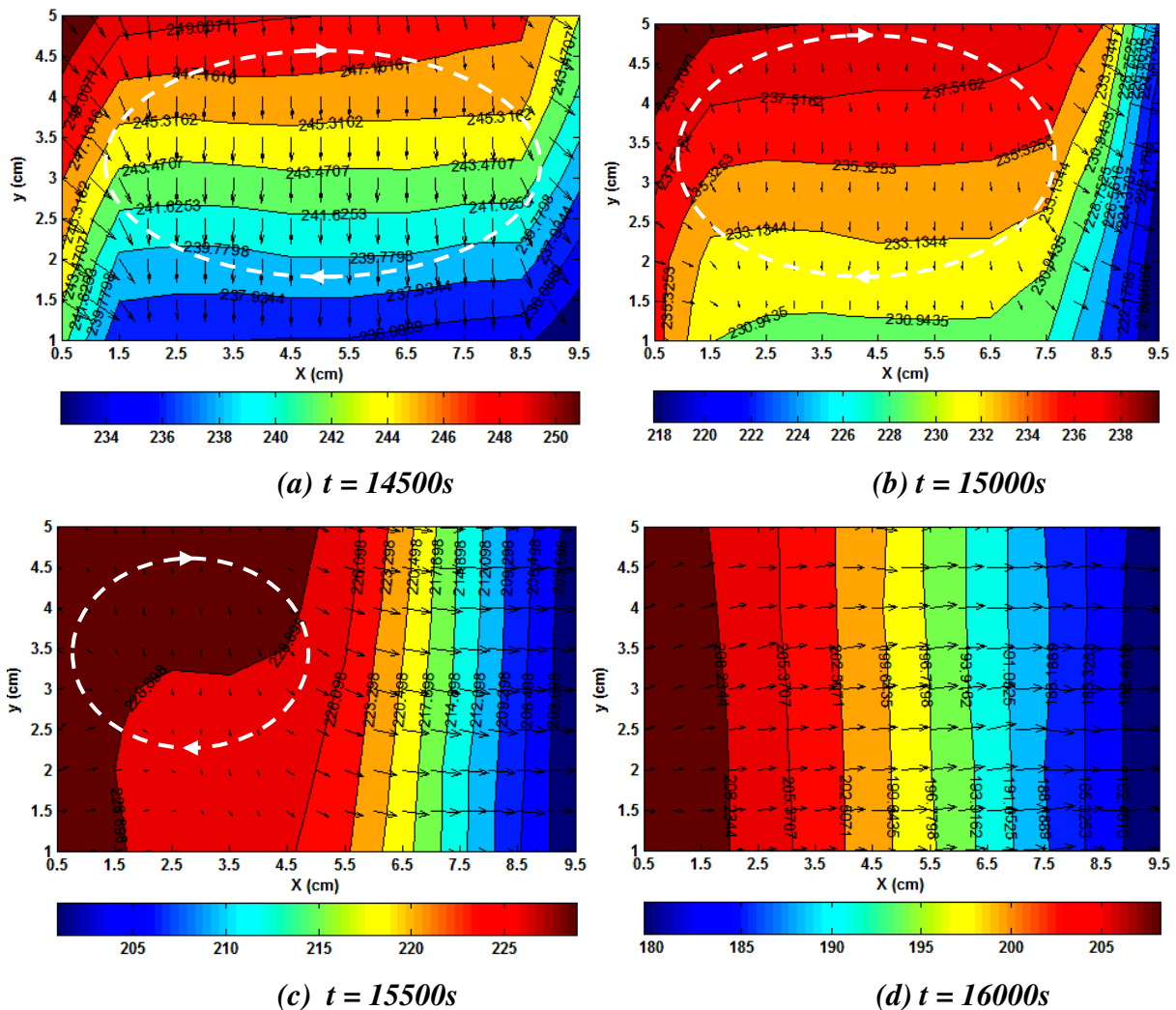


Figure IV.15. Cartes de champ de température choisies à quatre instants. Expérience : Sn-3wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$, température de liquidus $T_L = 228.14^\circ C$, température de solidus $T_E = 183^\circ C$. Les vecteurs correspondent aux gradients thermiques locaux proportionnels à la densité du flux thermique.

La figure (IV.15) illustre le comportement de la convection naturelle pendant le processus de solidification. Les déformations des isothermes donnent des indications claires sur la configuration de l'écoulement générée par la convection naturelle. Comme le montre la figure (IV.15-a) à l'état totalement liquide, la configuration d'écoulement se compose d'une boucle de circulation dans le sens des aiguilles d'une montre. Pendant le processus de solidification, comme il est discerné sur la figure (IV.15.b-d), les isothermes du côté droit du lingot (la partie la plus froide), deviennent progressivement verticales. Ceci est cohérent avec la progression de la zone pâteuse de droite à gauche. La dernière zone liquide se trouve dans la partie gauche de l'échantillon où les variations de la température deviennent plus en plus faibles. Ceci est confirmé par l'analyse des gradients de température. Les vecteurs du gradient thermique local, indiquent clairement le transfert de chaleur à l'intérieur de l'échantillon. Comme prévu, le gradient de température est faible dans la zone correspondant au dernier liquide (cf. figure IV.15-c). Cet effet a une conséquence significative sur la nature de la structure (colonnaire ou équiaxe) qui sera discuté dans la section suivante dédiée à l'analyse post-mortem.

IV.4.1.2. Evolution de la puissance thermique échangée

Le changement temporel des flux thermiques mesurés à partir des 18 thermocouples placés dans les échangeurs est représenté dans la figure (IV.16). La conservation du flux est quasiment satisfaite. Toutefois, la différence relative entre les flux de chaleur gauche et de droite n'est pas supérieure à 10%. Notez que la précision des mesures de flux de chaleur est limitée par les faibles écarts de températures mesurées dans les échangeurs de chaleur en cuivre. Les mesures expérimentales du champ de température montrent une distribution non uniforme du flux de chaleur. Ceci indique que le flux de chaleur extrait sur les interfaces d'échanges thermiques de l'échantillon est loin d'être uniforme.

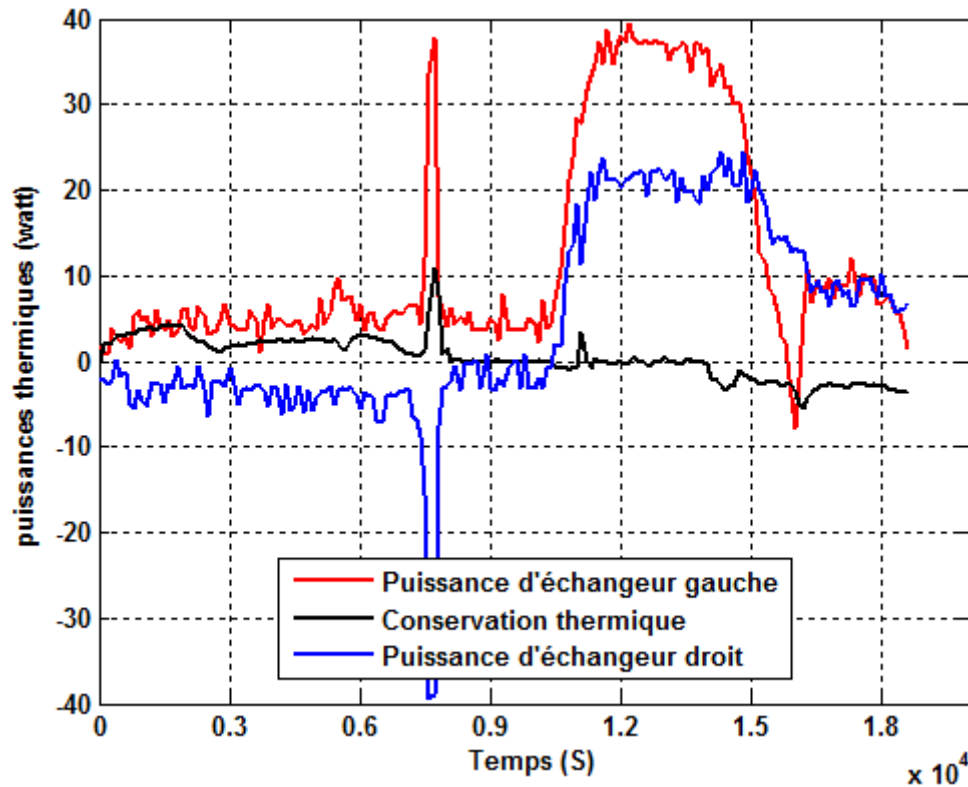
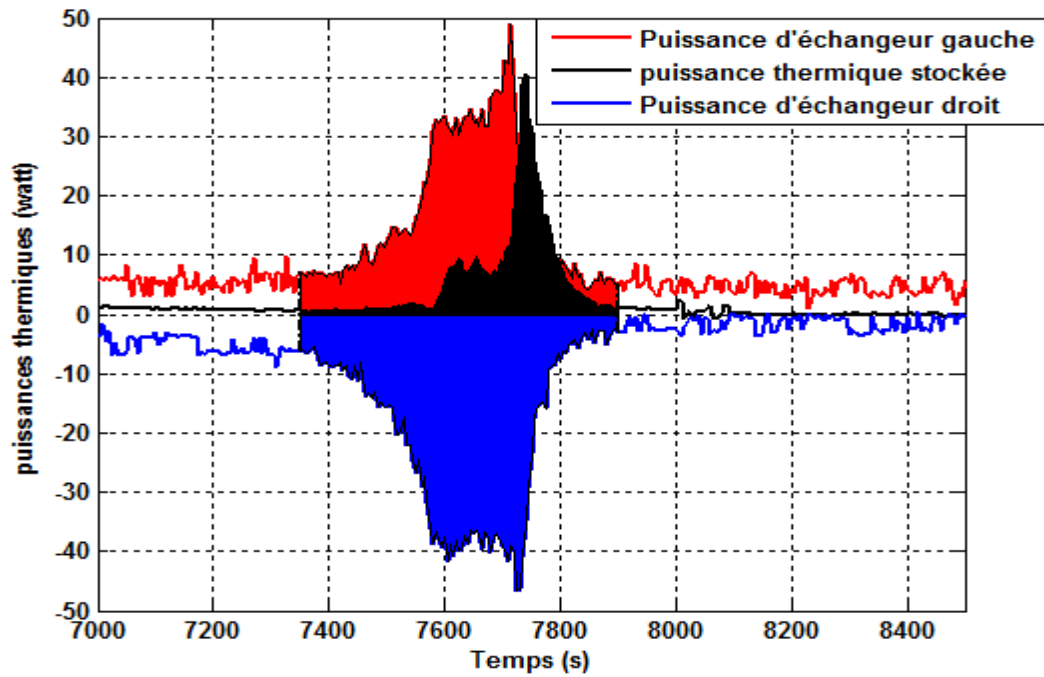


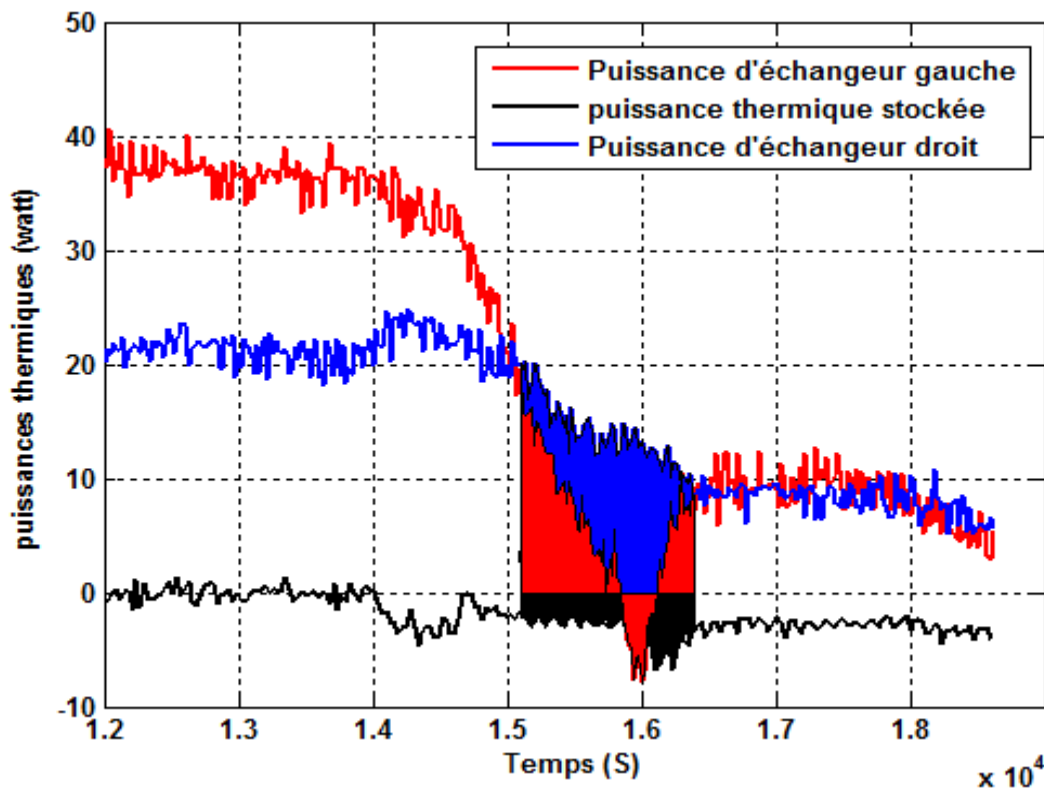
Figure IV.16. Evolution temporelle des flux de chaleur échangés obtenus à partir des mesures de température effectuées par les 18 thermocouples placés dans les deux échangeurs de chaleur. La courbe noire présente l'évolution du stockage thermique dans le lingot calculée par la formule (IV.17). L'alliage Sn-3wt.%Pb et les paramètres de solidification sont $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

IV.4.1.3. Estimation de la chaleur latente de l'alliage (Sn-3wt.%Pb)

La même méthode d'estimation de la chaleur latente présentée dans la partie (III.2) a été adoptée afin d'évaluer la chaleur latente dans les deux processus de changement de phase (fusion et solidification) pour l'alliage Sn-3wt.%Pb. L'intégration des courbes des puissances échangées se fait entre 7350-7900s pour le processus de fusion montrée dans la figure (IV.17-a), et entre 15100-16400s pour le processus de solidification présentée sur la figure (IV.17-b). Le calcul pour la fusion de l'alliage Sn-3wt.%Pb fournit une énergie d'échange thermique de $P_e = 27,61 \text{ kJ}$ et une capacité calorifique stockée $P_c = -3,54 \text{ kJ}$, la valeur expérimentale de la chaleur latente est $P_e + P_c = 24,07 \text{ kJ}$. Cependant, pour le processus de solidification de cet alliage, on a $P_e = 20,61 \text{ kJ}$, $P_c = 3,48 \text{ kJ}$, donc $P_e + P_c = 24,09 \text{ kJ}$, Notons que les deux valeurs sont très proche de la valeur théorique $m.L = 24,03 \text{ kJ}$.



(a)



(b)

Figure IV.17. Estimation de la chaleur latente. Les zones d'intégration entre 7350-7900s pour le processus de fusion (a) et entre 15100-16400s pour le processus de solidification (b) les puissances échangées et la chaleur stockée sont calculées. L'alliage Sn-3wt.%Pb et les paramètres de solidification sont $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03 K/s$.

IV.4.1.4. Estimation du temps de passage du front de solidification

L'évolution temporelle du champ de température nous a permis d'estimer le temps de passage du front de solidification en se basant sur l'hypothèse d'une surfusion locale moyenne d'environ 3.44°C . Cette hypothèse est justifiée par une approche basée sur la méthode des vitesses projetées (L.HACHANI et al [2]), qui sera l'objectif d'une étude détaillée dans les parties suivantes dans ce chapitre. Néanmoins cette surfusion n'est probablement pas constante et peut être plus importante dans les zones de fort rejet de soluté. A travers un code de calcul réalisé sous MATLAB, l'estimation du temps de passage du front représenté par l'isotherme correspondant à la température de $224,7^{\circ}\text{C}$ a été faite. La figure (IV.18) présente la position du front de solidification. Les valeurs numériques des instants de passage pour les 50 nœuds correspondant aux positions des thermocouples sont présentées dans le tableau (IV.5). Il est très important de mentionnant l'existence d'un deuxième front du côté gauche à partir de l'instant 15810s environ, ce qui signifie que le dernier liquide est localisé dans la zone située approximativement entre 0.5 et 1cm horizontalement et $3,5$ et 6cm verticalement. Ceci est d'ailleurs confirmé par la position du retrait observé sur la partie supérieure du lingot solidifié (la figure IV.23 par exemple).

La carte correspondant aux instants du passage du front est donnée dans le tableau (II.5) de l'annexe II et présentée graphiquement sur la figure (IV.19), a fournit une possibilité de calculer la vitesse d'avancement du front pour une distance de 8cm entre la ligne verticale à droite des thermocouples située à $9,5\text{cm}$ ($FL10$, $FL20$, $FL30$, $FL40$ et $L50$) et la ligne verticale située à $1,5\text{cm}$ ($FL2$, $FL12$, $FL22$, $FL32$ et $FL42$). L'évolution du temps de passage en fonction de la distance donne une allure quasiment linéaire. Les valeurs de vitesse varient entre $68,97$ et $79,21\mu\text{m/s}$. Cette variation peut être expliquée par la non-uniformité de la répartition du flux thermique et l'existence d'une résistance thermique.

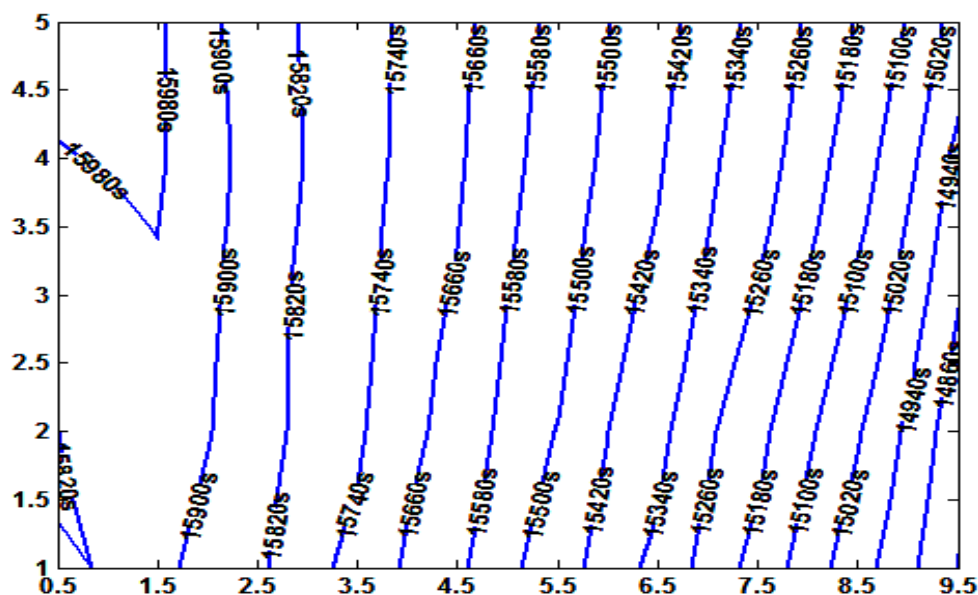


Figure IV.18. Positions du front de solidification avec les temps correspondants, prises pour l'isotherme $224,7^{\circ}\text{C}$ supposé comme la ligne des pointes de dendrites (surfusion de 3.44°C). Sn-3wt.%Pb, $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03\text{K/s}$.

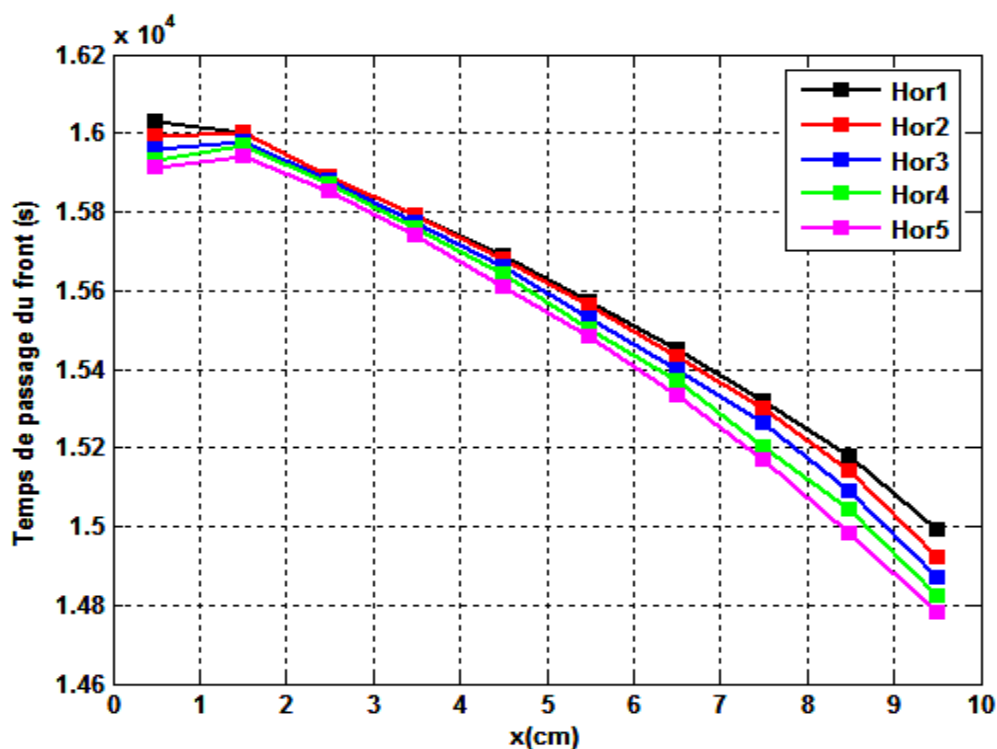


Figure IV.19. Evolution du temps de passage du front de solidification en fonction des niveaux horizontaux de la matrice des thermocouples : Hor1 (de FL1 à FL10), Hor2 (de FL11 à FL20) Hor3 (de FL21 à FL30), Hor4 (de FL31 à FL40) et Hor5 (de FL41 à FL50). Sn-3wt.%Pb, $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03\text{K/s}$.

IV.4.1.5. Estimation de la différence de température effective

Nous avons évoqué dans ce chapitre le problème des conditions thermiques aux limites perturbées par l'existence de la résistance thermique à chaque côté qui entraîne une répartition non uniforme des flux thermiques échangés entre le lingot et les deux échangeurs thermiques, ce que laisse une question pertinente en suspens à propos sur la différence de température entre les deux parois d'échanges, réellement imposée. L'approche adoptée pour le suivi du front de solidification nous a permis, également, d'estimer la variation du gradient thermique effectif. Les résultats donnés dans l'annexe II (tableau II.5), montrent que la différence de température effective moyenne varie entre 30,3 et 34,8K pour une distance de 10cm qui sépare les deux surfaces d'échange. Ceci signifie qu'il y a une résistance thermique variant entre 2,6 et 5K de chaque côté dans le cas de cette expérience. La figure (IV.20) donne des indications sur l'effet des pertes éventuelles par rayonnement et du rétrécissement provoqué par le phénomène de retassure du lingot au cours de la solidification. Cette retassure est estimée d'environ cinq dixième de millimètre, tous ces facteurs créent une diminution de la différence de température effective de 4,5K.

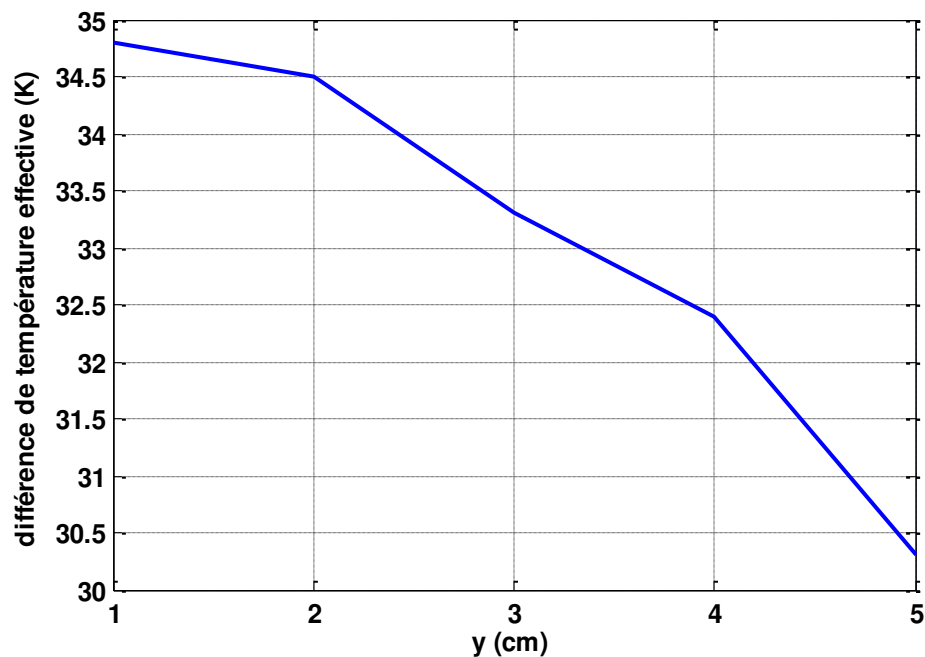


Figure IV.20. Variation de la différence de température effective. Sn-3wt. %Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

IV.4.2. Mesure de la vitesse projetée sur le gradient de température

Les données expérimentales du champ de la température sont analysées afin d'obtenir quelques indices sur la configuration de la dynamique, notamment l'ampleur du champ de vitesse dans la zone liquide. Le procédé consiste à calculer la projection de la vitesse sur le vecteur gradient de température au niveau de chaque nœud correspondant à la position d'un thermocouple. Le principe de la méthode est le suivant. L'intégration de l'équation de la chaleur sur l'épaisseur d'échantillon dans la zone liquide donne :

$$\int_0^e \frac{\partial T}{\partial t} dz + \int_0^e \vec{u} \cdot \vec{\nabla} T dz = \alpha \int_0^e \nabla^2 T dz \quad (\text{IV.18})$$

où $\vec{u}$, α et e désigne respectivement le champ de vitesse instantanée, la diffusivité thermique liquide et l'épaisseur de l'échantillon. Si nous supposons que le champ de température est uniforme dans le sens transversal, ce qui est confirmé expérimentalement, alors l'intégrale (IV.18) se réduit à :

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} T = \alpha \nabla^2 T \text{ avec } \vec{U} = \frac{1}{e} \int_0^e \vec{u} \cdot dz \quad (\text{IV.19})$$

Le vecteur $\vec{U}$ représente la valeur moyenne de la vitesse instantanée à travers l'épaisseur de l'échantillon. L'estimation de la vitesse algébrique U est définie comme suit:

$$U = \vec{U} \cdot \vec{\nabla} T / |\vec{\nabla} T| \quad (\text{IV.20})$$

où $|\vec{\nabla} T|$ est la norme du vecteur gradient thermique local

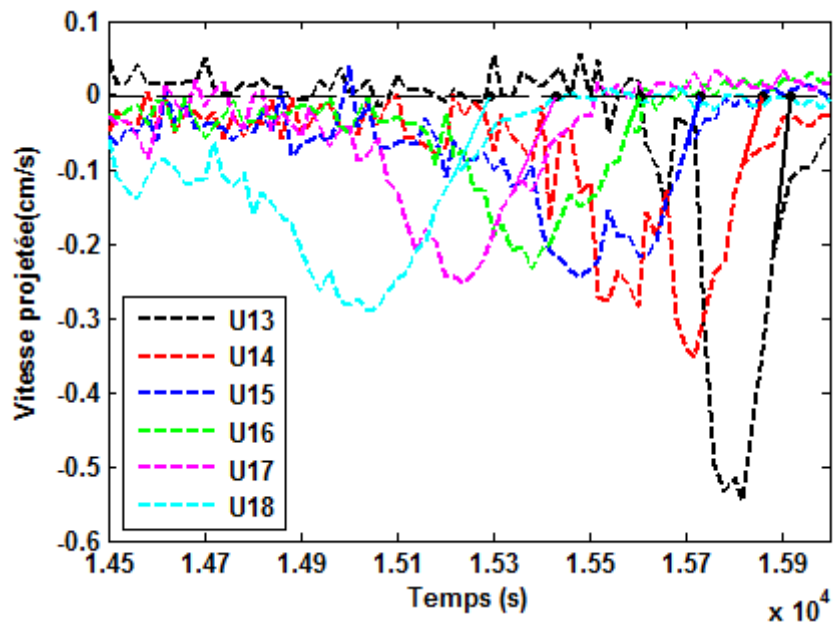
La valeur de U est obtenue en discrétisant l'équation de la chaleur à l'état liquide (sans tenir compte le dégagement de la chaleur latente) et en introduisant les données de température mesurées. Une méthode aux différences finies centrées est utilisée pour la discrétisation spatiale et un schéma « *Leap-frog* » du second ordre pour la discrétisation temporelle. Le maillage de calcul et la discrétisation des équations sont données dans l'annexe (II.3).

Les résultats sont présentés dans la figure (IV.21.a-b-c) pour le cas d'un alliage de Sn-3wt.%Pb avec les conditions expérimentales : $\Delta T = 40K$ et $CR = 0,03K/s$. Il n'est pas facile de déterminer la précision de la méthode. L'analyse des profils de vitesse (par exemple, à la figure IV.21.a) montre que l'estimation de vitesse devient inférieure à une amplitude de 6 mm/s. Cependant, la méthode n'est plus valable dès que les grains équiaxes apparaissent à la fin de la solidification. Il faut souligner que l'estimation actuelle est probablement plus faible que la vitesse maximale par convection. En effet, des calculs numériques effectués au cours de l'étape de la convection purement naturelle dans les travaux de R. BOUSSAA [3], indiquent que la grandeur de vitesse est de l'ordre de 1 à 2 cm/s. Le nombre de Péclet étant relativement important, typiquement de l'ordre de 36 pour une amplitude de vitesse de 1 cm/s, les isothermes sont fortement déviées par rapport aux lignes de courant de l'écoulement, ce qui diminue la projection de la vitesse. L'ordre de grandeur typique de la projection de vitesse est de 2 à 5,6 mm/s.

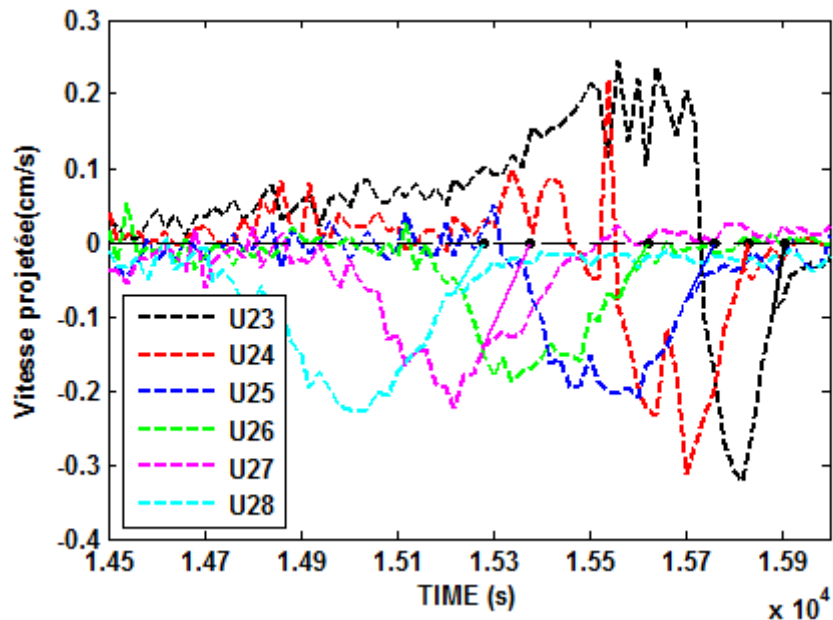
La figure (IV.21.c) montre l'évolution des modules des vitesses projetées pour les nœuds situés au niveau inférieur du maillage de calcul, où les produits scalaires du vecteur de la vitesse $\vec{u}$ avec le gradient de température $\vec{\nabla}T$ ne sont pas censés être trop petits. Diverses observations peuvent être faites concernant une telle analyse. Tout d'abord, on retrouve les différentes étapes du procédé de solidification, à savoir la stabilisation globale de la vitesse pendant le régime de convection thermique naturel avant le refroidissement. D'autre part, la vitesse décroît lorsque le front colonnaire se rapproche du nœud. En effet, si on prend par exemple le nœud 18 dans la figure (IV.21-a), on constate que lors de la phase de la solidification, la norme de la vitesse projetée augmente puis diminue sensiblement presque à zéro. Ceci est attribué à l'effet solutal juste en avant le passage supposé du front colonnaire qui favorise la convection en augmentant la vitesse. Il a été démontré par des calculs numériques que la convection est un peu particulière à nombre de Prandtl bas et elle se compose d'un jet de recirculation (vortex bien établi). Un tel schéma est qualitativement en accord avec les observations.

La comparaison entre les figures (IV.21.a-b-c) et (IV.22) montrent que le signe de la vitesse est conforme aux constatations précédente. Nous avons déterminé l'instant où la vitesse diminue jusqu'à une valeur proche de zéro en extrapolant la courbe de vitesse à zéro en utilisant la tangente calculée au point d'inflexion (voir figure IV.21.a-b-c). L'utilisation de cette procédure était justifiée par le fait que la méthode actuelle n'est plus valide dès que le

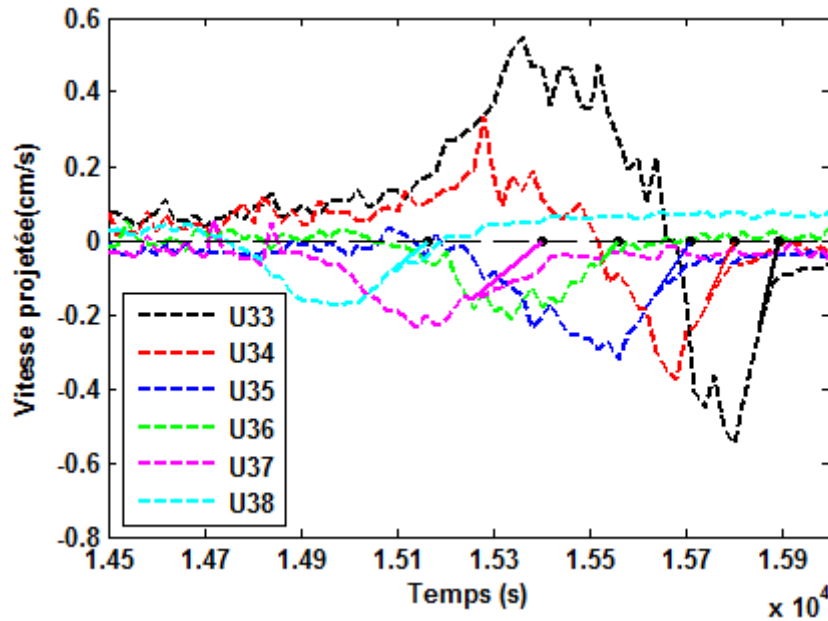
nœud est englobé par le front colonnaire à cause de dégagement de la chaleur latente qui n'a pas été pris en compte dans le modèle analytique. Ces instants correspondent aux points d'intersection de la tangente de chaque courbe avec le niveau zéro. Les valeurs numériques des instants ainsi que les températures correspondantes enregistrées à chaque nœud sont fournis dans le tableau (II.6) de l'annexe de ce chapitre.



(a)



(b)



(c)

Figure IV.21. Evolution temporelle des modules de la vitesse projetée U pour différents nœuds internes a) : (L13, L14, L15, L16, L17 et L18) situé dans la partie supérieure du lingot, b) : (L23, L24, L25, L26, L27, et L28) situé à mi-hauteur du lingot et c) : (L33, L34, L35, L36, L37 et L38) situé dans la partie inférieure du lingot. La figure montre également l'extrapolation à zéro utilisée pour estimer l'instant où le front colonnaire traverse la position du nœud. Sn-3wt. %Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03 K/s$ (Réf LHI).

Il est très important de noter que les séquences temporelles sont cohérentes avec les positions des nœuds et ont nous permis de suivre le déplacement du front colonnaire. En effet, il est possible d'obtenir une estimation de la vitesse du front colonnaire connaissant le temps parcouru entre deux nœuds c'est-à-dire entre deux thermocouples. Les estimations de la vitesse du front colonnaire sont fournies dans le tableau (IV.6). Nous avons constaté que la vitesse du front colonnaire globalement augmentait au cours du processus de solidification. En outre, il est possible d'obtenir une estimation de la température lorsque le front colonnaire atteint un thermocouple, ces données ont montré que la température du front colonnaire est inférieure à la température de liquidus de l'alliage de 2 à 5 K.

Dans la figure. (IV.21.c), nous observons des changements de signes dans le comportement des vitesses projetées de U_{33} et U_{34} vers la fin de la solidification, ce comportement n'est pas facile à interpréter. En effet, les données expérimentales ne sont que les projections du champ de vitesse sur le gradient de température locale, c'est-à-dire une image de la vitesse. Ainsi, la température et les changements de la configuration du flux

thermique pourraient être responsables de ce comportement. Dans les derniers instants de la solidification, la configuration du champ de température change considérablement comme le montre la figure (IV.15.b-d). En ce qui concerne la configuration de l'écoulement, il peut apparaître également une modification de la configuration de l'écoulement près de la fin de la solidification à cause du cumul de soluté dans le dernier liquide.

Les analyses post-mortem qui seront présentées dans la partie suivante dans ce chapitre montrent qu'à la fin de solidification la concentration du soluté présente un panache vertical dans la partie droite de l'échantillon. Il semble qu'il y apparaisse une seconde recirculation près de la paroi chaude. Ce phénomène aussi a été observé dans les travaux numériques de R. Boussaa et al [3] sur la même configuration physique et géométrique.

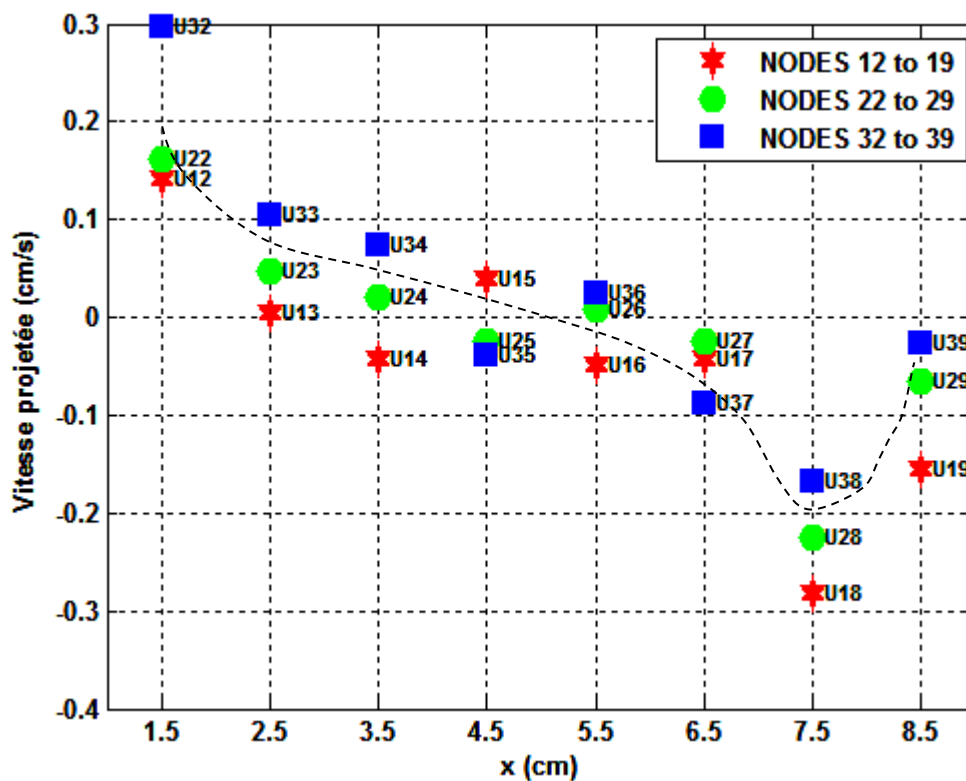


Figure IV.22. Estimation de la vitesse en fonction du temps obtenue à partir de la projection sur le vecteur gradient de température pour les nœuds du maillage de calcul à l'instant $t = 15000s$. Sn-3wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0.03 K/s$ (Réf LH1).

La figure (IV.24) montre les profils instantanés de la projection de la vitesse calculée dans plusieurs nœuds. L'instant choisi correspond à un moment juste avant le début du refroidissement ($t=15000s$). Les signes des projections de vitesse sont compatibles avec

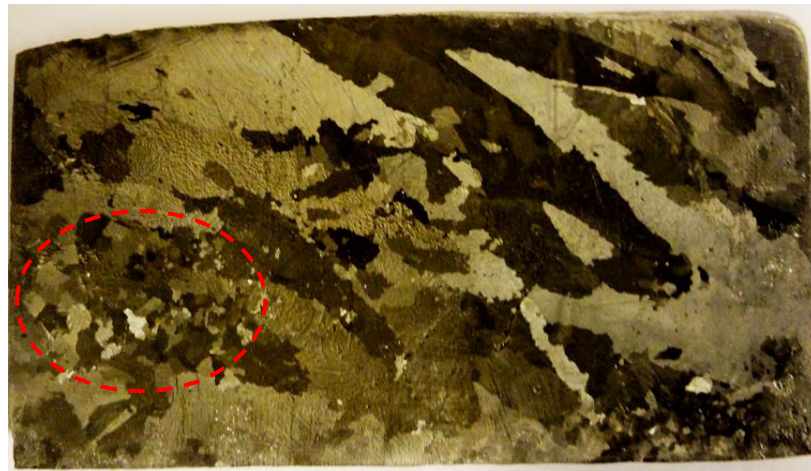
l'existence d'une grande boucle d'écoulement de recirculation. Les valeurs numériques correspondantes sont fournies dans l'annexe II (tableau II.7).

IV.4.3. Analyses post mortem

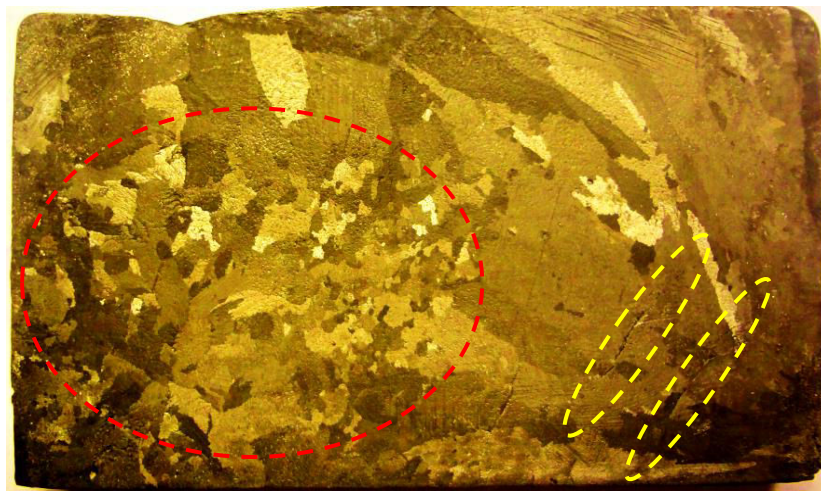
IV.4.3.1. Structure des grains

La première analyse de type post mortem effectuée sur les lingots consiste à révéler la macrostructure afin de connaître la forme et les tailles des grains et le positionnement des canaux ségrégués dans le lingot. Il est très difficile d'établir des cartes de microstructures car l'étain est un métal très mou qui tend à s'étaler durant le polissage et donc à masquer ces microstructures. Les cartes de macrostructures ne sont pas plus aisées à réaliser compte tenu des dimensions de l'échantillon ($10 \times 6 \text{ cm}$) et de la régularité du polissage à obtenir pour que les attaques chimiques révèlent les grains. La révélation de la macrostructure a été réalisée par plusieurs passes d'un papier abrasif de polissage (400 jusqu'à 2400) et une attaque chimique par une solution chimique composée de 75% vol de HCL (37% mol/v) et 25% vol HNO₃ (69,5%). Après avoir laissé le mélange (HCl et HNO₃) pendant 10-15 minutes, l'échantillon a été nettoyé avec du coton imbibé de ce mélange pendant une minute, puis nettoyé avec de l'eau puis à l'alcool et finalement séché. Un exemple de trois différents cas de vitesse de refroidissement sont présentés: $CR = 0,02, 0,03$ et $0,04 \text{ K/s}$ pour une différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40 \text{ K}$. Les macrostructures correspondantes sont illustrées dans la figure (IV.25). Les résultats montrent que:

- (i) La solidification est globalement de type colonnaire.
- (ii) L'inclinaison des grains colonnaires est compatible avec l'existence d'un écoulement en amont vers le bas le long de la face de progression.
- (iii) Une zone équiaxe apparaît dans la partie gauche de l'échantillon, notamment pour la plus grande vitesse de refroidissement, ce qui indique qu'une transition colonnaire-équiaxe a eu lieu à la fin de la solidification.



(a)



(b)



(c)

Figure IV.23.

Macrostructure de différents lingots de l'alliage Sn-3wt.%Pb observée sur le plan latéral. Les conditions sont ; différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$ et différentes vitesse de refroidissement : (a) $CR = 0,02K/s$, (b) $CR = 0,03K/s$ et (c) $CR = 0,04K/s$.

La figure (IV.23.a) correspond au cas de vitesse de refroidissement inférieure ($CR = 0,02K/s$). Les macrostructures sont presque de type colonnaire avec toutefois des grains plus petits dans le demi-tiers gauche (zone délimitée par la ligne rouge discontinue) qui peuvent correspondre à des grains équiaxes. Pour des vitesses de refroidissement plus grandes, les structures sont d'abord colonnaire, mais les grains équiaxes sont visibles dans la partie gauche de l'échantillon. La présence des grains équiaxes est de plus en plus visible avec l'augmentation des taux de refroidissement (voir par exemple la figure IV.23.b-c). Dans la figure (IV.23-b), les traces obliques noires délimitées par les lignes jaunes discontinues, situées dans le premier tiers gauche à mi-hauteur, correspondent à des zones de retassures. Elles se trouvent dans la zone de développement des canaux ségrégués, telle que dévoilée par les radiographies des échantillons. Ces retassures correspondent à des zones dont la teneur en plomb est très faible. En effet, le plomb et l'étain sont des métaux qui se contractent à la solidification. La teneur en plomb de l'alliage fait donc considérablement varier les coefficients d'expansion suivant les zones. Les zones à faible teneur en plomb se contractent plus fortement en se solidifiant d'où l'apparition de retassures. Une retassure s'est développée sur la surface supérieure gauche du lingot de la figure (IV.23-c).

Il est admis que l'apparition d'une zone équiaxe résulte de deux causes principales, à savoir la décroissance du gradient de température devant le front colonnaire et l'augmentation de la vitesse du front. Dans le cas présent, les deux mécanismes se produisent dans les trois expériences à la fin de la solidification. Tout d'abord, nous avons observé dans la dernière région liquide une décroissance significative du gradient de température (voir section IV.1.1). Par exemple, la figure (IV.15.c) montre une diminution significative du gradient de température dans la partie gauche de l'échantillon pendant les dernières étapes du processus. Deuxièmement, la méthode de la vitesse projetée (voir tableau IV.8) indique que la vitesse du front colonnaire augmente globalement au cours de la solidification. Ces deux facteurs favorisent le déclenchement du mécanisme de la transition colonnaire équiaxe (CET). Notons que l'augmentation de la vitesse de refroidissement favorise également l'augmentation de la vitesse du front qui à son tour favorise l'apparition de la CET comme il a été discuté précédemment.

IV.4.3.2. Application du critère de Hunt pour la transition colonnaire-équiaxe (CET)

A la lumière de l'étude présentée dans le premier chapitre sur le modèle du blocage mécanique, dit critère de Hunt, il est possible de calculer dans le plan (G, V) la courbe de transition entre le régime colonnaire et équiaxe. En effet si l'on considère les germes dans la zone de surfusion en avant du front colonnaire et en-dessous de la température de nucléation, les pointes des cristallites croissent selon les mêmes lois que celles des dendrites. La vitesse de croissance des pointes de grains équiaxes, notée $\overline{w_g}$ (égale à V), peut être approchée par des lois de type LGK (Lipton, Glicksman et Kurz, 1984) ou celle de Hunt [9-12], qui stipulent que :

$$w_g \equiv V = \frac{A}{c_0} \Delta T^2 \quad (\text{IV.21})$$

A , c_0 , ΔT : sont respectivement, une constante dépendant des propriétés physiques de l'alliage, la concentration initiale, la surfusion totale en avant du front colonnaire.

Une autre estimation de la vitesse des pointes peut être obtenue avec une meilleure approximation de la fonction d'Ivantsov en fonction du nombre de Peclet (Dantzig & Rappaz, [13], soit :

$$V = \frac{D_L}{5.51\pi^2\Gamma(K\Delta T_0)^{1.5}} \Delta T_C^{2.5} \quad (\text{IV.22})$$

Γ = tension interfaciale

k = coefficient de partage,

D_L = coefficient de diffusion chimique,

ΔT_0 = surfusion constitutionnelle

Lorsque le rayon effectif du grain atteint une certaine valeur suffisante pour densifier complètement l'espace avant l'arrivée des colonnes (pour un taux de présence des grains ε_g de l'ordre de 0.66 par exemple comme pour des sphères), celles-ci sont alors bloquées et l'on a apparition de la CET.

L'obtention du critère de déclenchement de la transition colonnaire-équiaxe (CET), passe par la détermination de la cinétique de croissance d'un grain équiaxe qui vient d'être activé. L'évolution temporelle du rayon $a(t)$ d'un grain équiaxe cinétique peut être estimée simplement à partir de la vitesse des pointes. Celui-ci croît pendant le laps de temps entre

l'instant t_{ne} où il est activé et celui t_{col} où il est rattrapé par l'avancée du front colonnaire, soit en utilisant (1) :

$$a(t_{col}) = \int_{t=t_{ne}}^{t=t_{col}} w_g dt = \frac{A}{3VGC_0} (\Delta T_c^3 - \Delta T_{ne}^3) \quad (IV.23)$$

$\Delta T_c = \left(\frac{VC_0}{A} \right)^{1/2}$, ΔT_{ne} désignant respectivement la surfusion totale en avant du front colonnaire et la surfusion de nucléation.

La fraction volumique de grain ε_g s'obtient à partir de la donnée de la densité finale de grain équiaxe n ce qui permet d'écrire :

$$\varepsilon_g = \frac{4}{3} \pi n (a(t_{col}))^3 \approx 0.66 \quad (IV.24)$$

On peut alors en déduire de (IV.23) après utilisation de (IV.24) la frontière entre le régime colonnaire et équiaxe :

$$G \approx 0.617n^{1/3} \Delta T_c \left[1 - \left(\frac{\Delta T_{ne}}{\Delta T_c} \right)^3 \right] \quad (\text{pour la limite supérieure}) \quad (IV.25)$$

Hunt introduit aussi une zone mixte contenant à la fois des colonnes et des grains équiaxes. Ceci se produit lorsque les grains ne peuvent occuper tout l'espace. Il est d'usage de remplacer la surfusion intervenant dans (IV.25) par la vitesse des pointes définie en (IV.21) pour obtenir finalement une relation entre la vitesse V et le gradient G . C'est le diagramme dit de Hunt. Le régime équiaxe apparaît soit lorsque la vitesse du front colonnaire V est suffisamment grande soit lorsque le gradient de température est faible. La figure (IV.24) illustre la forme de la courbe de transition entre les différentes structures, notamment colonnaire et équiaxe pour le cas de l'alliage Sn-3wt.%Pb solidifié sous une vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$ et une différence de température $\Delta T = 40K$. Afin d'examiner la validité du critère de Hunt sur la macrographie de cet alliage, deux niveaux ont été choisis : le premier est un niveau horizontal situé à mi-hauteur du lingot ($y = 3cm$) et le deuxième, un niveau vertical, situé dans la partie gauche du lingot à ($x = 1,5cm$). Les coordonnées des différents nœuds (gradient de température effectif et vitesse du front de solidification), sont déterminées à partir de la méthode des vitesses projetées, présentées dans l'annexe II (tableau II.5).

La figure (IV.24) montre clairement la bonne cohérence entre les limites tracées par le critère de Hunt donné par la formule (IV.25) et la morphologie de la macrostructure du lingot Sn-3wt.%Pb, notamment par les positions des différents nœuds des deux niveaux choisis sur le diagramme de Hunt (voir la figure IV.24). En effet, il est clair que les nœuds de L30 jusqu'à L27 sont situés dans une zone complètement colonnaire. En revanche, la transition colonnaire-équiaxe commence quasiment au voisinage du nœud L26, qui ensuite s'achève au voisinage du nœud L23 à une zone équiaxe, ce que nous a permis d'estimer que le blocage est activé au voisinage du moitié du lingot ($x = 55\text{mm}$) par rapport à ce niveau. Ainsi, tous les nœuds du niveau vertical choisi sont situés dans une zone caractérisée par une structure équiaxe correspond au dernier liquide à la fin de solidification.

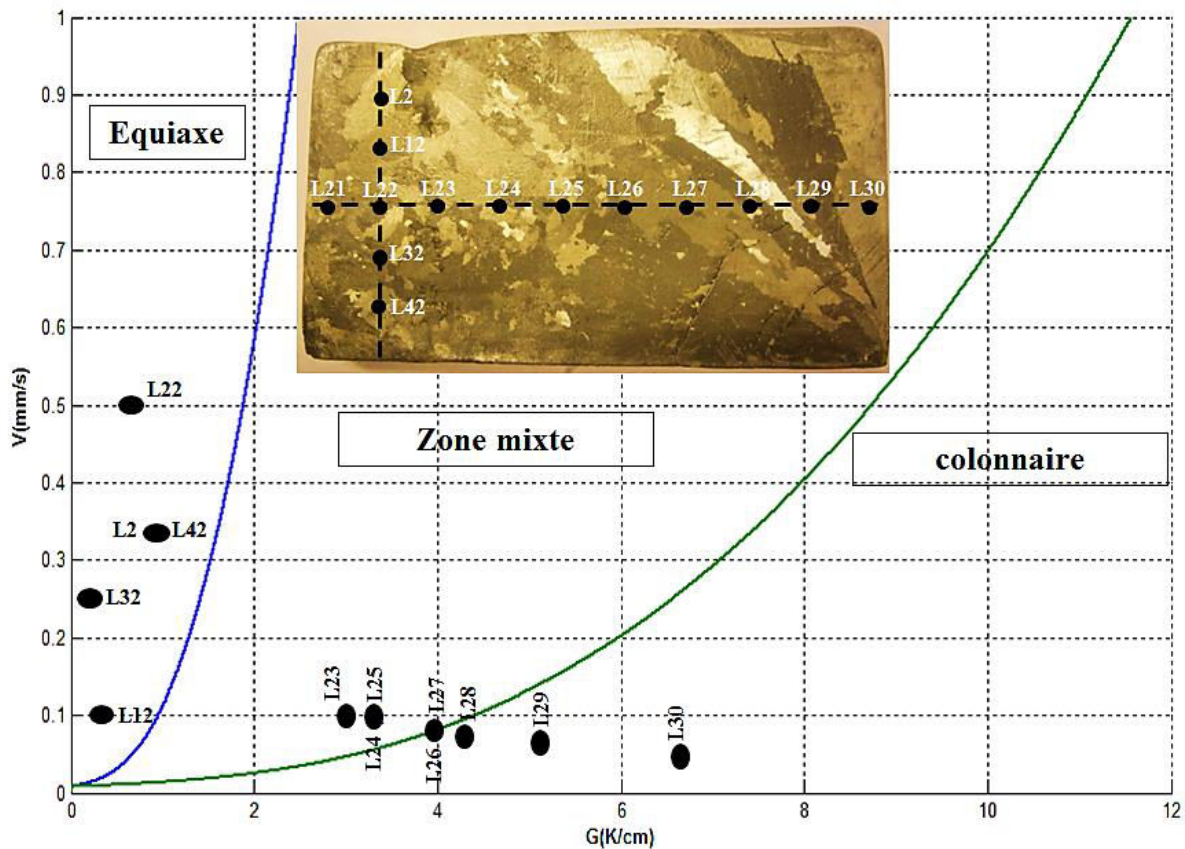


Figure. IV.24. Allure du diagramme de Hunt (limite supérieure donnée par l'équation (IV.25) montrant les zones d'existence des différents types de structure de solidification pour le cas d'un alliage Sn-3wt.%Pb. Condition expérimentales $\Delta T = 40\text{K}$ et vitesse de refroidissement $CR = 0,03\text{K/s}$. La vitesse du front est calculée à l'aide d'un modèle LKG. Les paramètres utilisés sont : $\Delta T_{ne} = 0,5\text{K}$, $k = 0,0656$, $m = -1,286 \text{ wt.\%}^{-1}$ et pour une valeur de densité de grains $n=2 \times 10^2$.

Il est important de noter que les macrographies de la figure (IV.23) illustrent très bien les mécanismes sous-tendus par le diagramme de Hunt. En effet on remarque que lorsque la vitesse de refroidissement est faible ($CR = 0,02K/s$), présentée sur la figure (IV.23-a) la structure dominante est de type colonnaire. Par contre, dans la figure (IV.23-c) on observe l'apparition d'une zone équiaxe due à deux raisons concomitantes traduites dans le diagramme de Hunt, à savoir d'une part la vitesse de solidification est plus grande ($CR = 0,04K/s$), et d'autre part la décroissance du gradient de température en fin de solidification est plus accentuée (partie gauche du lingot de la figure IV.23-c).

IV.4.3.3. Matrice de concentration par dissolution chimique

Une méthode chimique couplée à l'ICP (*Plasma à Couplage Inductif*) est utilisée pour l'analyse quantitative de la distribution de la concentration du plomb. Nous avons réalisé un carottage de 50 trous dans le lingot afin d'extraire des copeaux d'environ 10mg pour chaque prélèvement à analyser. La position des trous correspondant aux positions des thermocouples présentée dans la figure. (IV.25). Les analyses sont effectuées au centre national d'analyse à Lyon. La procédure d'analyse est la suivante : l'échantillon est dissous dans une solution HNO_3/HCl ($1-2 \times 10^{-3}$) puis la substance est chauffée lentement jusqu'à $100^\circ C$ et le produit est finalement analysé par la technique ICP AES (*Thermo-Scientifique ICAP 6500*). L'erreur relative sur les valeurs des mesures de la concentration est de $\pm 3\%$.

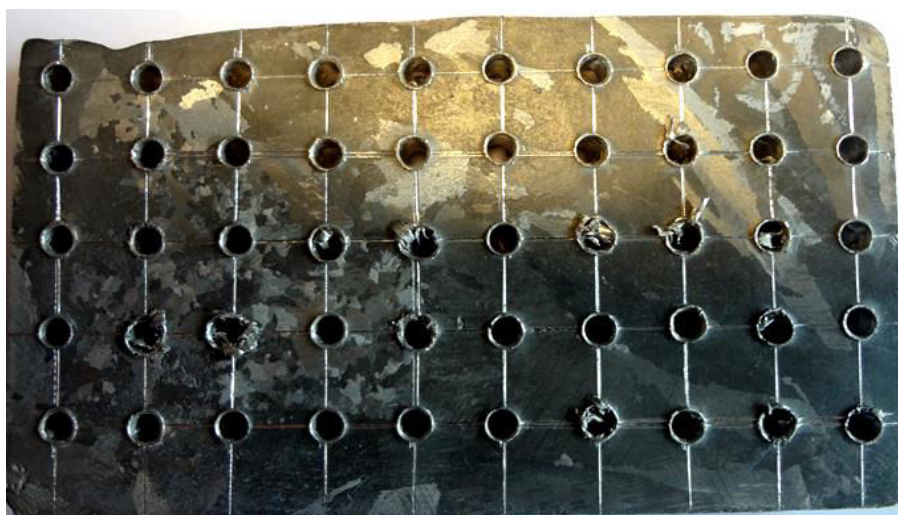
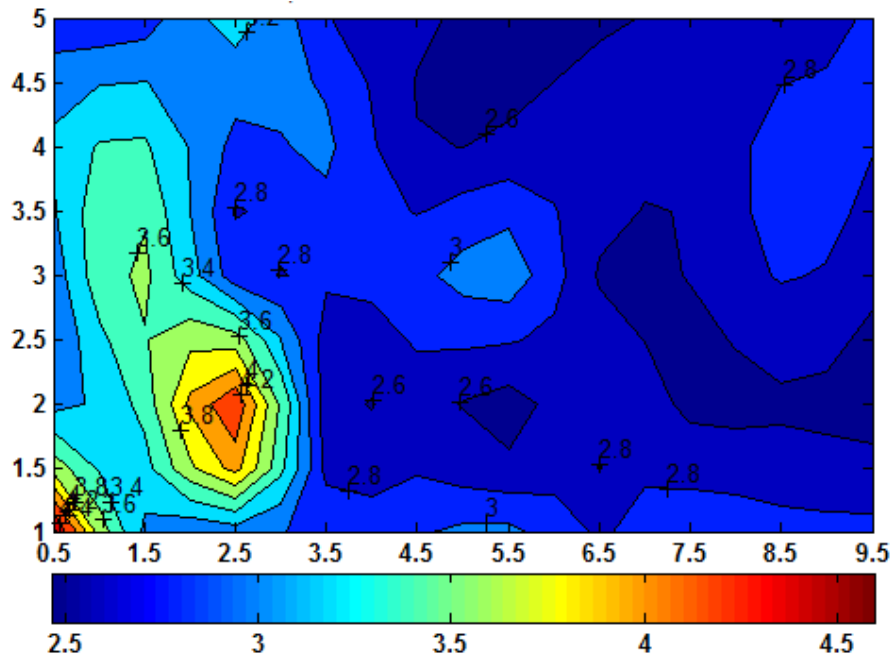


Figure IV.25. Photo d'un lingot carotté. Les positions des trous correspondent aux positions des thermocouples présentées dans la figure (IV.2). Les analyses chimiques couplées à l'ICP sont effectuées sur des copeaux d'environ 10mg, obtenus après chaque carottage.

Les résultats présentés dans la figure (IV.26) montrent la répartition de la ségrégation pour un cas de refroidissement pour $CR= 0,03K/s$ et une différence de température expérimentale moyenne $\Delta T=40K$. Le rejet de soluté commence à partir du côté droit de l'échantillon, de sorte que, à la fin de la solidification, une zone enrichie en plomb apparaît sur la partie inférieure gauche. Nous avons vérifié que la concentration moyenne sur tout le lingot mesurée était proche de la concentration nominale 3%. Les valeurs moyennes sont fournies dans la figure (IV.26) ainsi que les valeurs mesurées de la composition locale.



(a)

2.86	2.90	3.30	2.81	2.66	2.47	2.55	2.66	2.59	2.86
3.24	3.43	2.94	3.04	2.61	2.65	2.73	2.60	2.90	2.81
3.07	3.64	2.87	2.83	2.94	3.14	2.58	2.61	2.82	2.65
3.13	3.47	4.37	2.67	2.70	2.51	2.78	2.55	2.57	2.53
4.67	3.15	3.10	2.93	2.98	3.06	2.77	2.99	2.89	2.86

$Min = 2.47\%$; $Max = 4.67\%$; $Moy = 2.93\%$

(b)

Figure IV.26. Carte de concentration (a) et les valeurs numériques correspondantes (b) pour l'alliage Sn-3wt.%Pb. Différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40 K$, et vitesse de refroidissement $CR= 0,03 K/s$ (Réf LH5).

IV.4.3.4. Radiographie X

Des radiographies X ont été réalisées sur les différents lingots d'étain-plomb solidifiés. Elles ont été effectuées au CEA de Saclay (Paris). Les échantillons enserrés dans leur moule en plomb sont montrés sur la figure (IV.27-b). Les résultats obtenus sont présentés dans la figure (IV.28). Le principe des radiographies est basé sur la différence de densité entre étain et plomb qui entraîne des différences d'absorption des rayons X. Cela permet d'établir des cartes en niveaux de gris de la concentration en plomb du solide. Ces cartes sont moyennées sur l'ensemble de l'épaisseur de l'échantillon. Les zones les plus claires correspondent aux zones les plus riches en plomb, les zones les plus sombres aux zones les plus pauvres.

L'objectif principal est d'observer tous les types de macro-méso ségrégations, en particulier les distributions des canaux qui sont très difficiles à suivre du point de vue formation, forme géométrique et répartition. Le plomb absorbe facilement les rayons X, et le contraste de couleur gris donne une indication de la distribution du soluté à l'intérieur du lingot. Une zone de soluté riche en plomb est facilement visible et apparaît en blanc sur la photo. En raison de l'épaisseur relativement importante de l'échantillon, il a été nécessaire d'utiliser une configuration de puissance élevée (canon Philips MCN321, 300 kV).



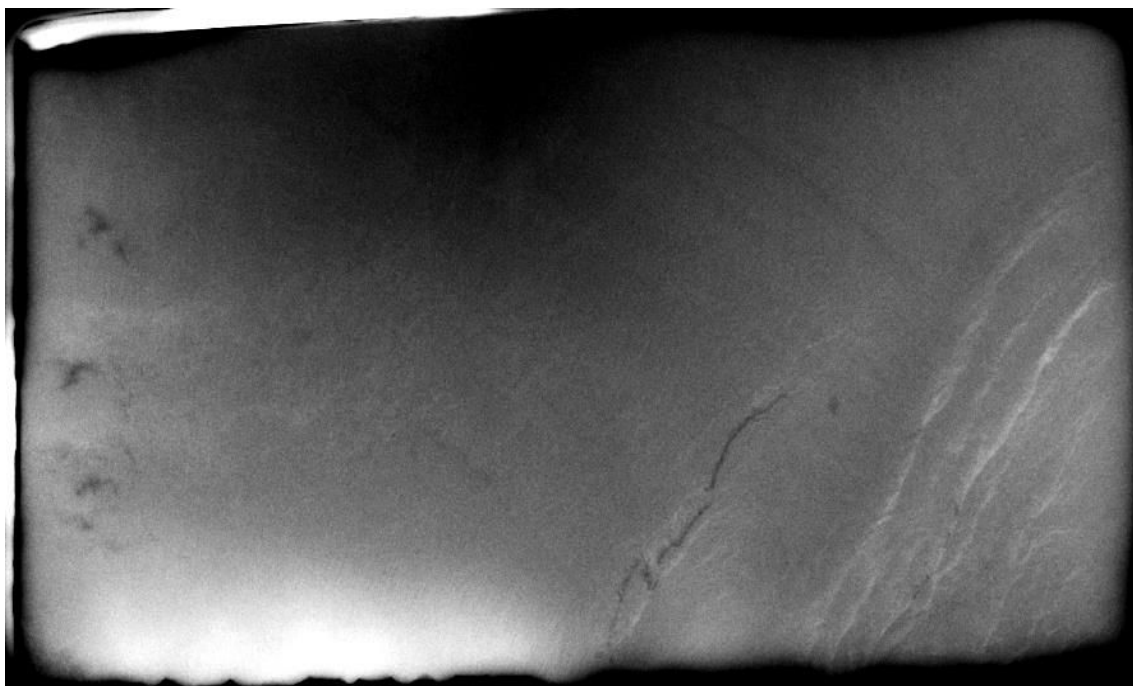
(a)



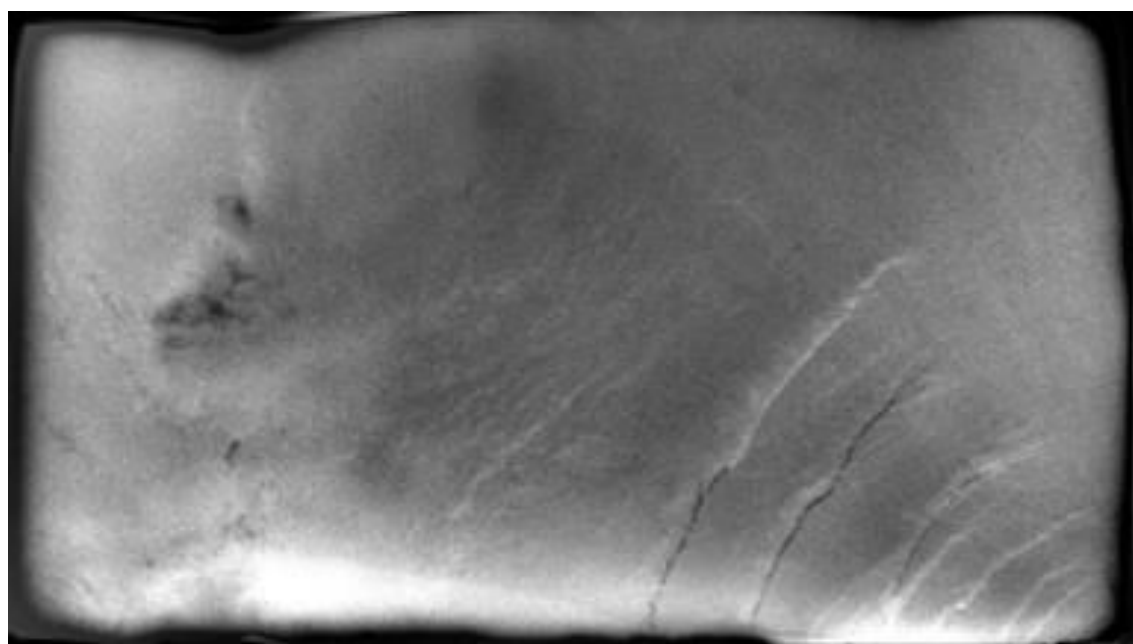
(b)

Figure IV.27. Photos : (a) du dispositif de la radiographie X, (b) des échantillons dans leurs moules.

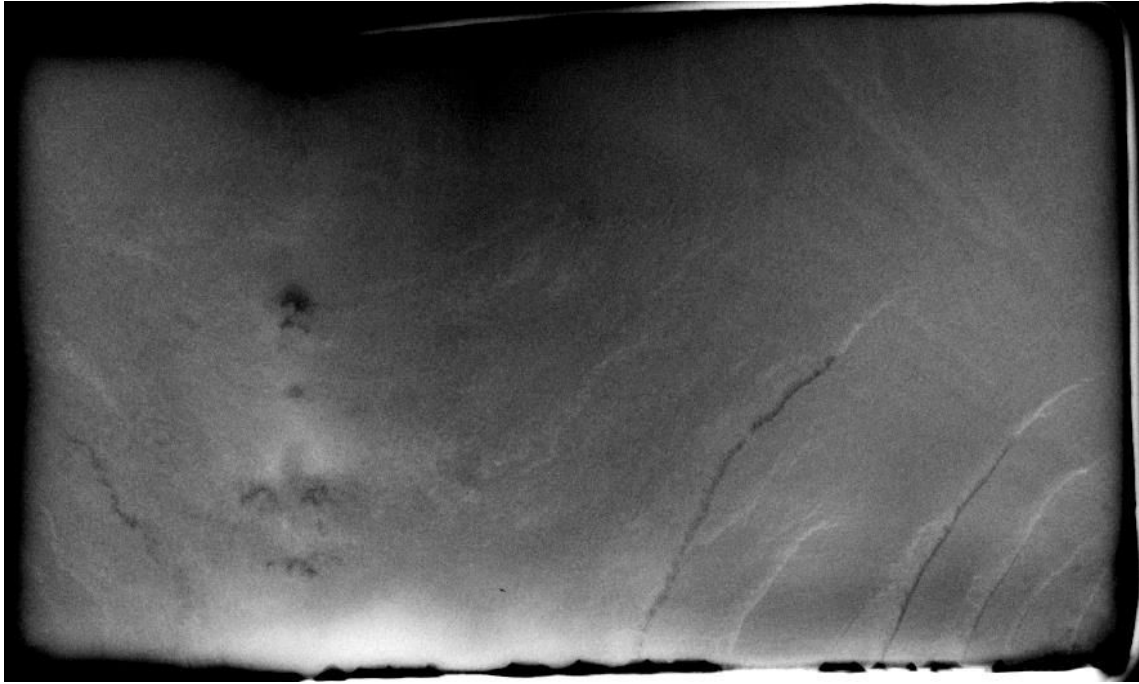
Les résultats expérimentaux illustrés par la figure (IV.28) confirment l'existence de plusieurs canaux ségrégés localisés dans la partie droite de l'échantillon (paroi dite froide), ainsi que des ségrégations réparties sur la partie inférieure gauche de l'échantillon qui représentent le liquide final solidifié. Les canaux ségrégés mesurent plusieurs centimètres en longueur et quelques dixièmes de millimètre d'épaisseur. Ces ségrégations sont probablement générées par le mouvement du fluide à l'intérieur de la zone pâteuse entraîné par la gravité s'exerçant sur l'élément solutal lourd (plomb). La convection naturelle transporte le soluté plus lourd dans la partie inférieure gauche du lingot. Le comportement du canal ségrégé dépend de la vitesse de refroidissement. Pour une lente vitesse de refroidissement (figure IV.28-a), le rejet global soluté est plus élevé. Le flux convectif a suffisamment de temps pour transporter le soluté de la zone pâteuse vers le liquide. Le même résultat a été observé par Quillet et al. [4] dans l'expérience de solidification réalisée sur l'alliage Sn-10wt.%Bi. Notons que la zone de la macroségrégation détectée par les analyses de radiographie X est localisée dans la partie inférieure gauche du lingot. Cela confirme qualitativement la mesure de la composition locale (ICP) de la figure. (IV.28). Toutefois, les deux techniques d'analyses ne sont pas entièrement comparables, en raison des effets de bords (zones noires autour des échantillons) dus au moule en plomb qui empêchent d'avoir une carte correctement délimitée.



(a) Sn-3wt.%Pb (Réf LH18)



(b) Sn-3wt.%Pb (Réf LH5)



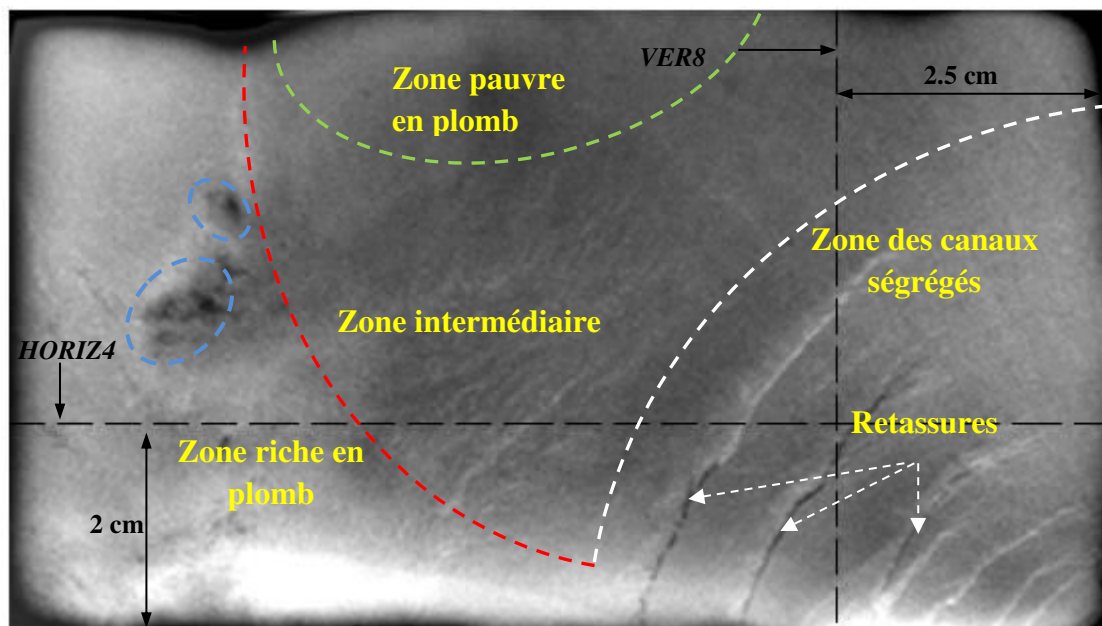
(c) Sn-3wt.%Pb (Réf LH13)

Figure IV.28. Radiographie X des lingots solidifiés montrant les ségrégations de plomb (en blanc) pour un alliage Sn-3wt.%Pb avec différentes vitesse de refroidissement. Les canaux ségrégés sont visibles dans la partie droite de l'échantillon. $\Delta T = 40K$, (a) $CR = 0,02K/s$, (b) $CR = 0,03K/s$, (c) $CR = 0,04K/s$.

Généralement, on peut distinguer quatre zones de répartition de concentration, comme il est indiqué sur le schéma démonstratif de la figure (IV.29), soit deux zones principales de ségrégation, une zone caractérisée par sa pauvreté en plomb et une zone intermédiaire. La première zone est située au tiers droit du lingot délimité par l'arc discontinu blanc qui représente la zone où il y a le plus grand nombre des canaux ségrégés. Elle est principalement due au fait que le soluté (le plomb) est plus dense que le solvant (l'étain). Il y a donc enrichissement en plomb de la partie inférieure. Cette zone est, dans sa partie gauche, alimentée en soluté par l'intermédiaire des canaux discernables sur les radiographies.

La deuxième zone délimitée par l'arc en ligne rouge discontinue est une zone majeure de ségrégation qui correspond à la zone du dernier liquide dont la concentration en soluté augmente au fur et à mesure de la solidification. Elle correspond à la ségrégation normale connue dans presque tous les processus de solidification des alliages métalliques. Dans cette

zone même il y a des endroits délimités par les cercles en bleu discontinu correspond aux points pauvres en plomb.



Figures IV.29. Schéma indicatif des quatre zones de répartition du plomb dans le lingot. Sn-3wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$ (Réf LH5).

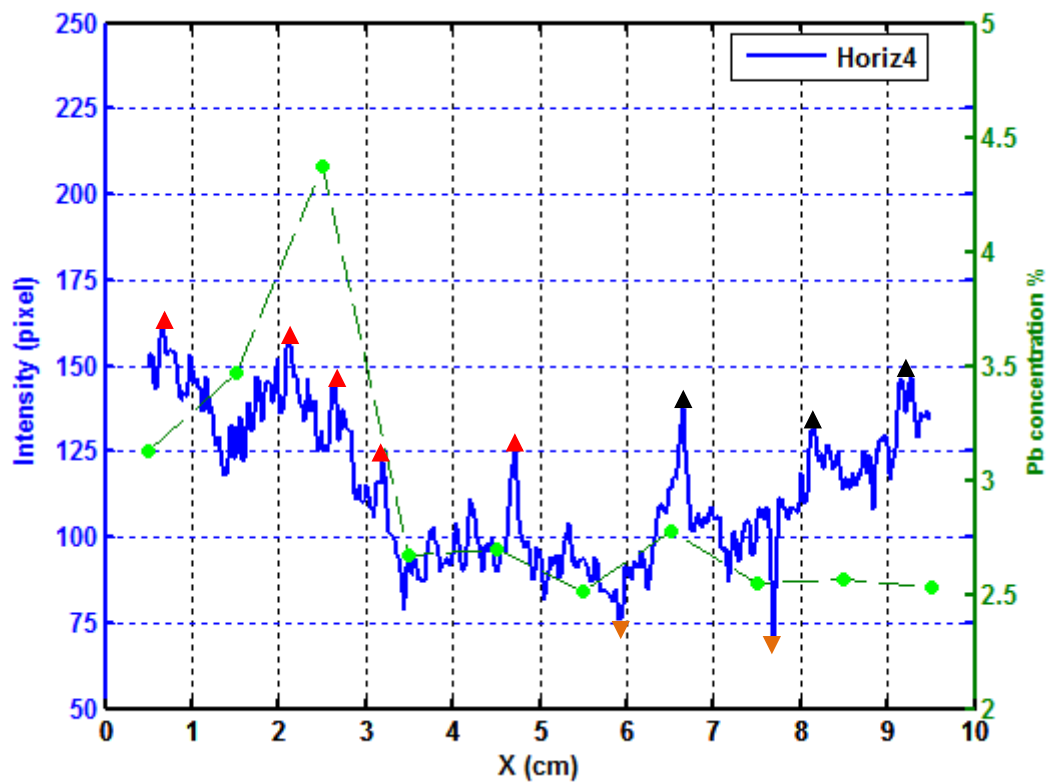
La troisième zone est située dans la partie centrale supérieure du lingot. Elle correspond environ à la partie délimitée par la ligne verte discontinue. C'est une zone marquée par les concentrations le plus basses en plomb et cela est expliqué probablement par l'effet de la densité du plomb (par rapport l'étain), rejeté par les couches de solide formées et puis transportée par la boucle de circulation vers le bas du lingot.

La dernière zone correspond à une zone intermédiaire qui est très difficile à délimiter parce qu'il s'agit d'une zone intermédiaire entre des zone très différentes en concentration. Il en va de même pour l'ensemble des zones pauvres en plomb en plein cœur des zones riches qui correspondent peut être à des zones de croissance équiaxe. Les cartes de macrostructure présentées dans la figure (IV.23) tendent à conforter ces explications.

Deux lignes ont été choisies afin de montrer la répartition du plomb dans la matrice d'étain en fonction des niveaux de pixels obtenus à partir du traitement d'image de la radiographie X et des résultats de concentration obtenus par les analyses chimique. Il s'agit de la ligne horizontale située à 2cm d'hauteur nommée (HORIZ4) et la ligne verticale (VER8) située à une distance de 7,5cm longitudinalement. Le choix de ces deux lignes est justifié par

le fait que ces dernières traversent des zones de ségrégation et de formation des canaux ségrégés, ainsi que des retassures.

Il est facile de détecter les pics dans la figure (IV.30) sur la courbe d'intensité présentée par la ligne bleue qui correspondent aux points riche en plomb. En effet, les pics marqués par les triangles rouges représentent des zones de ségrégation où le niveau de pixel est supérieur à 120, les autres pics marqués par des triangles noirs sont des endroits où il y a une formation des canaux ségrégés, par contre les pics vers le bas marqués par des triangles marrons correspondent aux retassures créées au voisinage des canaux ségrégés ou de zones sensiblement pauvres en plomb, le niveau de pixels est inférieur à 90.

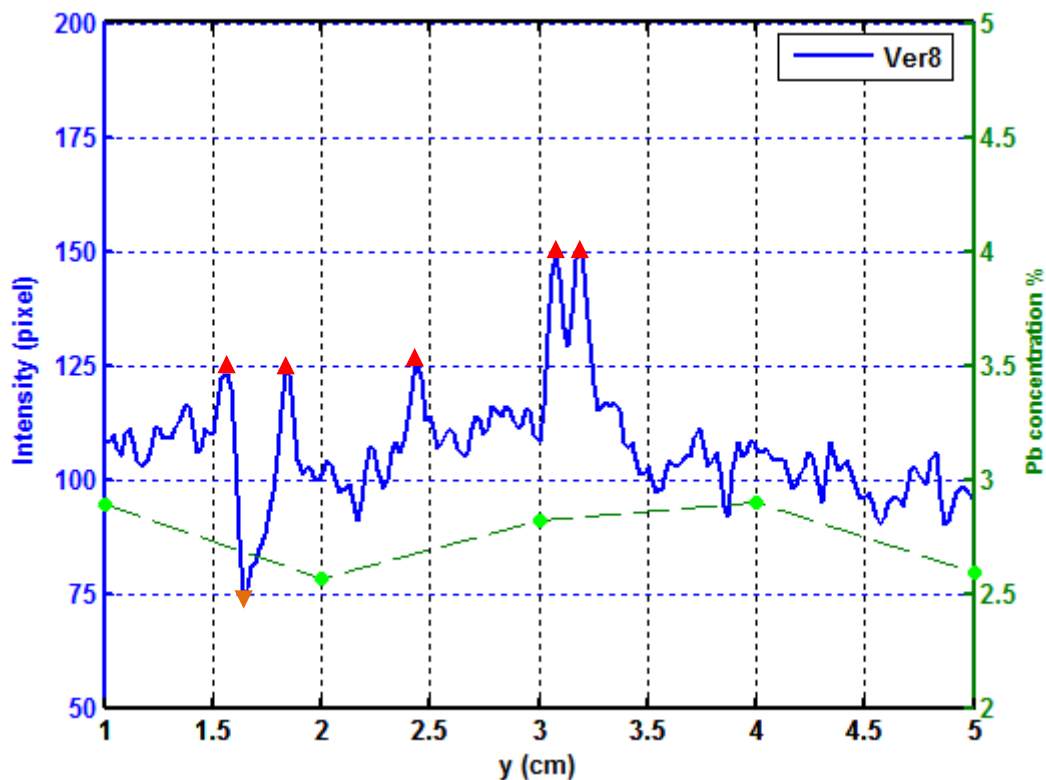


Figures IV.30. Évolution de l'intensité exprimée en niveau de pixels et de la concentration du plomb obtenue par les analyses chimiques couplées à ICP en fonction de la longueur de l'échantillon pour le niveau horizontal situé à 2 cm de hauteur (Horiz4). Les points verts représentent les mesures de composition par ICP. Sn-3wt. %Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$ (Réf LH5).

La figure (IV.30) montre également la bonne cohérence entre les résultats obtenus par radiographie X et ceux obtenus par les analyses chimiques, excepté dans la zone de formation des canaux ségrégés. Les analyses chimiques ne présentent aucun indice de l'existence des

canaux dans ce cas et cela est dû probablement aux tailles fines des canaux par rapport au diamètre des trous ($3mm$), ainsi qu'au positionnement des trous différents des endroits exacts de formation des canaux.

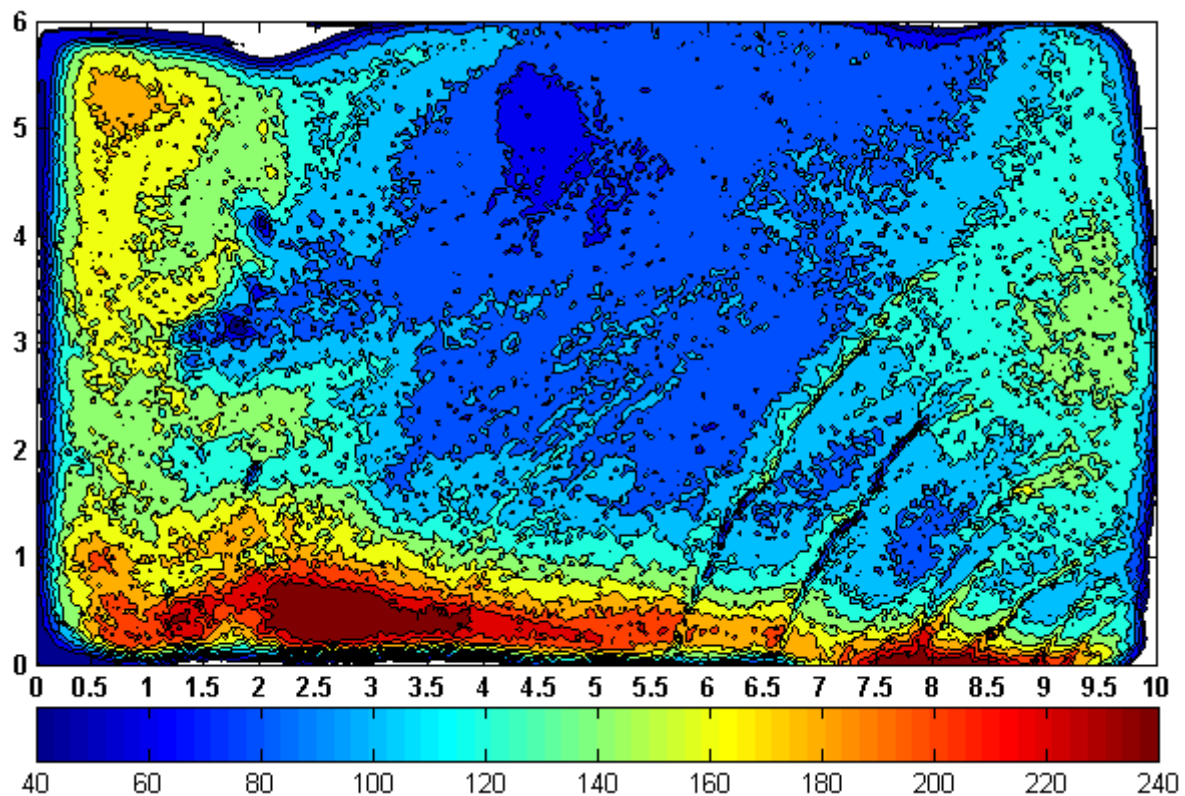
La figure (IV.31) présente la variation de l'intensité en pixels et de la concentration du plomb (méthode ICP) en fonction de la hauteur du lingot à la position longitudinale $7,5cm$ (VER8). Cette figure montre clairement la pauvreté en plomb de la zone supérieure par rapport le bas du lingot. On remarque que le niveau des pixels ne dépasse pas $110 pixels$ dans la partie supérieure situé entre $3,5$ et $5cm$. Puis il s'ensuit une augmentation graduelle jusqu'à atteindre la zone où l'on localise deux pics entre 3 et $3,5cm$ avec un niveau d'intensité d'environ $150 pixels$. D'autres pics sont localisés à $1,6$, $1,8$ et $2,4cm$ respectivement présentant un niveau d'intensité de $125 pixels$. Ces endroits sont caractérisés par la formation des canaux ségrégués. La figure montre également, une retassure marquée par un niveau très bas d'intensité ($\approx 75 pixels$), localisée approximativement à $1,7cm$.



Figures IV.31.

Évolution de l'intensité exprimée en niveau de pixels en fonction de la hauteur de l'échantillon pour le niveau vertical situé à $7,5 cm$ de longueur (VER8). Les points verts représentent les mesures de composition par ICP. Sn-3wt.%Pb (Réf LH5), $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

Le traitement numérique des images nous a permis également d'obtenir les cartes des concentrations exprimées en niveau pixels. La figure (IV.32) présente le cas de l'expérience de solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb (Réf LH5) sous l'effet de la convection thermosolutale avec les conditions expérimentales ($\Delta T = 40K$ et $CR = 0,03K/s$). Notons que la matrice d'intensité globale présente une moyenne d'environ 101,43 en niveau de pixels qui correspond théoriquement à la concentration nominale obtenue par les analyses chimiques couplée à l'ICP qui vaut 2,93%. Les canaux ségrégés sont apparus avec des contours qui varient entre environ 120 et 140 en niveaux de pixels. Ils présentent presque la même forme de courbure. Comme précédemment, on peut repérer une région riche de plomb située à mi-hauteur du premier quart droit du lingot qui donne la naissance aux canaux ségrégés par rejet du soluté (plomb). Sous l'effet de la boucle de la convection thermosolutale transportant le plomb dans la zone pâteuse, le drainage du plomb s'oriente vers le bas sous forme d'arc de différents rayons dépendant fortement à la forme et la vitesse d'avancement du front colonnaire.



Figures IV.32.

Carte des contours des iso-concentrations exprimées en pixels. La figure montre également les quatre zones de la répartition moyennée sur l'épaisseur. Sn-3wt. %Pb (Réf LH5), $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

Les quatre zones de répartition de la concentration sont bien montrées sur la carte des iso-concentrations. Les régions de fortes concentrations sont localisées d'une part dans le bas de la première zone de ségrégation (entre 7,5 et 9,5cm), comme un « *pied* » alimenté par les cinq premiers canaux et d'autre part à la base de la deuxième zone de ségrégation (entre 1,5 et 5cm), représentées par des surfaces de iso-concentrations de couleurs variant entre le rouge et le marron avec un niveau d'intensité variant entre 220 et 240 *pixels*. La zone la plus pauvre en plomb est localisée comme prévu dans la partie centrale supérieure (zone délimitée par l'arc jaune discontinu), avec un niveau d'intensité varie entre 40 et 60 *pixels*. Le reste de la carte peut être considéré comme une zone intermédiaire (gamme entre 60 et 110 *pixels*).

IV.4.3.5. Radiographie X sur les coupes transversales

L'imagerie de radiographie X effectuée sur les lingots de l'alliage étain-plomb nous a permis d'avoir une idée claire de la répartition de plomb moyennée sur l'épaisseur du lingot. Par ailleurs, il existe des interrogations sur la taille et la forme géométrique des canaux et les zones de ségrégation selon la direction transversale du lingot. Afin de répondre à cette interrogation, on a réalisé d'autres imageries de radiographie X sur des coupes transversales pour quelques échantillons choisis. Rappelons que les coupes sont réalisées après les analyses chimiques couplées à l'ICP (analyse destructive), ce que nous a obligé à éliminer les colonnes des trous de perçage, pour éviter d'avoir des artéfacts sur la résolution numériques des photos. La procédure de la coupe est présentée sur la figure (IV.33). Pour chaque échantillon on récupère 9 tranches, d'épaisseur varie entre 5 et 5,6mm, cette variation est due au décalage des centres des trous. La hauteur varie entre 5,5 et 6cm (effet de la retassure dans la dernière partie solidifiée), par contre toutes les tranches ayant une longueur fixe de 1cm (épaisseur du lingot).

Notons que la variation de l'épaisseur des tranches crée une interprétation différente de la même couleur d'une tranche à l'autre. En effet, cette solution est un compromis entre la réalisation d'une gamme complète d'imagerie de R-X avec des tranches identiques, en excluant des analyses qualificatives importantes comme celle du dosage par dissolution ou avoir une série complète d'analyse post-mortem mais avec des coupes ayant le défaut de variation de l'épaisseur. Rappelons que l'objectif primordial de ces analyses effectuées est de réaliser une étude expérimentale analytique et aussi comparative sur le phénomène de la mésoségrégation à travers plusieurs angles de vision (thermique, statistique, analyses chimique et R-X).

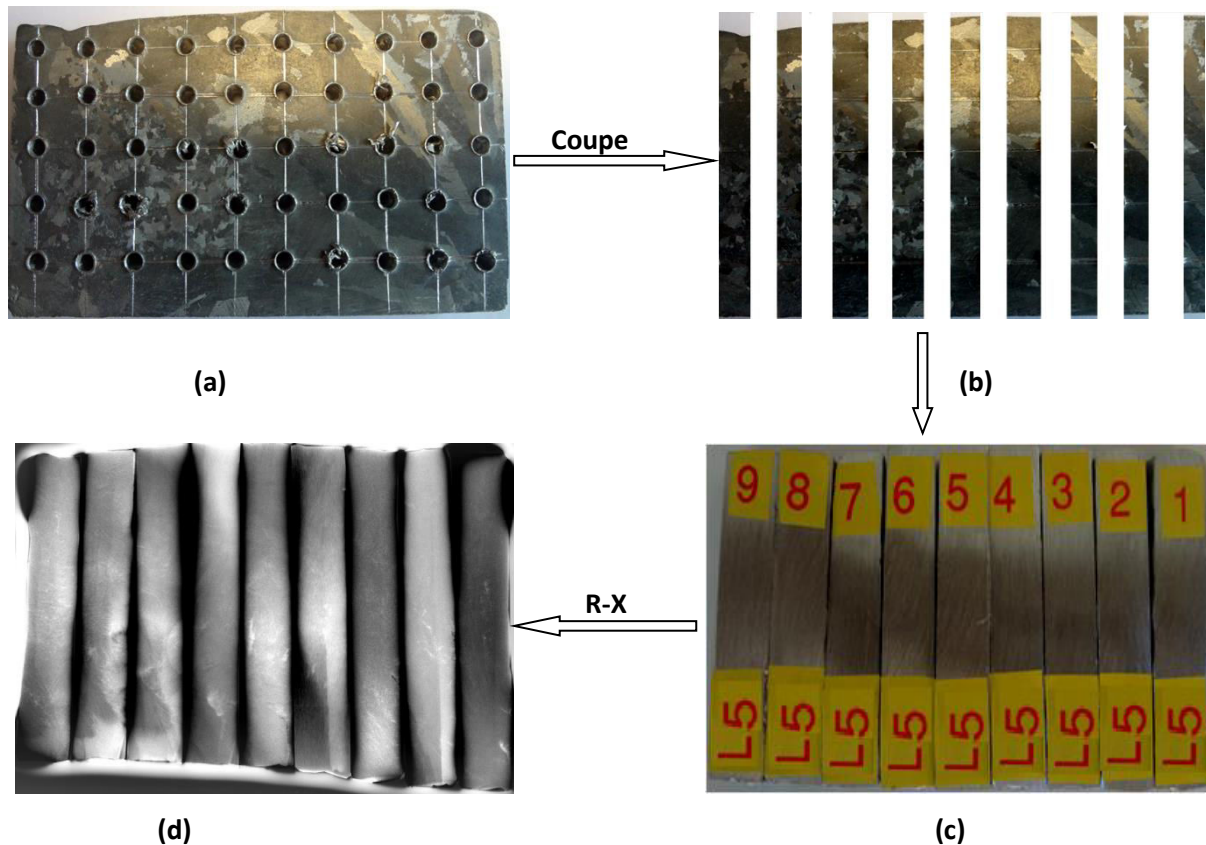
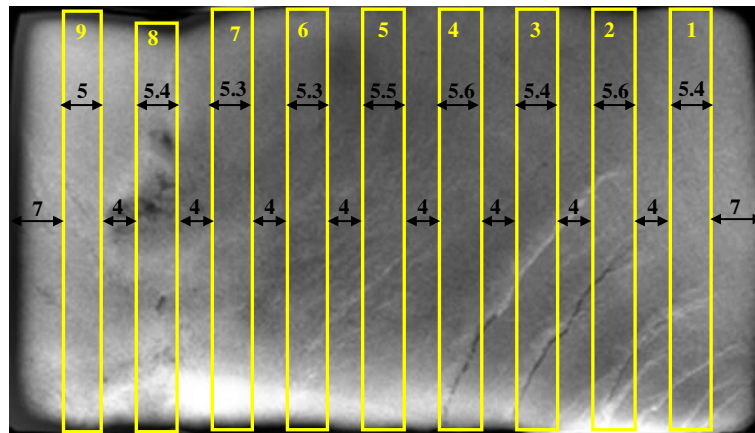


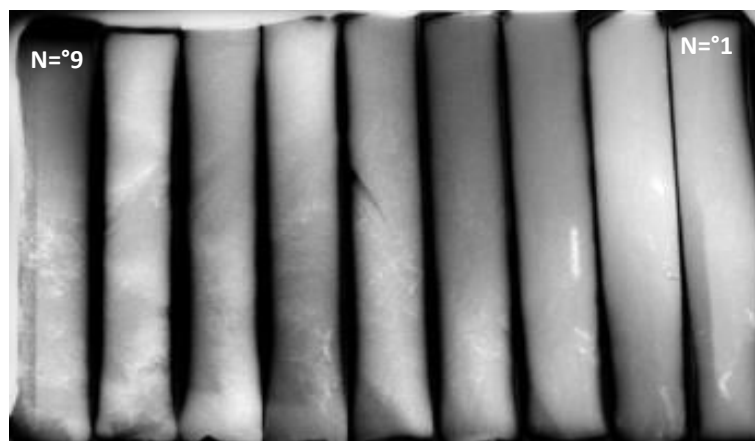
Figure IV.33. Exemple illustratif de la procédure de préparation des coupes transversales pour la radiographie X : (a) échantillon après le carottage, (b) les 9 tranches récupérées après la coupe, (c) configuration des tranches pour les analyses (R-X) et (d) images de radiographie X pour les 9 tranches. Sn-3wt.%Pb (Réf LH5), $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

Les résultats de la radiographie X correspondant à l'expérience de solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb (Réf LH5) sont présentés dans la figure (IV.34). Les contours des iso-concentrations de cette expérience montrent que la majorité des canaux a tendance à ségréger au centre à mi-épaisseur du lingot comme le montre la figure (IV.34-b) sur les tranches 1 et 2. Le dernier liquide riche en soluté (plomb) est bien repéré dans les tranches 7, 8 et 9, notamment une zone de forte concentration situé au moitié supérieur de la neuvième tranche. Le pied des sept canaux ségrégés de la première zone, est bien confirmé dans la troisième et la quatrième tranche. Les tranches numéro 5 et 6 qui sont situées presque au centre du lingot montrent clairement la zone pauvre en plomb, dans sa moitié supérieure. Elles montrent également des canaux développés au centre ce qui n'est pas trop visible dans la carte d'iso-concentration présentée dans les figures (IV.29 et IV.32). Cela est dû probablement à son épaisseur fine.

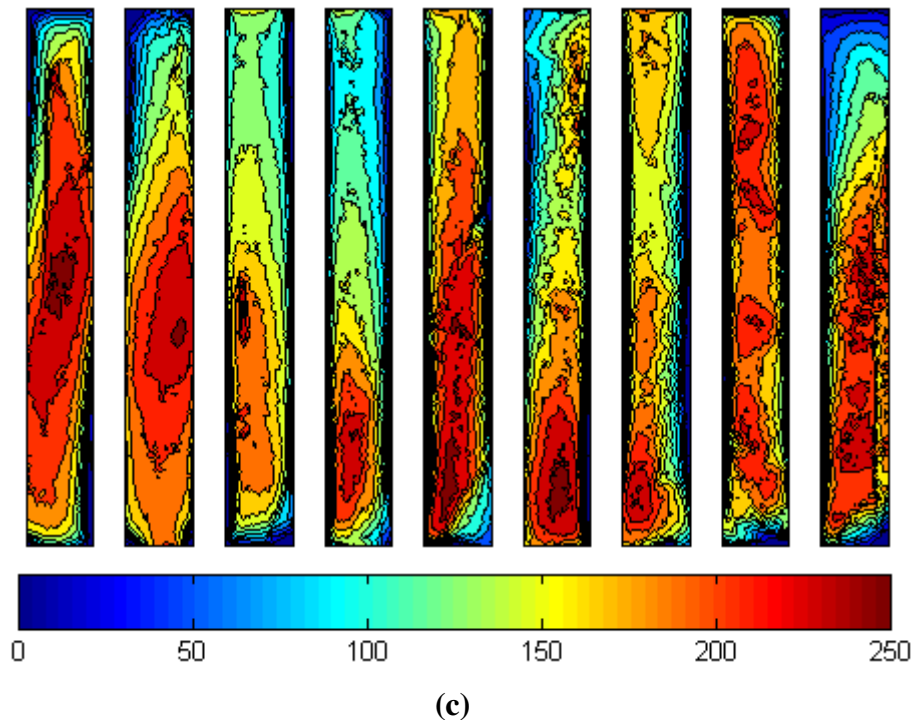
Il est très important de noter que la majorité des canaux ségrégués se développe sous forme quasi-tubulaire proche au centre du lingot comme il est observé sur la deuxième tranche traversée par quatre canaux ségrégués.



(a)



(b)



Figures IV.34. Position des coupes transversales (a) ; Radiographie X des coupes transversales (b) ; Carte des contours des iso-concentrations (c) ; Expérience. Sn-3wt.%Pb (Réf LH5), $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$. les neuf tranches sont numérotées de droite à gauche.

IV.4.3.6. Structure des grains et fraction eutectique

Des analyses autres que les radiographies et les dosages par dissolution ont été réalisées afin d'établir des cartes de structure des grains et pour vérifier le positionnement des canaux ségrégés dans l'épaisseur du lingot. La figure (IV.35) illustre les iso-contours des grains de l'expérience Sn-3wt.%Pb, présentée dans le travail de L. Hachani et al [2]. Cette expérience a été réalisée sous l'effet de la convection naturelle et sous les conditions expérimentales ($\Delta T = 40K$, $CR=0,03K/s$). L'analyse a été réalisée au centre de recherche *Critt METALL 2T* à Nancy. Le polissage de l'échantillon a été effectué selon une procédure spécifique aux alliages à base d'étain (polissage à l'aide d'une suspension d'éthylène-glycol) et attaque chimique à l'aide d'une solution composée de 80% de glycol, 10% d'acide nitrique et 10% d'acide acétique. Le temps d'attaque a été fixé à 10 secondes, suivi d'un rinçage à l'eau puis au méthanol. Les observations sur la macrostructure présentent une différence significative entre les tailles de grains. Les caractéristiques géométriques de la macrostructure sont résumées dans l'annexe II (Tableau II.8).

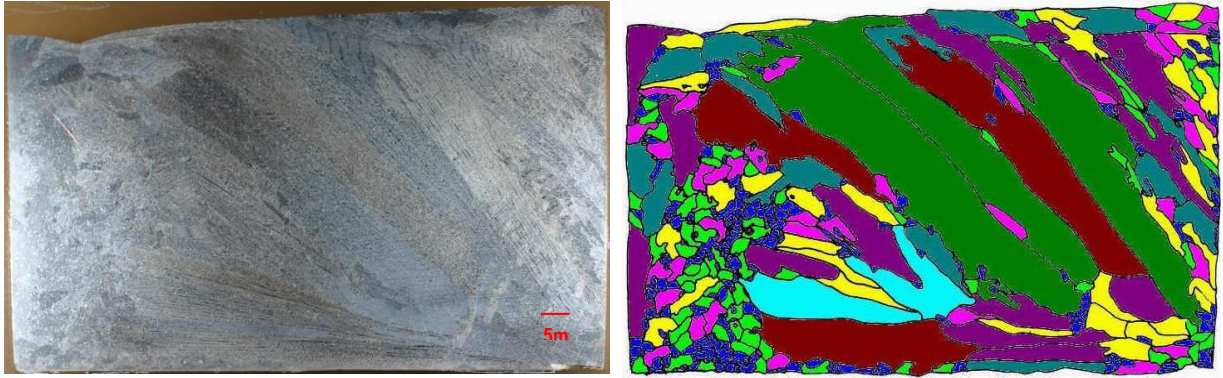


Figure IV.35. Carte des contours des grains. Alliage Sn-3wt.%Pb, $\Delta T=40K$, $CR=0,03K/s$, L. Hachani et al [2].

La surface moyenne de la microstructure grain (cf. figure. IV.35) est $s = 6,63.10^{-3}mm^2$. Nous avons caractérisé l'espacement secondaire SDAS (*Secondary Dendrite Arm Spacing*) de ces alliages par des mesures surfaciques des dendrites et branches dendritiques. En effet, nous avons seillé la solution solide primaire « non attaquée » et réalisé nos mesure à l'aide d'un grossissement $\times 25$. Ces mesures par seillage des dendrites sont illustrées en exemple sur la planche micrographique présentée sur la figure (IV.36) ci-dessous. L'espacement secondaire des bras dendritiques (λ_2) a été mesuré dans trois zones de l'échantillon (partie gauche, au milieu et à droite). Les résultats sont donnés dans l'annexe II (Tableau II.9). Chaque valeur représente une moyenne de 25 mesures effectuées. Les résultats montrent que l'espacement varie entre 90 et 99 μm .

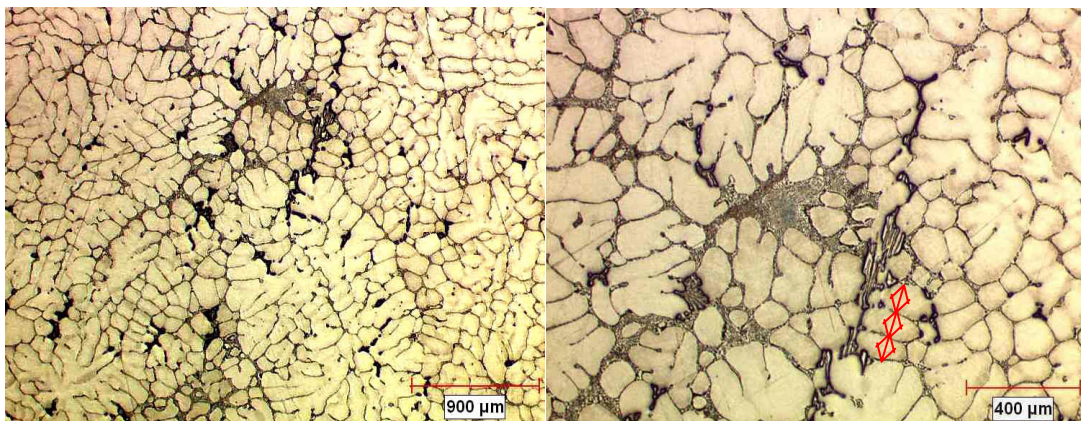


Figure IV.36. Planche micrographique de représentations de quelques mesures de SDAS (λ_2) réalisées sur les faciès microstructuraux de l'échantillon Sn-3wt.%PB, L. Hachani et al [2].

La figure (IV.37) illustre la répartition de la fraction eutectique mesurée dans le plan médian. Les conditions expérimentales sont $\Delta T = 40K$ et $CR = 0,03K/s$. L'attaque chimique a pour effet de noircir la phase eutectique de ces alliages. La mesure du pourcentage surfacique d'eutectique s'est fait par seuillage de celui-ci, à l'aide d'un grossissement $\times 200$. Un tableau avec les valeurs des fractions eutectiques est présenté à l'annexe II (tableau II.10). La fraction eutectique de cette expérience peut atteindre 14% pour la zone la plus riche. Comme prévu, cette région correspond à la fois à l'emplacement des canaux ségrégués et le liquide solidifié riche en soluté.

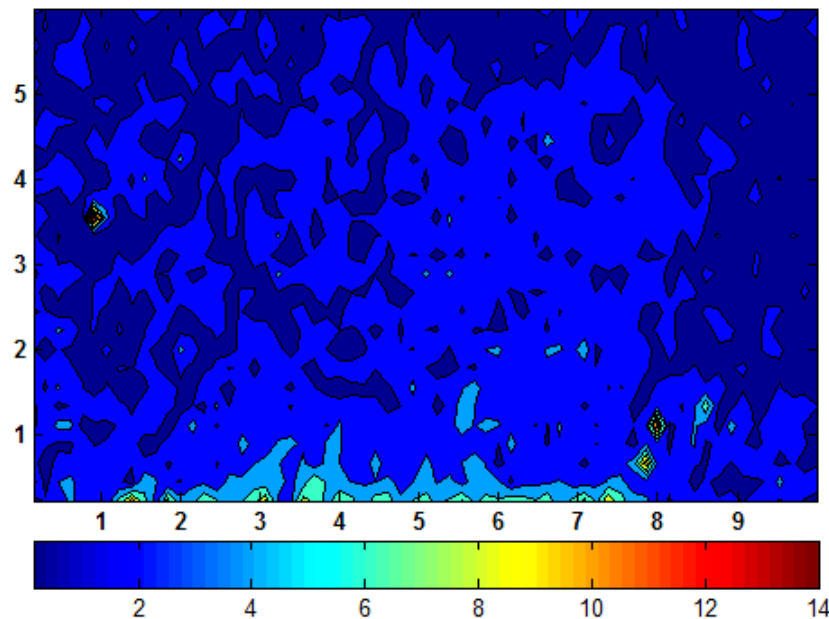


Figure IV.37. Mesures de la fraction eutectique de l'alliage Sn-3wt.%Pb. Les conditions expérimentales sont $\Delta T = 40K$ et $CR = 0,03K/s$, L. Hachani et al [2].

IV.4.4. Expériences de solidification réalisées sur l'alliage Sn-10wt.%Pb

Une troisième série d'expérience de solidification sous l'effet de la convection thermosolutale avec une concentration plus élevée (10%), a été réalisée sur l'alliage étain-plomb. Les différentes expériences sont présentées dans l'annexe II (Tableau II.11).

L'objectif essentiel de cette série porte trois volets :

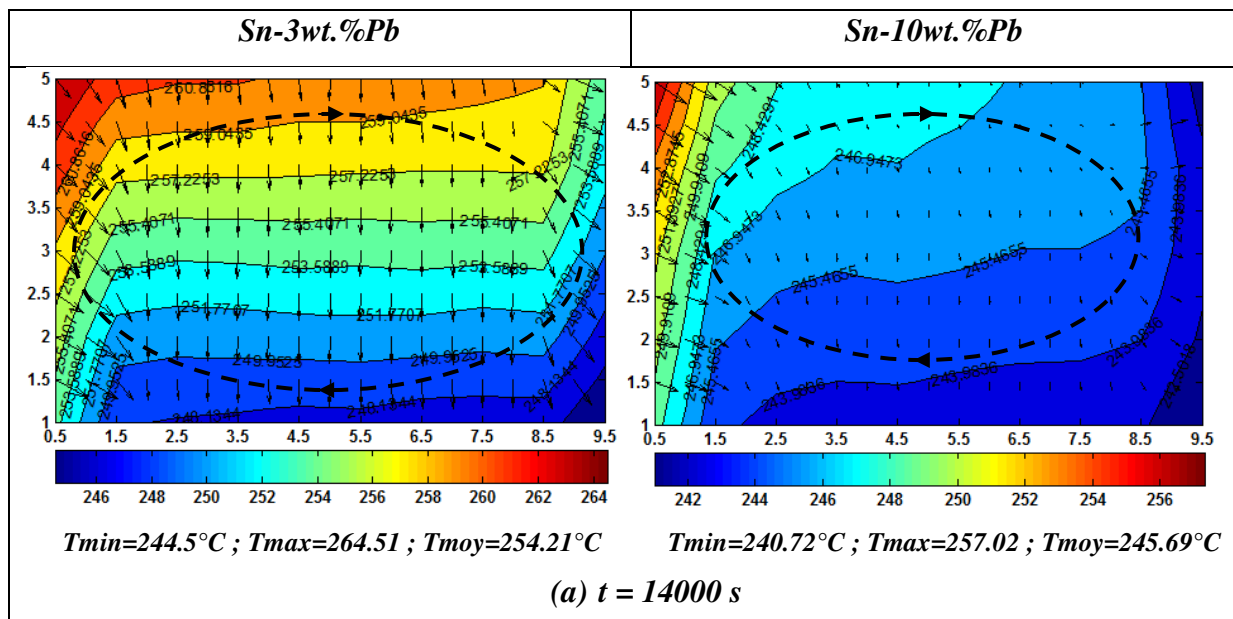
- 1- Etudier l'effet de la variation de concentration sur la macroségrégation notamment sur la formation des canaux ségrégués (forme et position).
- 2- Etudier l'effet de la stratification sur les processus thermique et dynamique ainsi que sur la structure cristalline finale.
- 3- Etudier l'effet de la variation de la vitesse de refroidissement sur le processus de solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb.

IV.4.4.1. Effet de la variation de la concentration

Une étude comparative entre deux expériences de solidification de deux alliages à différentes concentration (Sn-3wt.%Pb et Sn-10wt.%Pb), a été réalisée sous les mêmes conditions expérimentales ($\Delta T = 40K$ et $CR = 0,03K/s$) et pour le même processus expérimental présentée précédemment sur la figure (IV.14). L'objectif de cette étude est d'étudier l'effet de la variation de la concentration sur le processus de la solidification sur différents aspects, thermique, dynamique et morphologie de structure.

La figure (IV.38) présente une comparaison entre les cartes thermiques à différents instants choisis, pour les deux alliages. Les valeurs numériques correspondantes sont données dans le tableau (II.12) de l'annexe II.

Les cartes thermiques montrent clairement que la boucle de la convection est bien établie dans le cas de l'alliage Sn-3wt.%Pb mieux que dans celui de l'alliage Sn-10wt.%Pb ce qui est visible sur la figure (IV.38-a). En effet, l'instant $t = 14000s$ représente le début de refroidissement, l'écart thermique entre la température maximale et minimale pour le cas de l'alliage Sn-3wt.%Pb est supérieure à $20^{\circ}C$, par contre il ne dépasse pas $17^{\circ}C$ dans le cas de Sn-10wt.%Pb, en raison de la convection qui favorise le transfert thermique entre le lingot et les deux échangeurs. Notons qu'il y a un effet possible de freinage exercé sur la boucle de convection dans le cas de l'alliage Sn-10wt.%Pb, dû à la stratification du plomb à la base du creuset, sachant que les deux alliages ont subi le même brassage électromagnétique pendant $1h\ 20mn$ au cours de la première phase de stabilisation avant l'application de la différence de température expérimentale moyenne ($\Delta T = 40K$).



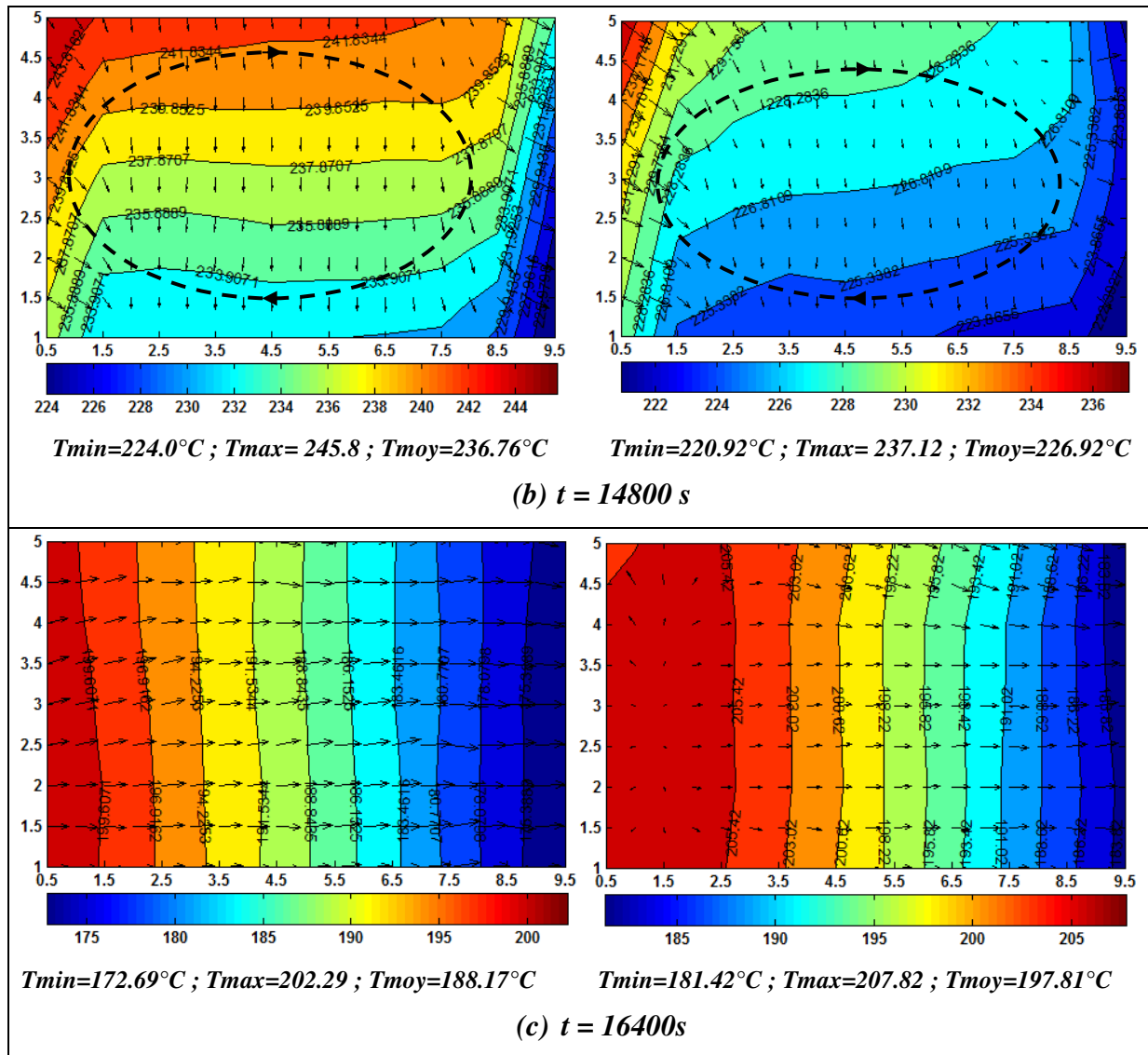


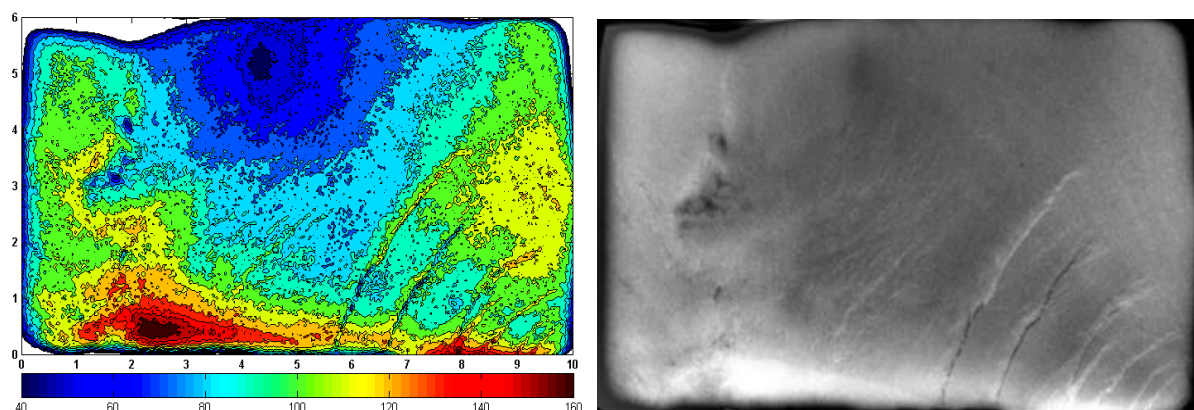
Figure IV.38. Evolution temporelle des champs de température à différents instants choisis. À gauche carte thermique de l'alliage Sn-3wt.%Pb (Réf LH1) et à droite l'alliage Sn-10wt.%Pb (Réf LH19). Conditions expérimentales : différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40\text{K}$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03\text{K/s}$.

A $t = 14800\text{s}$, nous remarquons que les isothermes de la carte thermique de l'alliage Sn-3wt.%Pb ont commencé à se redresser pour être des lignes verticales (voir la figure (IV.38-b), ce que signifie l'apparition des première couches solidifiées complètement à droite du lingot. A cet instant la température des isothermes verticaux de l'alliage Sn-3wt.%Pb correspond à 224°C qui est inférieure à sa température de liquidus ($T_L = 228.14^{\circ}\text{C}$), par contre la carte de l'alliage Sn-10wt.%Pb présente un minimum de 220.92°C , supérieur à la

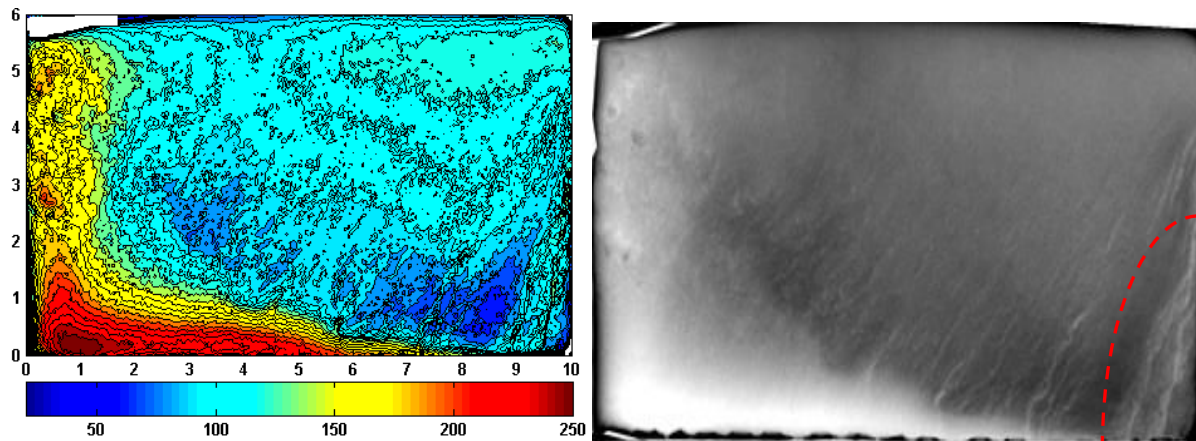
température de liquidus de cet alliage qui vaut 219.6°C donc l'échantillon est complètement liquide.

Le dernier instant choisi ($t = 16400^{\circ}\text{C}$), présenté sur la figure (IV.38-c), correspond à la dernière étape de solidification pour l'alliage Sn-3wt.%Pb, tel que, la carte thermique présente une température moyenne de $188,88^{\circ}\text{C}$ proche de la température eutectique ($T_E = 183^{\circ}\text{C}$). Les vecteurs du gradient thermique local, sont presque identiques, ce que confirme la dominance de la conduction comme régime de transfert thermique. Par contre, celle de l'alliage Sn-10wt.%Pb avec sa température moyenne de $197,81^{\circ}\text{C}$, fait apparaître l'existence d'une boucle de convection encore active complètement à gauche correspondant au dernier liquide du lingot.

Une deuxième étude comparative par le biais des radiographies X des deux lingots (Sn-3wt.%Pb et Sn-10wt.%Pb), a été réalisée et présentée dans la figure (IV.39). L'effet de la concentration est très significatif sur la ségrégation du plomb dans le lingot Sn-10wt.%Pb par rapport au Sn-3wt.%Pb. On remarque une large zone de stratification étalée sur la partie basse du lingot de concentration 10%. Par contre cette zone de ségrégation, comme vu précédemment, apparaît dans le dernier liquide à la fin de solidification dans l'alliage Sn-3wt.%Pb. Cependant, nous remarquons que les canaux ségrégés sont plus nombreux, de taille fine et bien espacés dans le cas de du lingot de concentration 3% par rapport au cas 10%. Les quatre zones de répartition de la concentration sont presque identiques s'agissant des deux alliages (les deux zones de ségrégation, la zone pauvre en plomb et la zone intermédiaire).



(a) Sn-3wt.%Pb (Réf LH5)

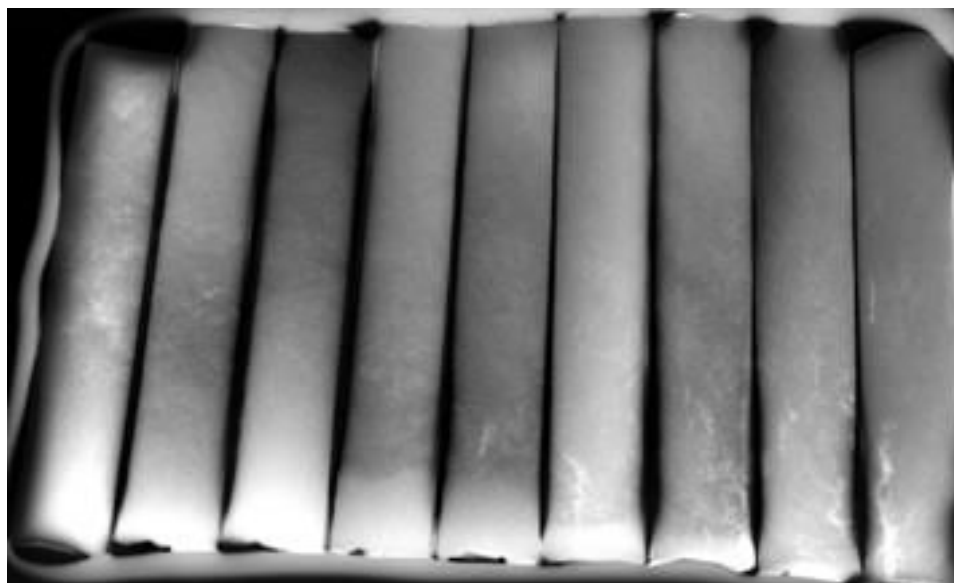


(b) Sn-10wt.%Pb (Réf LH19)

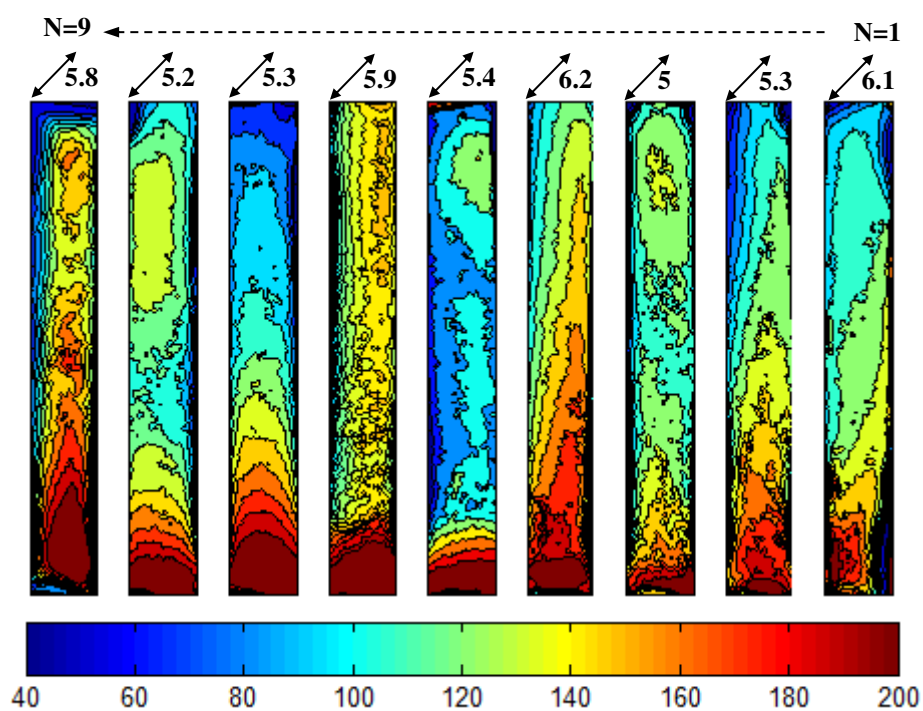
Figure IV.39. Photos de radiographie X à gauche, avec son traitement d'image à droite : (a) Sn-3wt.%Pb (Réf LH5), (b) Sn-10wt.%Pb (Réf LH19). Conditions expérimentales : différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$.

Il est très important de noter qu'à travers cette imagerie en radiographie X, il est difficile de donner une description claire du mécanisme de formation de la zone de haute concentration repérée complètement à droite dans le cas du lingot de concentration 10% (zone délimitée par la ligne rouge discontinue). Il est difficile de savoir, s'il s'agit d'une zone de ségrégation par stratification du plomb ou bien un empilement d'un ensemble de canaux ségrégés bien superposés selon l'épaisseur du lingot. Un recours aux images de rayon X sur les coupes transversales de ce lingot s'avère indispensable afin de confirmer ou de nuancer l'une de ces hypothèses.

Les photos de la radiographie X avec leur traitement d'images associé présentées dans la figure (IV.40), montre qu'il y a une forte probabilité d'existence de deux cas de ségrégation (zone de ségrégation par effet de stratification et des canaux ségrégés). On voit bien grâce au traitement d'image de la première tranche qu'il y a une zone de haute concentration située à la base de cette dernière proche de la paroi gauche. Vu la taille de cette zone nous pensons qu'il s'agit d'un canal ségrégé. Cette zone elle-même est entourée par des contours d'autres zones aussi de forte concentration, elle aussi par rapport le reste de cette tranche, ce qui renforce l'hypothèse de l'existence d'une zone ségrégée par effet de stratification. On peut localiser l'apparition de contour de canaux ségrégés sur la deuxième tranche, la grande zone de ségrégation étalée sur la base du lingot dans les tranches de 4 jusqu'à 9 et la ségrégation sous forme d'une cheminée qui correspond au dernier liquide dans la dernière tranche.



(a)



(b)

Figures IV.40.

Coupes transversale du lingot Sn-10wt.%Pb (Réf LH19). (a) photos de radiographie X, (b) Carte des contours des iso-concentrations. $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$. les neuf tranches sont numérotées de droite vers gauche.

Au niveau de la macrostructure, la figure (IV.41) montre que la solidification commence par une large zone colonnaire suivie d'une transition colonnaire équiaxe (CET), dans les deux cas. Cependant, nous remarquons que les grains équiaxes dans l'alliage Sn-10wt.%Pb sont de tailles plus fines et occupent une zone sensiblement large par rapport au lingot de concentration 3%. Cela peut être attribué à l'effet de l'augmentation de la concentration qui favorise la fragmentation des bras dendritiques à travers la dissolution causée par la variation du gradient solutale dans la zone pâteuse (cf. Liu [5]). Cette hypothèse a été renforcée par les travaux de Gu et Beckermann [6]. Ils ont étudié la fragmentation lors de la formation de "freckles" au cours de la solidification et ils ont attribué la formation des fragments à la dissolution solutale des dendrites.

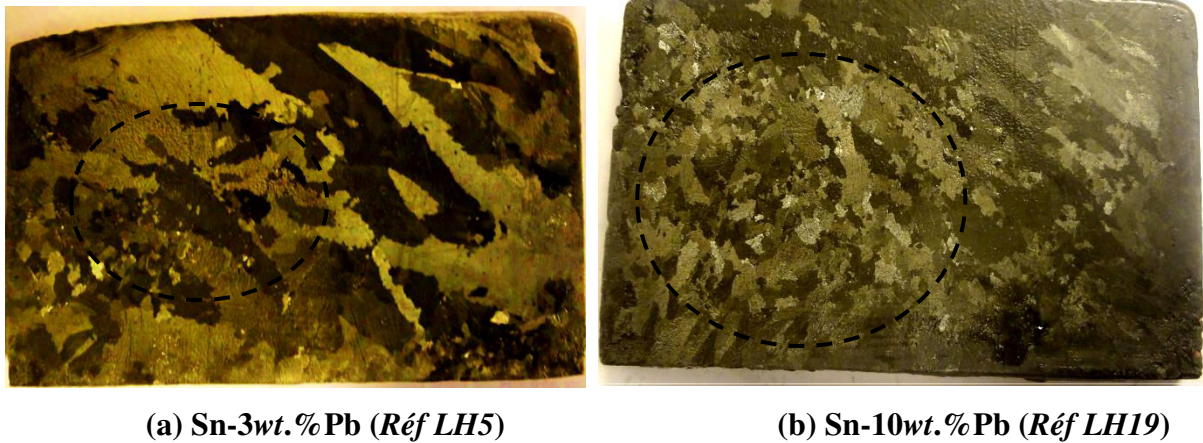


Figure IV.41. Macrostructure sur le plan latéral des lingots : (a) Sn-3wt.%Pb (Réf LH5) et (b) Sn-10wt.%Pb (Réf LH19). Pour une différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$, et une vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$

IV.4.4.2. Effet de la stratification sur le processus de solidification

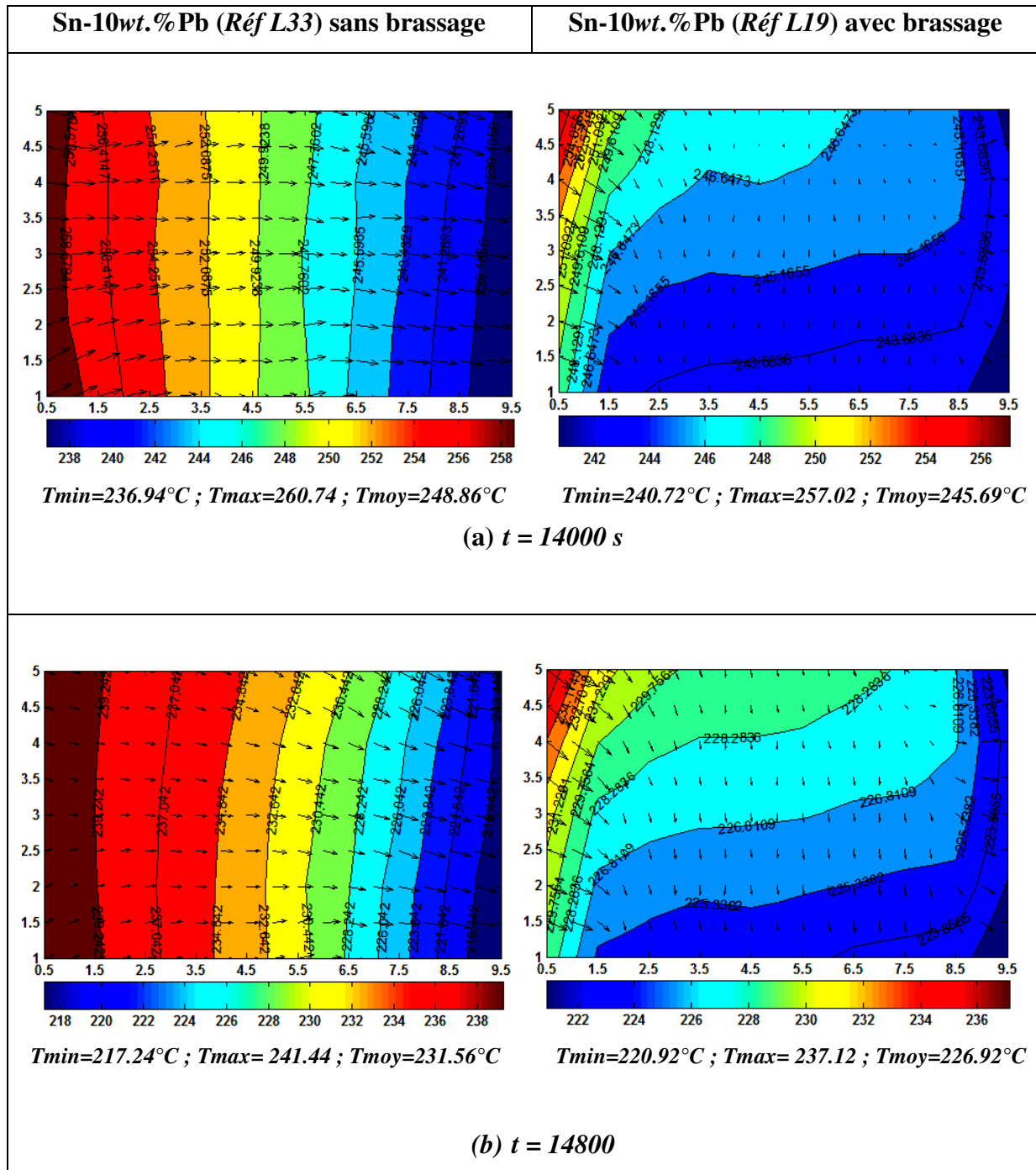
A la lumière de l'étude comparative précédente, entre les deux alliages Sn-10wt.%Pb et Sn-3wt.%Pb, nous avons remarqué l'effet très significatif de la stratification du plomb. Dans le but d'étudier l'étendue de l'impact de ce phénomène sur les plans : thermique, dynamique et morphologique. Une expérience de solidification sous l'effet de la convection thermosolutale sans aucun brassage électromagnétique a été réalisée sur l'alliage étain-plomb de dosage 10%, sous les conditions expérimentales (différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$ et vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$), et expérience référencée (LH33).

La figure (IV.42) présente une comparaison entre les cartes thermiques à différents instants de l'expérience *LH33* (sans aucun brassage électromagnétique) d'une part et l'expérience de solidification réalisée sur le même alliage (Réf *LH19*), mais avec un brassage électromagnétique d'autre part. On considère la première phase de stabilisation thermique, sous les mêmes conditions expérimentales ($\Delta T = 40K$ et $CR=0,03K/s$). Les valeurs numériques des cartes de températures sont données dans le tableau (IV.12).

Les cartes thermiques de l'étude comparative présentées sur les figures (IV.42-a et b), montrent clairement que les lignes des isothermes de l'expérience *LH19* sont bien déformées, en donnant des indications sur le bon établissement de la boucle de la convection. Par contre, il est clair que la convection est complètement amortie par l'effet de la stratification du plomb à la base du creuset dans le cas de l'expérience *LH33*. Notons que cet état de freinage est maintenu dès l'application du gradient thermique jusqu'à la fin de solidification (voir la figure (IV.42-c)). Il s'agit donc d'un effet de stratification qui apparaît au moment de la fusion du lingot. Cet effet s'estompe lors que l'on applique ce brassage électromagnétique qui homogénéise le bain. Ceci montre l'importance cruciale du brassage électromagnétique pendant la phase de stabilisation thermique du lingot et avant l'établissement de la différence de température expérimentale moyenne (ΔT). Cet effet peut être quantifié par le nombre de flottation N_f , exprimé par la formule suivante :

$$N_f = \frac{\beta_C \Delta C}{\beta_T \Delta T} = \frac{\text{force de gravité solutale}}{\text{force de gravité naturelle thermique}} \quad (\text{IV.21})$$

Pour une différence de température effective ($\Delta T_{eff} = 20K$), ce nombre prend les valeurs $N_f (\Delta C = 3\%) \approx 8$, $N_f (\Delta C = 10\%) \approx 28$. Ces valeurs confirment l'importance de l'effet solutal ici stabilisant.



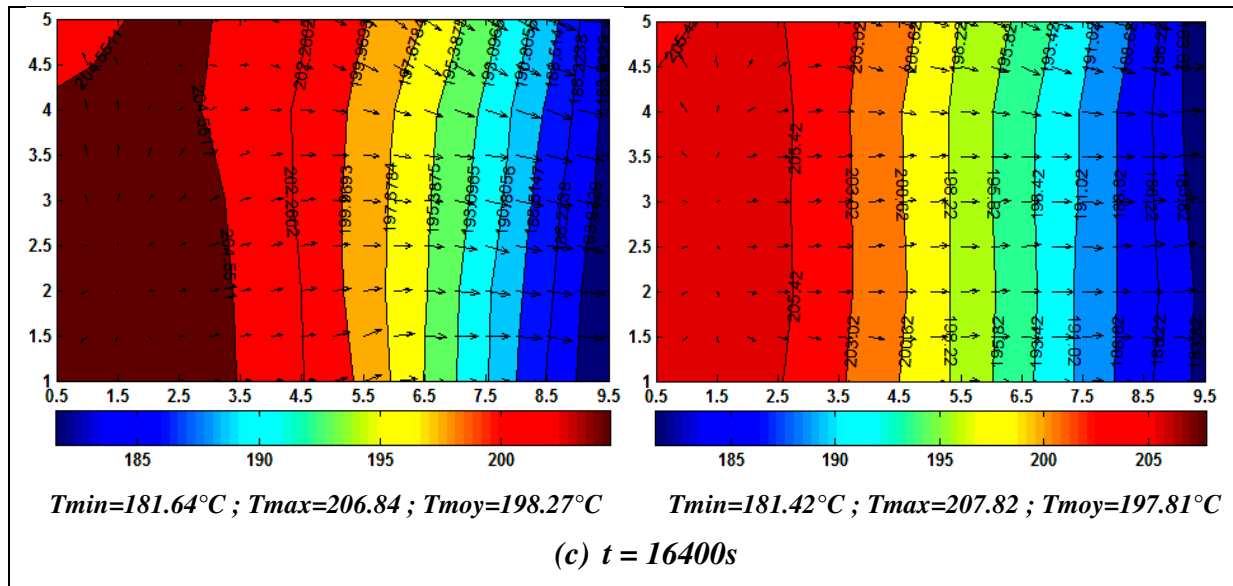


Figure IV.42. Evolution temporelle des champs de la température à différents instants choisis. À gauche carte thermique de l'alliage Sn-10wt.%Pb (Réf LH19) et à droite l'alliage Sn-10wt.%Pb (Réf LH33). Conditions expérimentales : différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40\text{K}$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03\text{K/s}$.

La figure (IV.43) montre la photo de radiographie X de l'expérience Sn-10wt.%Pb (Réf LH33) et sa carte de concentration obtenue par traitement d'image. Une large zone de ségrégation est localisée dans la base du lingot présentée par des contours de concentration variant entre 180 et 200 pixels. Des canaux ségrégés sont développés dans la partie droite du lingot située entre 9 et 10cm. La zone pauvre en plomb est bien visible dans la partie centrale supérieure du lingot exprimée par des contours de concentration entre 20 et 80 pixels.



(a)

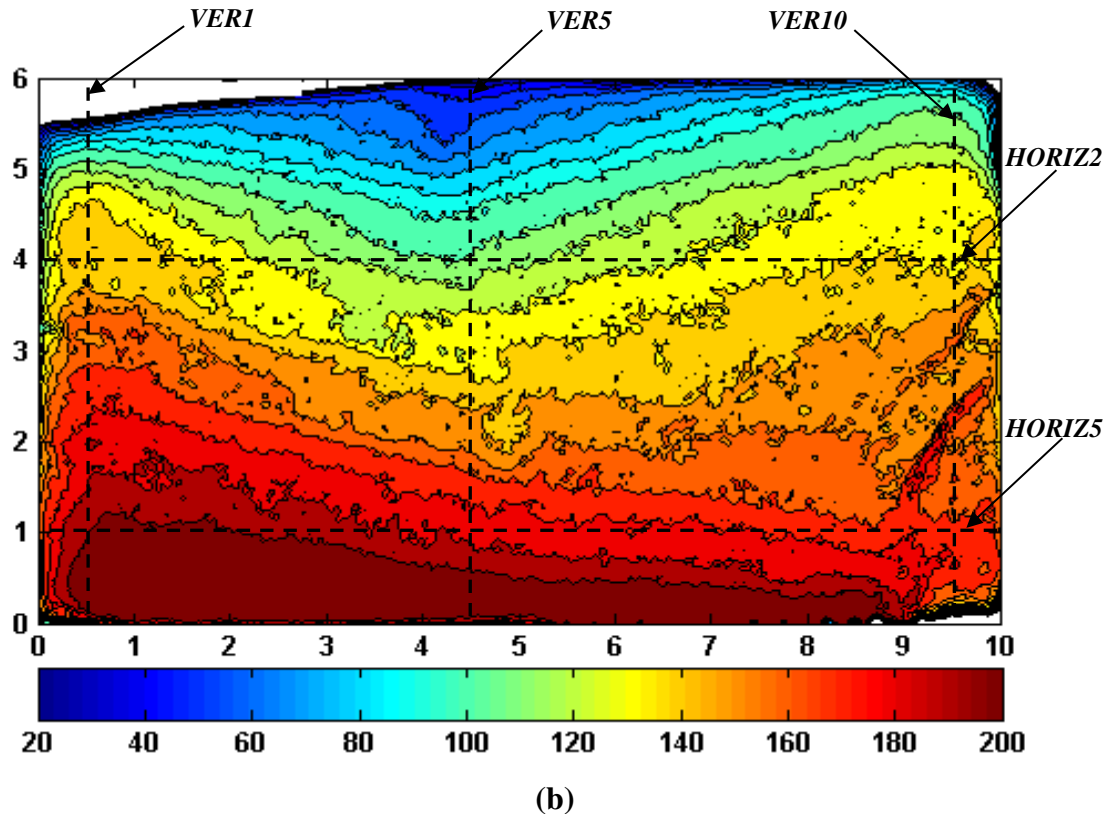
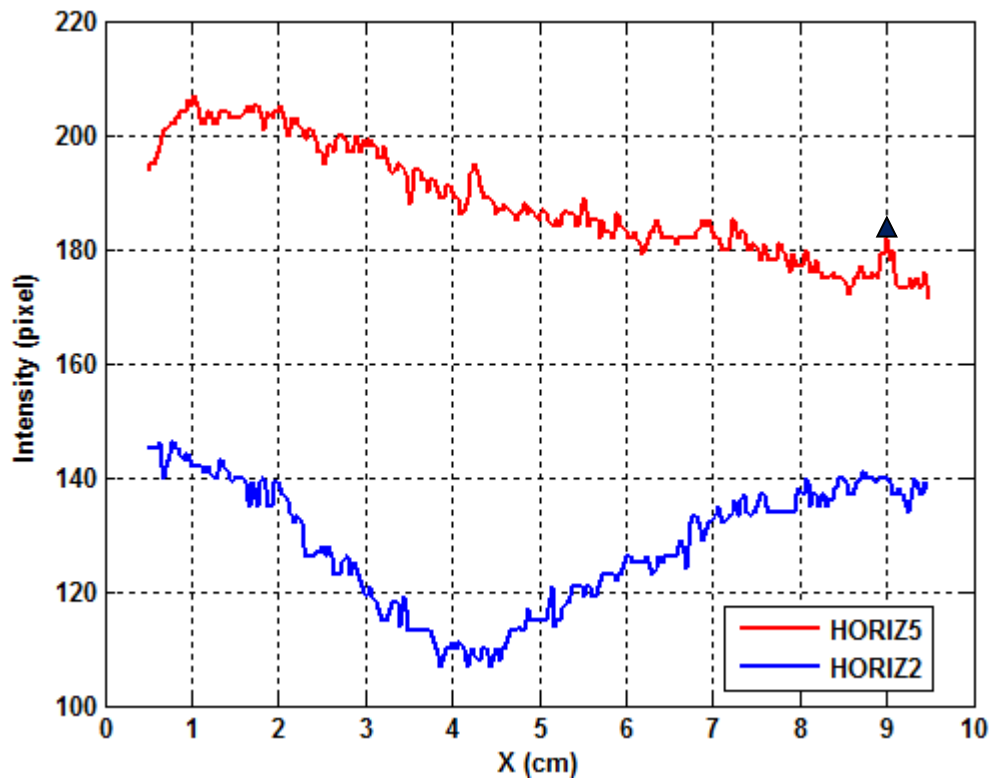


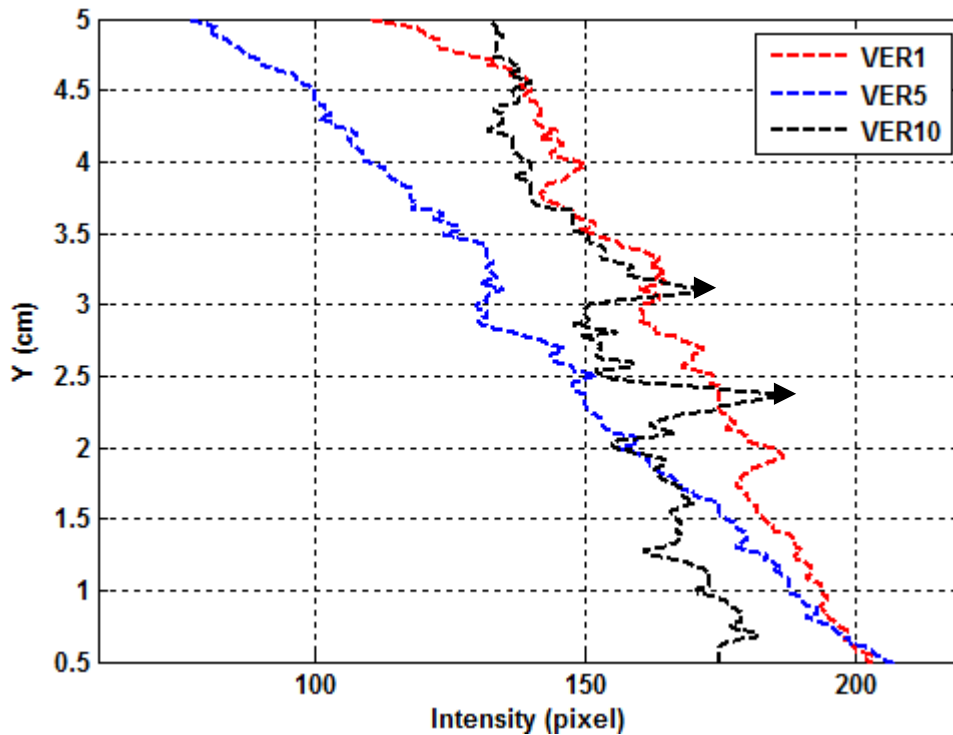
Figure IV.43. Photo de radiographie X (a) avec son traitement d'image (b) de l'expérience Sn-10wt.%Pb (Réf LH33). Conditions expérimentales : différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03K/s$.

La variation longitudinale du plomb est représentée dans la figure (IV.44). Deux niveaux sont choisis *HORIZ5* et *HORIZ2*, situé à 1cm et 4cm respectivement. Les courbes mettent clairement en évidence la grande différence de concentration entre la partie supérieure et basse du ligot. La courbe *HORIZ2*, présente un niveau maximal de 146 pixels correspond au dernier liquide riche en soluté (plomb), un minimum de 107 pixels correspond à la zone la plus pauvre en plomb puis une augmentation graduelle jusqu'à atteindre un niveau de 140 pixels, zone de formation des canaux ségrégés. Cependant, la courbe de *HORIZ5*, montre la grande richesse en plomb du niveau horizontal situé à 1cm. Elle présente un maximum de 207 pixels au niveau à la deuxième zone de ségrégation, un minimum de 171 pixels, correspondent aux premières couches de solides (zone de formation des canaux ségrégés), un pic de 183 pixels, marqué par un triangle bleu, qui représente l'apparition d'un canal ségrégé.



Figures IV.44. Évolution de l'intensité exprimée en niveau de pixels en fonction de la longueur de l'échantillon pour les niveaux horizontaux (HORIZ2) et (HORIZ5) situé verticalement, à 4 et 1cm, respectivement. Sn-10wt. %Pb (Réf LH33). $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

La figure (IV.45) montre une comparaison entre les intensités de trois niveaux verticaux *VER1*, *VER5* et *VER10*, situé horizontalement à 0,5, 4,5 et 9,5cm, respectivement (voir la figure IV.43). La courbe *VER5* correspondant à ligne bleue, montre clairement la grande différence entre le niveau de concentration à la base du lingot par rapport à la partie supérieure. On remarque que le niveau d'intensité de cette courbe présente un maximum supérieur à 200 pixels à 0,5cm (base du lingot) et un minimum d'environ 50 pixels à 5cm (coté supérieur du lingot). La courbe *VER1* (ligne rouge), donne des indications claires sur la répartition de la concentration dans le dernier liquide. Le niveau d'intensité varie entre 110 et 200 pixels, ce que correspond à la deuxième zone de ségrégation sous une forme d'une *cheminée* remontée vers le haut sous effet de la boucle convective. La dernière courbe noire (*VER10*), montre bien l'apparition de deux canaux ségrégés à 2,4 et 3,1cm. Les pics de ces canaux présentent un niveau d'intensité varie entre 170 et 190 pixels.



Figures IV.45. Évolution de l'intensité exprimée en niveau de pixels en fonction de la hauteur de l'échantillon pour les niveaux verticaux (VER1, VER5 et VER10), situés à 0,5, 4,5 et 9,5 cm horizontalement. Sn-10wt. %Pb (Réf LH33), $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

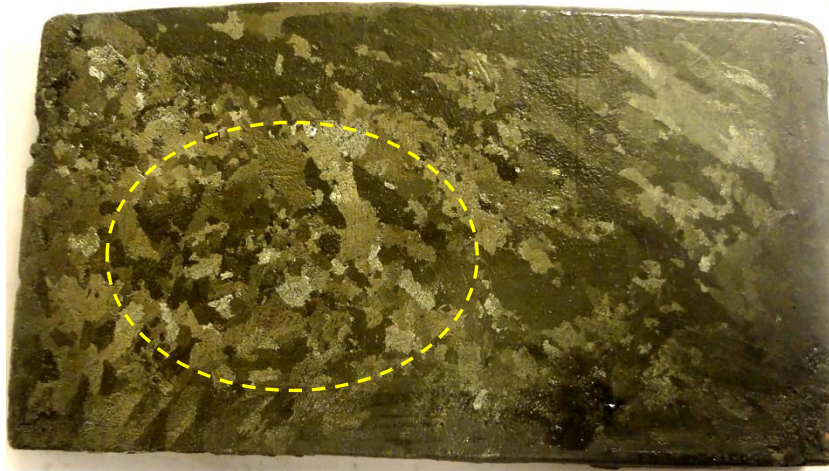
IV.4.4.3. Effet de la variation de la vitesse de refroidissement

Une étude expérimentale comparative a été réalisée en vue d'analyser l'effet de la variation de la vitesse de refroidissement sur la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Les vitesses de refroidissement appliquées sont $CR = 0,02, 0,03$ et $0,04$ K/s. La différence de température expérimentale moyenne est $\Delta T = 40K$. Les macrostructures correspondantes sont illustrées dans la figure. (IV.46). Les remarques sur la macrostructure sont presque identiques à celles présentées dans la même étude comparative réalisée sous les mêmes conditions expérimentales sur l'alliage Sn-3wt.%Pb, à savoir :

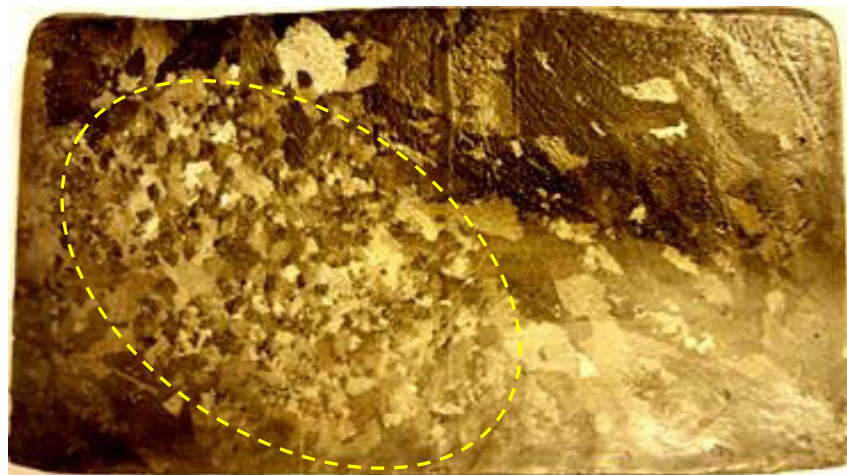
- la macrostructure majoritaire est colonnaire,
- une inclinaison remarquée au cours du développement des grains colonnaire correspond à l'effet de la boucle convective,
- l'augmentation de la vitesse de refroidissement favorise fortement le déclenchement du processus de la transition colonnaire-équiaxes (CET).



(a) Sn-10wt.%Pb (Réf LH20)



(b) Sn-10wt.%Pb (Réf LH19)



(c) Sn-10wt.%Pb (Réf LH21)

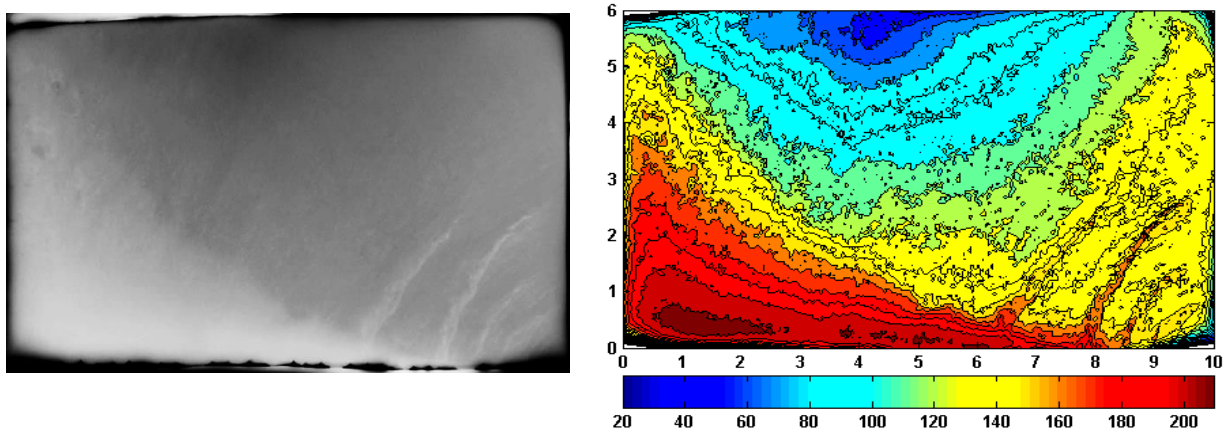
Figure IV.46.

Macrostructure sur le plan latéral de différents lingots de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Pour une différence de température expérimentale moyenne : $\Delta T = 40K$ et différentes vitesses de refroidissement : (a) $CR = 0,02K/s$, (b) $CR = 0,03K/s$ et (c) $CR = 0,04 K/s$.

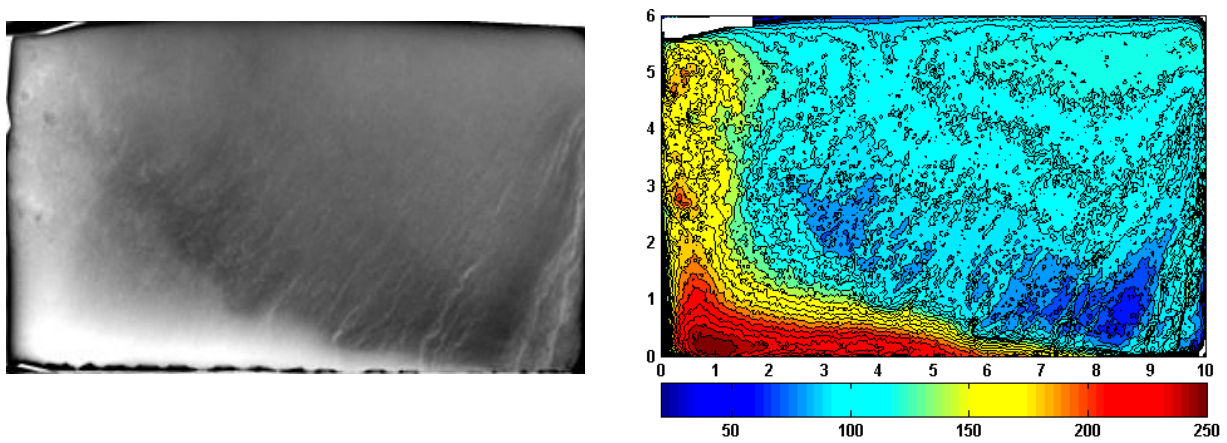
Une particularité peut être ajoutée à l'effet de l'augmentation de la vitesse de refroidissement sur le processus de la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Non seulement, elle favorise la transition colonnaires-équiaxe mais elle favorise également l'affinage des grains équiaxes.

Les photos de la radiographie X de cette étude expérimentale comparative avec leurs traitements numériques, sont présentées dans la figure (IV.47). Les analyses des contours d'intensités (indicatrices de la concentration) montrent que, sous une différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$, l'augmentation de la vitesse de refroidissement favorise la diminution de la ségrégation. Les analyses par traitement d'image effectuées sur les photos issues de la radiographie X, montrent que, pour des vitesses de refroidissement lentes ($CR = 0,02$ et $0,03K/s$), présentées sur les figures (IV.47-a et b), nous avons remarqué, la formation de plusieurs canaux ségrégés ainsi qu'une large zone de ségrégation à la fin de solidification. Ce phénomène est identique à celui obtenu pour les lingots de dosage 3%. Comme nous l'avons abordé précédemment, il peut être expliqué par le fait que, dans les cas de vitesses de refroidissement lentes, le rejet global du soluté est plus élevé, et le flux convectif a suffisamment de temps pour transporter le soluté de la zone pâteuse vers le liquide. Par contre dans le cas d'une vitesse de refroidissement plus élevée, $CR = 0,04K/s$, il y a une diminution significative du nombre de canaux ségrégés ainsi qu'une réduction de la taille de la zone de ségrégation dans le dernier liquide. Par ailleurs, dans ce cas ($CR = 0,04 k/s$), le canal délimité par le cercle noir discontinu (voir la figure IV.47-c), présente une taille particulière (grandes dimensions) par rapport aux autres cas. Ainsi, nous avons remarqué l'existence de plusieurs retassures au sein de la partie nommée cheminée de ségrégation (zone de ségrégation correspondant au dernier liquide).

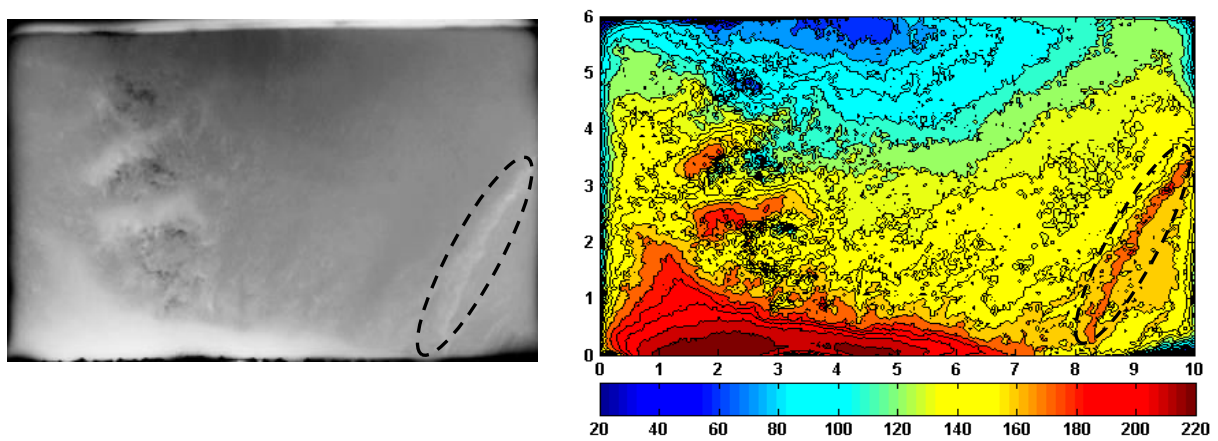
A la lumière des résultats obtenus sur l'effet de la variation de la vitesse de refroidissement sur le processus de solidification des alliages étain-plomb pour les deux dosages utilisés (3 et 10%), on peut déduire que l'augmentation de la vitesse de refroidissement a un effet très significatif sur la diminution de la ségrégation (réduction considérable de nombres des canaux ségrégés et de la taille de la deuxième zone de ségrégation), mais ne la supprime pas complètement. Donc le brassage électromagnétique peut avérer un outil très important afin de minimiser le maximum des défauts issus de la ségrégation. Le processus de solidification sous l'effet de la convection forcée par brassage électromagnétique sera l'objet d'une étude détaillée qui sera présentée le cinquième chapitre.



(a) Sn-10wt.%Pb (Réf LH20)



(b) Sn-10wt.%Pb (Réf LH19)



(c) Sn-10wt.%Pb (Réf LH21)

Figure IV.47. Photo de radiographie X (à gauche) avec son traitement d'image (à droite) de l'alliage Sn-10wt.%Pb, pour une différence de température moyenne $\Delta T = 40$ K et différentes vitesses de refroidissement : (a) $CR = 0,02$ K/s (Réf LH20), (b) $CR = 0,03$ K/s (Réf LH19) et (c) $CR = 0,04$ K/s (Réf LH21).

IV.5. CONCLUSION PARTIELLE

L'installation expérimentale a démontré sa capacité à obtenir des données quantitatives et qualitatives sur le processus de solidification. L'ensemble des éléments nécessaires au dépouillement, à la correction et à la compréhension des résultats, a été posé et présenté. Les mesures thermiques sous forme des cartes de température couplées aux vecteurs du gradient thermique local sont présentées pour l'ensemble des expériences réalisées sous l'effet de la convection thermosolutale. Une campagne d'analyses post mortem de type chimique et radiographique a été effectuée. Les mesures montrent clairement l'existence d'un léger retrait à l'état solide qui entraîne la présence d'une résistance thermique entre les deux parois d'échanges thermiques et le lingot à l'état solide. Cette dernière empêche d'appliquer le gradient thermique voulu et perturbe énormément l'échange thermique avant la phase de fusion. Notons que le dispositif expérimental n'a pas été conçu à cette fin. Les expériences de solidifications sur l'étain, ont montré l'existence d'une surfusion d'environ $6,4^{\circ}\text{C}$. Les plateaux de solidification de l'étain sont bien visibles et permettront le calage des courbes de température pour l'ensemble des thermocouples. Nous n'avons pas abordé l'influence des grandeurs physiques à utiliser, notamment la dépendance en température des propriétés thermo-physiques (la capacité calorifique et la masse volumique par exemple). Pour les solidifications des alliages étain-plomb, trois points importants sont déjà à souligner. Le premier concerne l'existence de deux zones de ségrégation : la zone des canaux ségrégés localisée dans les premières couches de solides formées et la zone de ségrégation dite normale correspond au dernier liquide à la fin de solidification qui présente dans la plupart des cas expérimentés une forme d'une cheminée de ségrégation. Le second point concerne l'effet significatif de l'augmentation de la vitesse de refroidissement sur la diminution du nombre des canaux ségrégés et la taille de la deuxième zone de ségrégation. Le dernier point a traité l'apparition du phénomène de la transition colonnaire (CET) dans toutes les expériences réalisées. Nous avons remarqué que pour les expériences de solidification avec un dosage élevé du plomb (10% par exemple), et sous une vitesse de refroidissement ($CR = 0,04\text{K/s}$), ces deux paramètres expérimentaux ont un double effet, la formation d'une large zone des grains équiaxes et le raffinage des grains. Enfin, cette étude expérimentale et analytique nous a confirmé la nécessité de l'application d'un brassage électromagnétique contrôlé afin de corriger les défauts de l'hétérogénéité de concentration (ségrégations), voir même les éliminer complètement.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE IV

- [1] G. Quillet, A. Ciobanas, P. Lehmann, Y. Fautrelle, "A benchmark solidification experiment on an Sn–10%wtBi alloy". International Journal of heat and mass transfer, V. 50, (2007) p. 654–666.
- [2] L. Hachani & al. *Experimental analysis of the solidification of Sn-3 wt.%Pb alloy under natural convection*. Int. J. of Heat and Mass Transfer V. 55, (2012), p. 1986-1996.
- [3] R. Boussaa, O. Budenkova, L. Hachani, X-D. Wang, B. Saadi, K. Zaidat, A.BenHadid, Y. Fautrelle, "2D and 3D Numerical Modeling of Solidification Benchmark of Sn-3Pb (%wt.) Alloy under Natural Convection", CFD Modeling and Simulation in Materials (TMS) 2012.
- [4] G. Quillet, A. Ciobanas, P. Lehmann, Y. Fautrelle, A benchmark solidification experiment on an Sn–10 wt%Bi alloy, International Journal of Heat and Mass Transfer V. 50, (2007), p. 654–666.
- [5] S. Liu, S.-Z. Lu and A. Hellawell, "Dendritic Array Growth in the System $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ and $[\text{CH}_2\text{CN}]_2-\text{H}_2\text{O}$: The Detachment of Dendrite Side Arms Induced by Deceleration", J. Crystal Growth, V 234, (2002), p. 740.
- [6] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, "Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy", Metall. Mater. Trans. A, V 28, (1997), p. 1533.
- [7] R.A. Khairulin, and S.V. Stankus. "Determination of the density of Pb-Sn Melts and segregation phenomena on their crystallization". Journal of Engineering Thermophysics, V 16 No 3, (2007), p 188–191.
- [8] C.A. Siqueira, N. Cheung, A. Garcia. "The columnar to equiaxed transition during solidification of Sn–Pb alloys". Journal of Alloys and Compounds, V 351, (2003), p 126–134.
- [9] J. D. Hunt, "Steady-state columnar and equiaxed growth of dendrites and eutectics", Mater. Sci. Eng. Vol 65. (1984).p. 75.
- [10] G. P. Ivantsov, Doklady Akademii Nauk SSSR, 58 (1947), p. 567.
- [11] W. Kurz and D.J. Fischer, "Fundamentals of Solidification, 4th revised edition", Trans. Tech. Publications, 1998.
- [12] W. Kurz, B. Giovanola and R. Trivedi, "Theory of Microstructural Development during Rapid Solidification", Acta met Vol 34, (1986), p. 823.
- [13] J. A. Dantzig and M. Rappaz, "Solidification", (2009), EPFL Press, Lausanne (CH).

CHAPITRE V

SOLIDIFICATION SOUS L'EFFET DE LA CONVECTION FORCEE :

BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE

Les résultats expérimentaux obtenus dans les études présentées dans le quatrième chapitre, ont montré clairement la nécessité d'introduire une force extérieure, permettant l'homogénéisation du bain liquide sans polluer celui-ci par d'autres éléments. Afin de satisfaire ces conditions, le brassage électromagnétique s'avère la solution technique la plus pertinente. L'objectif de ce chapitre est d'examiner l'effet de la convection forcée entraînée par un champ magnétique glissant (*Traveling Magnetic Field*) induit par un moteur linéaire triphasé sur le processus de solidification. Trois modes de brassage (*TMF*) ont été examinés:

- Brassage dans le même sens que la convection thermosolutale,
- Brassage dans le sens opposé à la convection thermosolutale,
- Brassage périodiquement inversé avec une fréquence de modulation égale à $f = 0,125\text{Hz}$.

L'étude sera présentée en deux parties essentielles :

- premièrement, la caractérisation du brasseur électromagnétique utilisé, à travers des mesures du champ magnétique à l'air libre et du champ de vitesse par la méthode de vélocimétrie Doppler ultrasonore (*UDV*), réalisée sur une composition eutectique de l'alliage ternaire (Ga-In-Sn) ;
- deuxièmement, une étude comparative entre des expériences de solidification réalisées sur l'alliage Sn-10wt.%Pb, sous l'effet des trois différents modes de brassage cités ci-dessus et une expérience de solidification réalisée sous l'effet de la convection thermosolutale. Plusieurs aspects seront évoqués : thermique, dynamique, macrostructure et finalement comportement et morphologie de la ségrégation.

V.1. CARACTERISATION DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE

V.1.1. Evolution du champ magnétique

Le brasseur linéaire utilisé dans l'installation expérimentale *AFRODITE III*, possède huit pôles, il est situé à 5 mm sous le creuset. Sa longueur est $L_{ind} = 244\text{mm}$. Ce brasseur est alimenté par un courant alternatif triphasé à la fréquence $f = 50\text{Hz}$. La longueur d'onde l et le pas polaire τ sont $l = 2 \tau = 96 \text{ mm}$, de sorte que le nombre d'onde est $K = 2\pi/l = 65,45 \text{ m}^{-1}$. La vitesse de synchronisme du champ magnétique glissant est $U_s = f \cdot l = \frac{\omega_0}{k} = 4,8 \text{ m/s}$.

Une mesure du module du champ magnétique dans différentes positions selon la direction horizontale (x), $\|\vec{B}\| = \sqrt{B_x^2 + B_y^2}$, a été effectuée en l'absence du métal liquide pour différentes intensités de courant appliquées (7,5, 8,2 et 10A), comme cela est indiqué à la figure (V.1). La procédure expérimentale de mesure et les valeurs numériques du champ magnétique $\|\vec{B}\|$ le long de la direction horizontale, sont présentées dans l'annexe III (Tableau III.1).

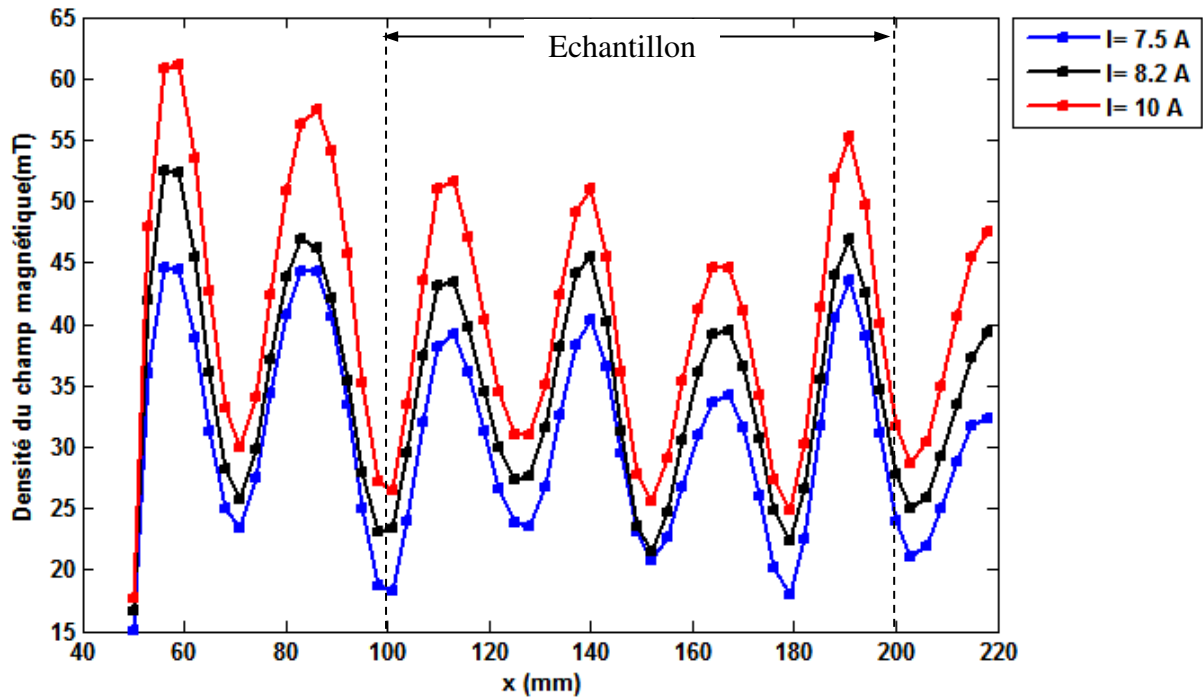


Figure V.1. Champ magnétique mesuré $\|\vec{B}\|$ le long de la direction horizontale x à différentes intensités du courant appliqué. ($I = 7,5, 8,2$ et 10A). La figure montre également la position de l'échantillon.

L'estimation de l'épaisseur de peau du champ magnétique due à l'effet de la fréquence seule à travers l'alliage (étain-plomb) a été basée sur deux études (expérimentale et théorique) menées par X. D. Wang et al [2,3], pour une configuration identique à celle de l'installation AFRODITE III. Le calcul peut être résumé comme suit :

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}} \quad (\text{V.1})$$

Afin de satisfaire les conditions d'isolation électrique dans le domaine liquide confiné entre les parois verticales, $J_z(z = \pm a) = 0$, un champ électrique non uniforme doit être présent

pour forcer le courant électrique à satisfaire les conditions et pour former des boucles fermées dans chaque plan (y, z), comme illustré à la figure (V.2).

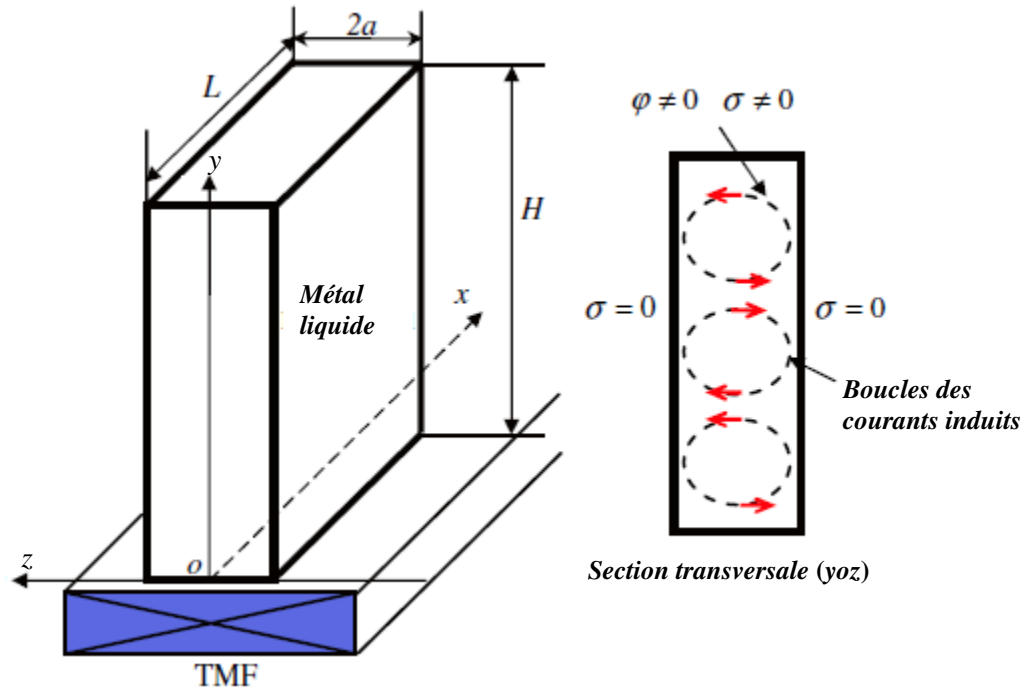


Figure V.2. Géométrie, notations, et schéma illustratif des courants éclectiques induits dans un domaine confiné de métal liquide.

L'effet du confinement du domaine liquide a fait intervenir des nouvelles propriétés physiques (nombre d'onde K^* et l'épaisseur de peau magnétique effective δ^*), définies comme suit :

$$K^* = \sqrt{K^2 + \left(\frac{\pi}{2a}\right)^2}, \quad (a = 5\text{mm est une demi-largeur du domaine de la charge fondue}) \quad (\text{V.2})$$

$$\alpha^* = \frac{K^*}{\sqrt{2}} + \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4}{K^{*4}\delta^{*4}}}\right)^{1/2} \quad (\text{V.3})$$

$$\delta^* = \frac{1}{\alpha^*} \quad (\text{V.4})$$

où : μ est la perméabilité du vide ($\mu = 4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$) et σ la conductivité électrique ($\sigma = 1.86 \times 10^6 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$) de l'alliage Sn-Pb.

Le calcul donne: $\omega = 314.16 \text{ s}^{-1}$, $\delta = 5,22\text{cm}$, $K^* = 320,9\text{m}^{-1}$

Ainsi, l'épaisseur de peau du champ magnétique est $\delta^* = 3,1\text{mm}$

Une simulation numérique du champ magnétique glissant à l'aide du logiciel COMSOL a été réalisée dans des conditions identiques à l'installation expérimentale

(AFRODITE III). La figure (V.3) donne une représentation graphique en 3D des lignes de courants ainsi que la répartition spatiale du champ magnétique dans la cavité pour une fréquence de ($f = 50\text{Hz}$) et une intensité de courant de ($I = 8,2\text{A}$).

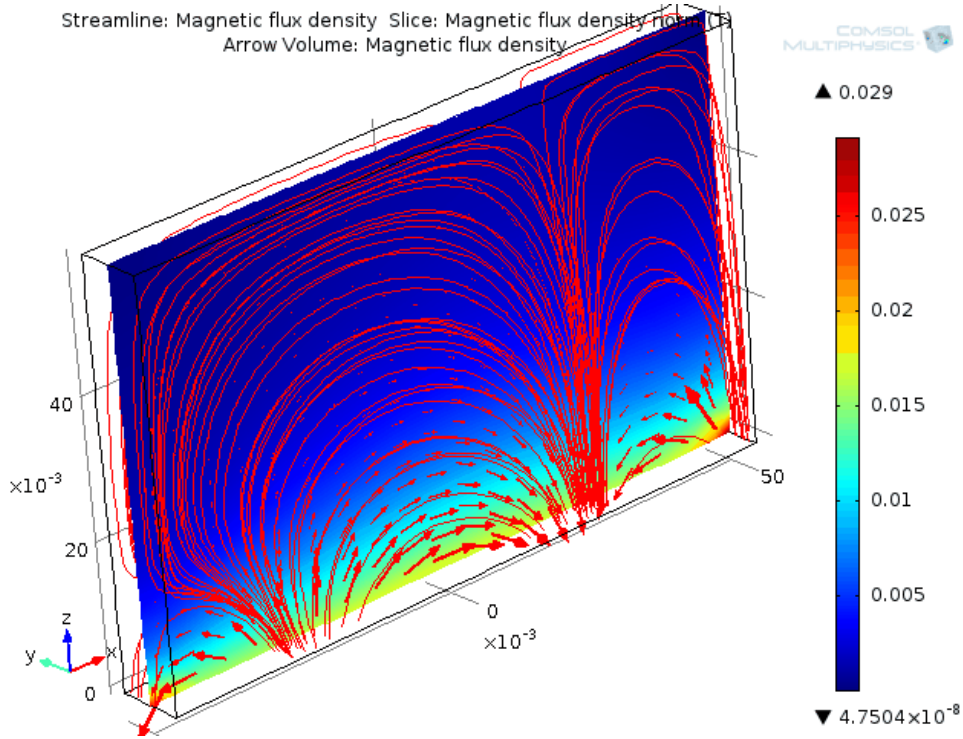


Figure V.3. Simulation numérique 3D de l'évolution spatiale du champ magnétique glissant pour les conditions : ($f = 50\text{Hz}$ et $I = 8,2\text{A}$).

La résolution des équations de Maxwell dans l'étude théorique (X. D. Wang et al [3]), a montré que la force du brassage électromagnétique était fortement influencée par l'épaisseur de la cavité (taille de la géométrie confinée dans la direction z) et la longueur de l'inducteur. Dans ce travail, la force électromagnétique induite par le moteur linéaire a été analysée. Les deux composantes de la force électromagnétique moyennée active dans la charge fondue, peuvent être exprimées comme suit:

$$\begin{cases} \langle F_x \rangle = \frac{c\sigma\omega_0 K^*}{2} A_0^2 \exp(-2\alpha^* y) \\ \langle F_y \rangle = \frac{cA_0^2}{2} \left[\sigma\omega_0 \beta^* - \left(\frac{\pi}{2a} \right)^2 \frac{\alpha^*}{\mu} \right] \exp(-2\alpha^* y) \end{cases} \quad (\text{V.5})$$

avec

$$\beta^* = -\frac{\mu\sigma\omega}{K^*\sqrt{2}} + \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4}{K^{*4}\delta^{*4}}} \right)^{-1/2} \quad (\text{V.6})$$

où $A_0 = 5 \cdot 10^{-4} T.m$ est l'amplitude du potentiel vecteur, $C \approx 0,05$ est le coefficient de réduction en raison de la longueur et de la largeur limite de la charge fondue (domaine liquide). Ainsi, l'étude a montré que les deux composantes F_x et F_y ont des moyennes non nulles, et elles diminuent de façon exponentielle selon la direction verticale y , en donnant une indication claire sur la peau magnétique classique d'épaisseur $(1/\alpha^*)$ comme il est discernable sur la figure (V.4).

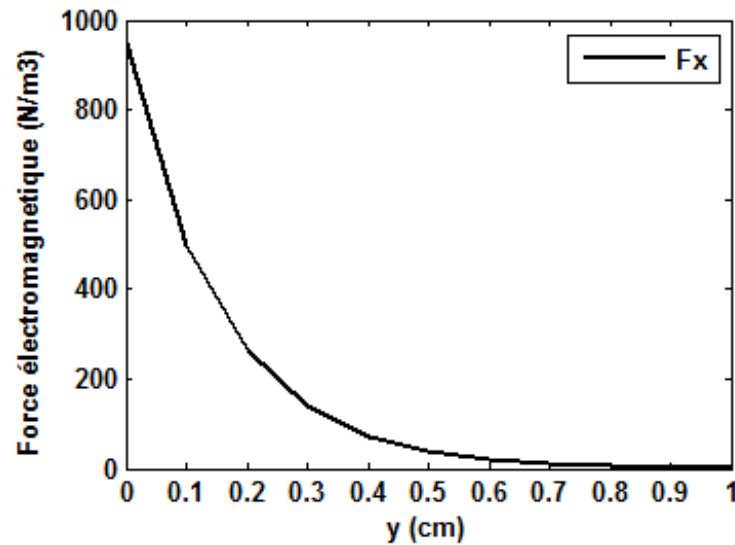


Figure V.4. Evolution spatiale de la composante horizontale de la force électromagnétique moyenne selon la direction verticale avec un courant appliqué $I = 8,2A$. L'intensité de champ magnétique est égale à $B_0 = 45mT$.

Une deuxième simulation numérique à l'aide du logiciel COMSOL, a permis d'évaluer la force du brassage et la configuration d'écoulement pour une composition eutectique de l'alliage Ga-In-Sn dans une cavité identique à celle de l'installation expérimentale. Il est clair que le choix de cet alliage est justifié par sa basse température de fusion ($T_m = 10,5^\circ C$), ce qui donne la possibilité d'effectuer des mesures expérimentales à la température ambiante et par la suite de recalculer les modèles numériques. Les propriétés physiques de cet alliage sont données dans l'annexe III (tableau III.2). Les résultats numériques représentés sur la figure (V.5) montrent que la force moyenne de la composante $\langle F_x \rangle$ est une force motrice du brassage, créant un écoulement qui se présente sous forme d'un vortex simple, dont le sens dépend de l'agencement des phases électriques (il est à noter que dans l'image le vortex tourne en sens inverse). La composante verticale $\langle F_y \rangle$ est une force gravitationnelle non nulle dirigée vers le haut de type répulsive et n'est pas directement

motrice. Notons que cette simulation a été réalisée en l'absence du gradient thermosolutal, dans le but de pouvoir comparer les résultats obtenus numériquement avec ceux obtenus par la technique de la vélocimétrie ultrasonore (UDV) qui seront présentés dans la partie suivante.

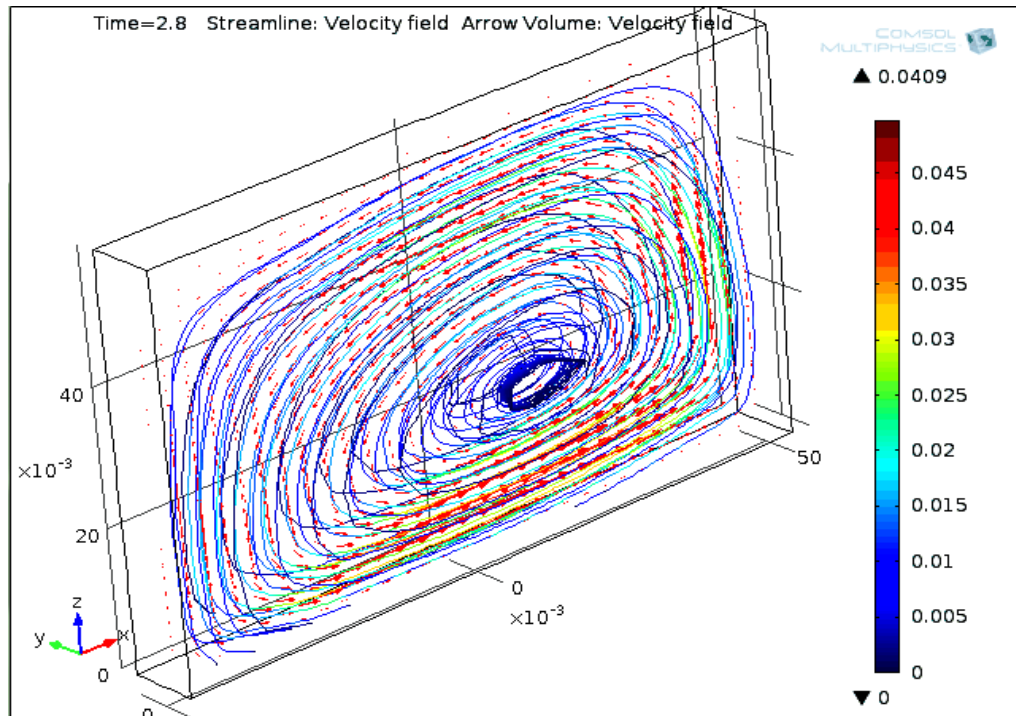


Figure V.5. Simulation numérique 3D de la configuration dynamique du brassage obtenue par l'application d'un champ magnétique glissant dans une cavité remplie d'alliage (Ga-In-Sn) pour les conditions : ($f = 50\text{Hz}$ et $I = 8,2\text{A}$).

V.1.2. Caractérisation de la dynamique de l'écoulement d'un bain de Ga-In-Sn sous champ magnétique glissant

Cette partie est consacrée à l'étude de l'hydrodynamique d'un alliage (Ga-In-Sn) soumis à un champ magnétique glissant ($f = 50\text{Hz}$). Le champ magnétique alternatif crée des courants induits dans le bain du (Ga-In-Sn). Ces courants se composent avec le champ magnétique et donnent naissance à des forces volumiques qui créent un mouvement dans le métal liquide et une agitation à la surface. Pour caractériser le mouvement induit par ces forces, nous avons effectué des mesures par vélocimétrie Doppler à ultrason (UDV), afin de déterminer la topologie de l'écoulement global dans le bain et de mesurer les vitesses caractéristiques de cet écoulement.

Le dispositif expérimental est présenté sur la figure (V.6). L'alliage (Ga-In-Sn) liquide à la température ambiante, avec une composition proche du point eutectique (67wt% Ga-20,5wt%Sn- 12,5wt% In), et une température de fusion sensiblement égale à $T_m = 10,5^\circ\text{C}$, est contenu dans une cavité rectangulaire transparente de largeur $W = 1\text{cm}$, longueur $L = 10\text{cm}$, et de hauteur $H = 6\text{cm}$. L'origine des coordonnées se situe à l'angle inférieur gauche du plan de symétrie vertical. Les propriétés physiques pertinentes de l'alliage sont données en annexe (Table.III.2).

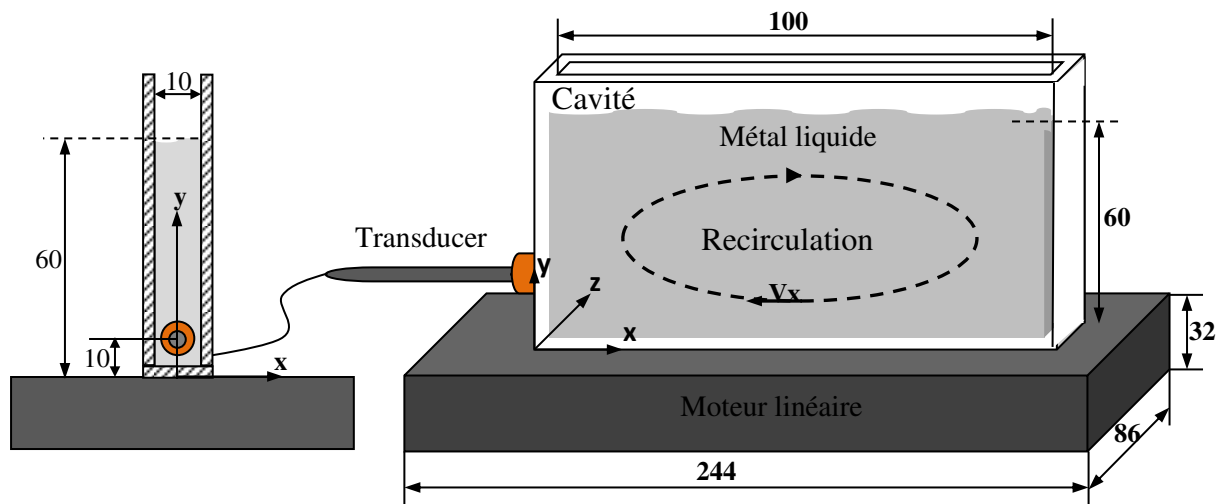


Figure V.6. Vues schématiques de l'équipement expérimental: vue de face (a) et vue en coupe transversale (b).

La vélocimétrie ultrasonore est une technique très utilisée pour les mesures de vitesse dans les métaux liquides. Elle a été utilisée entre autre par Brito et col. [4], Eckert et Gerbeth [5], et plus tard par B. Saadi [10].

Le principe de fonctionnement schématisé sur la figure (V.7) est décrit en détail par Takeda [6]. Il est basé sur l'effet Doppler acoustique. Le principe consiste à émettre un faisceau d'ondes acoustiques et à capter l'écho réfléchi par des particules micrométriques solides marquant un fluide en mouvement au moyen d'un transducteur. Le délai entre l'émission et la réception des ondes acoustiques noté τ_{PRF} donne l'information sur la distance du point de mesure d par la relation suivante, dans laquelle « c » est la vitesse du son dans le fluide (pour le Ga-In-Sn $c = 2860\text{ m/s}$).

$$d = \frac{c \cdot \tau_{PRF}}{2} \quad (\text{V.7})$$

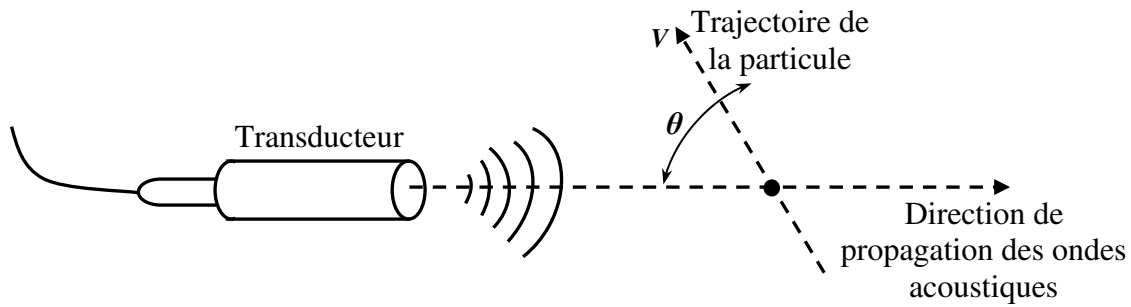


Figure V.7. Schéma de principe de la mesure par vélocimétrie doppler à ultrason (UDV).

Le décalage des fréquences entre les ondes émises et reçues est appelé fréquence doppler (f_{PRF}). Il permet de déterminer la vitesse des particules u pour chaque point de mesure.

$$u = \frac{c \cdot f_{PRF}}{2 \cdot f_0 \cdot \cos(\theta)} \quad (V.8)$$

où f_0 et θ représentent respectivement la fréquence des ondes acoustique émises par le transducteur ($f_0 = 4\text{MHz}$), et l'angle entre la trajectoire de la particule et l'axe vertical du transducteur.

En principe, le signal de vitesse provient d'un transducteur situé contre l'une des parois transversales dans la direction horizontale. Cette position est définie par les coordonnées du point central de la surface du transducteur. Les mesures de la composante horizontale de la vitesse V_x , ont été réalisées pour différentes positions verticales ($y = 5, 15, 50 \text{ et } 55 \text{ mm}$) pour des coordonnées fixes selon les autres directions ($x = 0\text{mm}$, $z = 5 \text{ mm}$). La même procédure, la composante verticale de la vitesse V_y , a été mesurée dans les positions horizontales ($x = 20, 40, 60 \text{ et } 80 \text{ mm}$ avec $y = 60 \text{ mm}$ et $z = 5\text{mm}$, et). Un schéma illustrant les différentes positions de mesures est donné sur la figure (V.8). Ainsi, seule la composante de vitesse parallèle au faisceau d'ultrasons est accessible dans toutes les mesures.

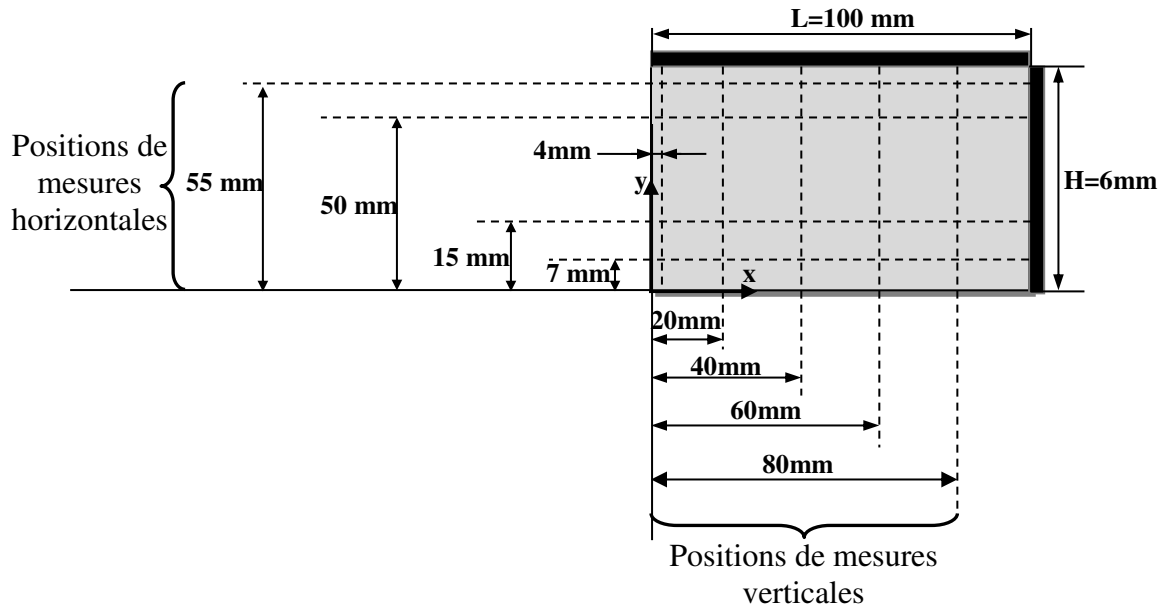


Figure V.8. Représentation des positions des mesures verticales et horizontales de la vitesse dans le bain de Ga-In-Sn.

Le transducteur à ultrasons est une sonde de 8 mm de diamètre et 4 MHz de fréquence. A partir de la relation entre longueur d'onde λ et la fréquence ($\lambda f = c$), où $c = 2860\text{ m.s}^{-1}$, est la vitesse du son dans le métal liquide, on peut déduire que la longueur d'onde est $0,715\text{ mm}$. Les paramètres de la vélocimétrie Doppler, à savoir la fréquence de répétition des impulsions (f_{PRF}), les cycles, les profils et les émissions par profil, sont ajustés pour obtenir un signal de vitesse optimale. La fréquence f_{PRF} est un paramètre essentiel, à partir du temps (τ_{PRF}) entre deux émissions, non seulement nous déterminons la longueur du profil, mais également nous contrôlons la vitesse de résolution. Des petites particules d'oxyde dans la masse liquide sont nécessaires pour obtenir des échos importants. En annexe III le Tableau (III.3), donne les principaux paramètres de contrôle, utilisés dans cette étude.

La résolution spatiale des mesures dans la direction des tirs « x » est $0,715\text{ mm}$ dans le métal liquide. Chaque profil se compose de 123 points, menant à une zone d'investigation totale de $0,715 \times 123 = 87,94\text{ mm}$. Il est important de signaler l'existence d'une zone aveugle inévitable près de la paroi où se trouve la sonde de mesure.

Les données fournies par la vélocimétrie ultrasonore UDV consistent en des vitesses instantanées dans la direction horizontale, $\bar{V}_x(x, t_i)$ pour la sonde transductrice placée à $(x = 0\text{ mm}, y = 7\text{ mm})$ et la direction y, $\bar{V}_y(y, t_i)$ pour la sonde transductrice placée à $(x = 4\text{ mm}, y =$

60mm) présentée (voir la figure V.9), pour l'indice « i », il varie entre 1 et 256. Les caractéristiques principales de l'écoulement sont les vitesses moyennes :

$$\begin{cases} \bar{V}_x(x) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N V_{xi}(x, t_i) \\ \bar{V}_y(y) = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N V_{yi}(y, t_i) \end{cases} \quad (V.9)$$

où $N = 256$ est le nombre d'acquisitions correspondant à un point donné, pour un temps total de mesure égal à 147,7 s.

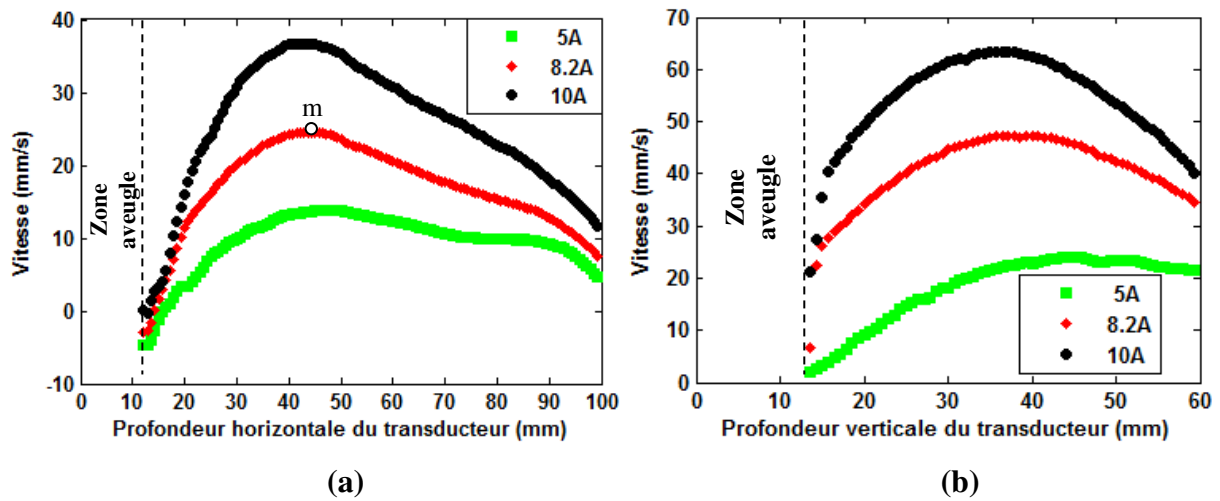


Figure V.9. Profils des vitesses moyennes mesurées par la technique de vélocimétrie ultrasonore UDV, pour différents courants appliqués ($I = 5, 8,2, 10A$). (a) mesures dans la direction horizontale $\bar{V}_x$ et (b) dans la direction verticale $\bar{V}_y$.

Les profils de la vitesse moyenne selon les deux directions (horizontale et verticale) présentés sur la figure (V.9), montrent clairement que les modules des vitesses sont proportionnels à l'intensité du courant inducteur. En outre, les trois profils de la vitesse moyenne $\bar{V}_x(x, t_i)$ et $\bar{V}_y(y, t_i)$, ont des formes similaires, malgré les différentes intensités du courant appliqué. Les mesures expérimentales obtenues par la technique UDV et les observations de la surface libre du bain liquide de l'alliage Ga-In-Sn, notamment sur la direction de la vitesse, ont permis de constater que la configuration de la dynamique d'écoulement est indépendante de l'intensité du courant inducteur.

L'évolution temporelle de la vitesse instantanée du point m ($x = 45mm$, $y = 7mm$, $z = 5mm$), pour un ampérage $I = 8,2A$, est présentée dans la figure (V.10). Cette vitesse varie sur une large gamme de 17 à 32,72mm/s et présente des fluctuations importantes. Dans ce cas, la

vitesse moyenne (moyenne dans le temps) $\bar{V}$ est $24,4\text{mm/s}$, et le nombre de Reynolds correspondant est:

$$\overline{Re} = \frac{\bar{V}.H}{\nu} = 4307,5 \quad (\text{V.10})$$

Probablement un certain niveau de fluctuation peut être détecté, mais en raison de la valeur modérée de ce nombre, la configuration dynamique, certes turbulente, ne peut pas être pleinement développée.

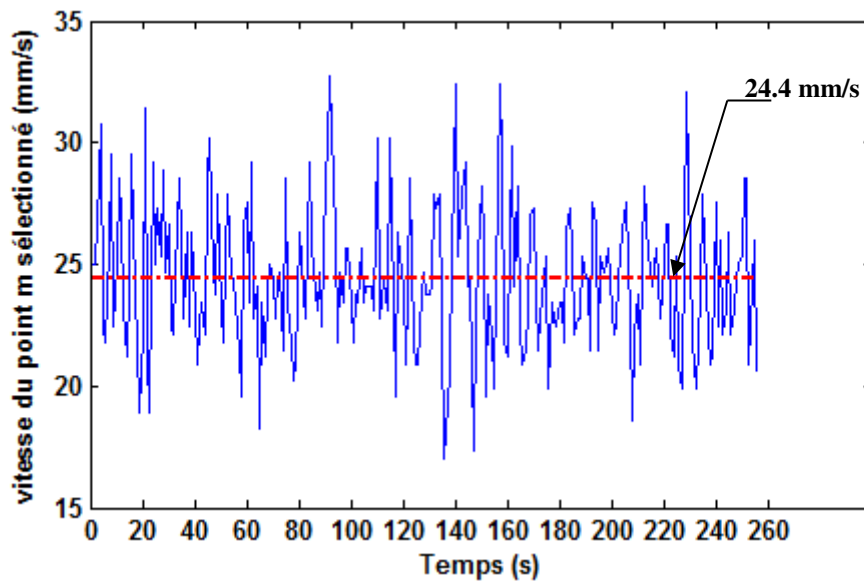


Figure V.10. Evolution temporelle de la vitesse V_x selon la direction horizontale x du point m (45, 7, 5) mm pour un ampérage appliqué $I = 8,2$ A.

Les fluctuations de la vitesse illustrés dans la figure (V.11), atteignent leurs valeurs maximales près des bords ($x \approx 30\text{mm}$ et $x \approx 80\text{mm}$) pour des mesures effectuées dans la direction horizontale x et à proximité des bords ($y \approx 15\text{mm}$ et $y \approx 55\text{mm}$) dans la direction verticale y . Toutes ces données sont cohérentes avec une configuration d'une dynamique constituée de trois principaux vortex: un grand localisé dans la partie centrale ($30\text{mm} \leq x \leq 80\text{mm}$) et deux petits vortex à chaque coins. La présence de ces petits vortex sur les deux bords peut éventuellement s'expliquer par un effet de décollement de la couche limite dynamique provoqué par le gradient de pression adverse dans les angles de la cavité qui est lié à l'influence de la longueur finie de la cavité ($L = 100\text{mm}$) et aussi de la longueur limitée du

moteur linéaire utilisé comme brasseur électromagnétique ($L_{IN} = 244mm$). Ces petits vortex apparaissent probablement car le nombre de Reynolds n'est pas très grand ($\overline{Re} = 4307,5$).

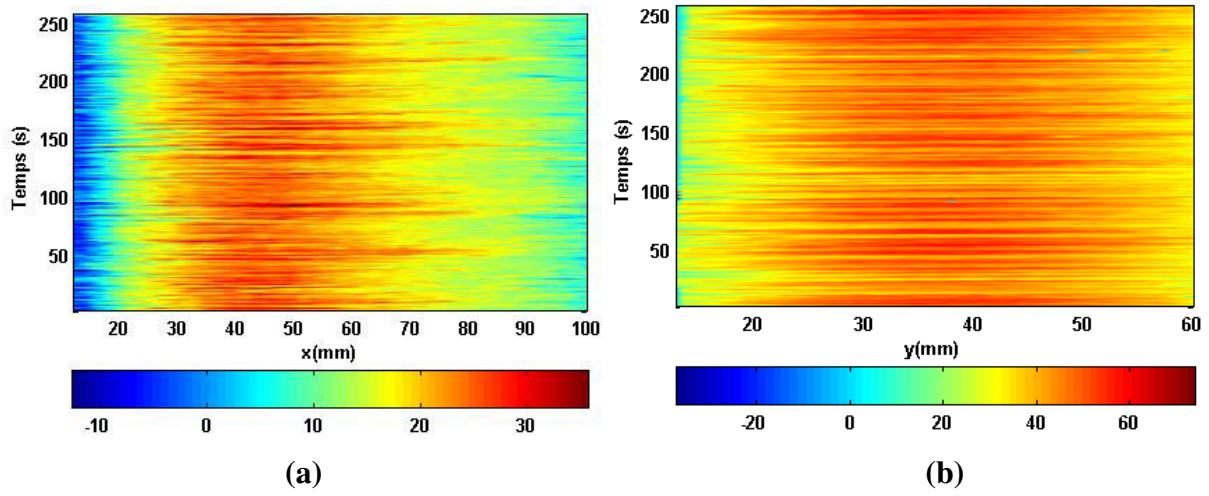


Figure V.11. Configuration spatio-temporelle de la vitesse mesurée par la technique de la vélocimétrie Doppler ultrasonore, générée par un champ magnétique glissant pour une intensité de courant $I=8,2A$. L'intensité de la couleur représente l'amplitude de la vitesse: a) dans la direction horizontale $\bar{V}_x(x, t_i)$ pour une position de mesure ($y=7mm$ et $z=5mm$), b) dans la direction verticale $\bar{V}_y(y, t_i)$ pour une position de mesure ($x=4mm$ et $z=5mm$).

Les écarts-types des fluctuations de la vitesse dans les deux directions horizontale et verticale $\bar{V}_{x,y}$, sont estimées comme suit :

$$\begin{cases} \tilde{V}_x = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (V_{xi} - \bar{V}_x)^2} \\ \tilde{V}_y = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (V_{yi} - \bar{V}_y)^2} \end{cases} \quad (V.11)$$

La figure (V.12) présente les profils des fluctuations de la vitesse selon la direction horizontale $\tilde{V}_x$, prises à la position ($y = 7mm$ et $z = 5mm$), pour les différentes intensités du courant choisies ($I= 5, 8,2, 10A$). Les courbes montrent clairement que les fluctuations augmentent proportionnellement à l'intensité du courant appliqué. Le rapport entre les fluctuations et les vitesses moyennes, est inférieur à 12%, ($\tilde{V}_x/\bar{V}_x \leq 12\%$).

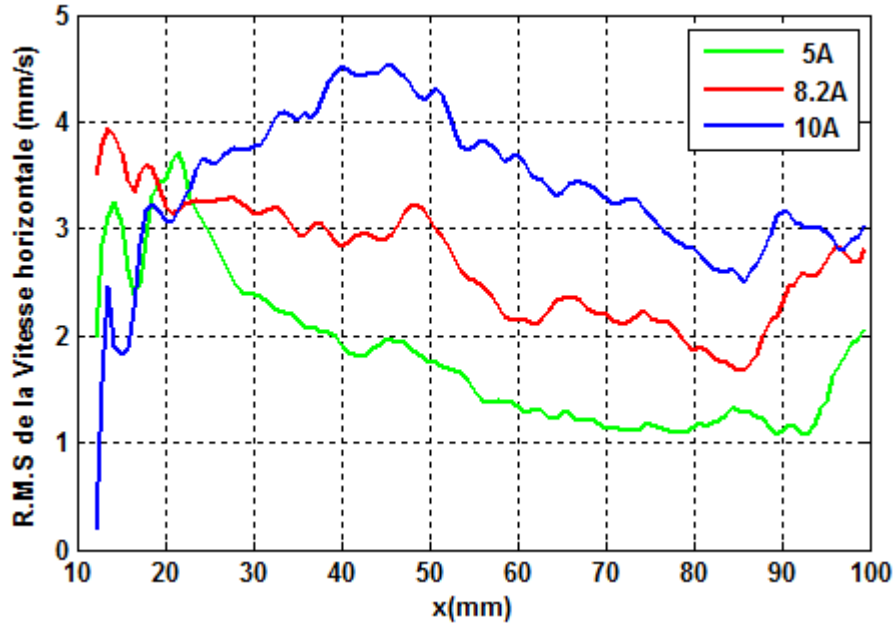


Figure V.12. Distribution de l'écart-type de vitesse turbulente le long de la direction x pour divers courants appliqués $I = 5, 8,2, 10A$.

Il est très important de noter que toutes les mesures expérimentales réalisées sur l'alliage Ga-In-Sn: (67wt% de Ga-20,5wt% Sn-12,5wt% In), sont utilisées pour estimer la configuration dynamique de l'alliage étain-plomb à l'état liquide sous le même mode brassage avec une approximation en prenant en compte le coefficient de similitude calculé par le rapport suivant:

$$\frac{velocity(Sn - Pb)}{velocity(Ga - In - Sn)} = \sqrt{\frac{\frac{\rho(Sn - Pb)}{\sigma(Sn - Pb)}}{\frac{\rho(Ga - In - Sn)}{\sigma(Ga - In - Sn)}}} = 0,4294 \quad (V.12)$$

Nous supposons que l'alliage Sn-10wt.%Pb à l'état liquide est un fluide newtonien et nous adoptons l'approximation de Boussinesq pour la masse volumique. L'équation de la quantité de mouvement est pour la vitesse instantanée:

$$\vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{u} \otimes \vec{u}) = -\vec{\nabla} p + \vec{F} + \rho \vec{g} \beta_T (T - T_0) + \rho \nu \nabla^2 \vec{u} \quad (V.13)$$

avec:

$$\begin{cases} F \equiv |\vec{F}| = |\vec{j} \times \vec{B}| \cong Ck^* \sigma \omega A_0^2 \\ Gr = \frac{g \beta_T \Delta T L^3}{\nu^2} \end{cases} \quad (V.14)$$

Dans notre étude le coefficient d'expansion thermique β_T est égal à ($\beta_T = 6,6 \times 10^{-5} K^{-1}$) et la viscosité cinématique ν est ($\nu = 2,67 \times 10^{-7} m^2.s^{-1}$). Par analogie, on peut définir un nombre de Grashof magnétique (Gr_m):

$$Gr_m = \frac{F \cdot L^3}{\nu^2} \quad (V.15)$$

Ainsi, on définit un rapport R_m entre l'effet de la convection forcée et la convection naturelle comme suit :

$$R_m = \frac{Ck^* \sigma \omega A_0^2}{\rho g \beta \Delta T} \quad (V.16)$$

Une simple application numérique avec $g = 9,81 m.s^{-2}$, et une différence de température moyenne imposée $\Delta T = 40K$, donne un ordre de grandeur pour le rapport R_m d'environ 10. On, peut donc facilement déduire que la convection forcée joue un rôle dominant dans notre configuration dynamique d'écoulement.

V.2. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LE CHAMP DE TEMPERATURE

Afin d'étudier l'effet du brassage électromagnétique sur l'évolution du champ de température et sur le gradient thermique local, l'étude sera présentée en deux parties. La première partie concerne une étude expérimentale comparative de deux thermocouples 'L23' et 'L39' en fonction des quatre cas de solidifications réalisées sur l'alliage Sn-10wt.%Pb :

- 1- **Cas-I** : Expérience de solidification sous l'effet de la convection thermosolutale.
Un brassage électromagnétique est appliqué pendant la première phase de stabilisation thermique seulement (référéncée LH19).
- 2- **Cas-II** : Expérience de solidification sous un brassage électromagnétique dans le même sens de la convection thermosolutale, maintenu jusqu'à la fin du processus expérimental (référéncée LH22).

- 3- **Cas-III** : Expérience de solidification sous un brassage électromagnétique dans le sens opposé de la convection thermosolutale, maintenu jusqu'à la fin du processus expérimental (référéncée *LH25*).
- 4- **Cas-IV** : Expérience de solidification sous un brassage électromagnétique alterné avec une fréquence de $0,125Hz$, maintenu jusqu'à la fin du processus expérimental (référéncée *LH29*).

Notons que toutes ces expériences sont réalisées sous les mêmes conditions expérimentales : différence de température expérimentale moyenne $\Delta T = 40K$, vitesse de refroidissement $CR=0,03K/s$ et intensité d'ampérage $I = 8,2A$.

Le choix des deux thermocouples *L23* et *L39* est justifié par le fait que le premier thermocouple (*L23*) caractérise un point correspondant généralement au dernier liquide (point le plus chaud) dans presque tous les cas étudiés. La macrostructure qui sera présentée ultérieurement dans la section de l'analyse post-mortem de ce chapitre, montre clairement que le point de mesure *L23* est situé dans une zone de grains équiaxes et ceci est vérifié dans la majorité des expériences de solidifications réalisées. Par contre, le thermocouple *L39* est situé dans la première zone solidifiée (zone la plus proche du côté froid), c'est-à-dire une zone colonnaire, généralement marquées par la formation des méso et macrosegregations (canaux ségrégés).

La deuxième partie porte sur l'effet des différents modes de brassage présentés précédemment sur l'évolution du champ de température, notamment sur la dynamique de l'écoulement (configuration de l'écoulement), ainsi que l'avancement du front de solidification.

Un récapitulatif des différentes expériences de solidification réalisées sous l'effet du brassage électromagnétique est donné dans l'annexe III, tableau (III.5) et (III.6). Les différentes configurations sont représentées sur la figure (V.13).

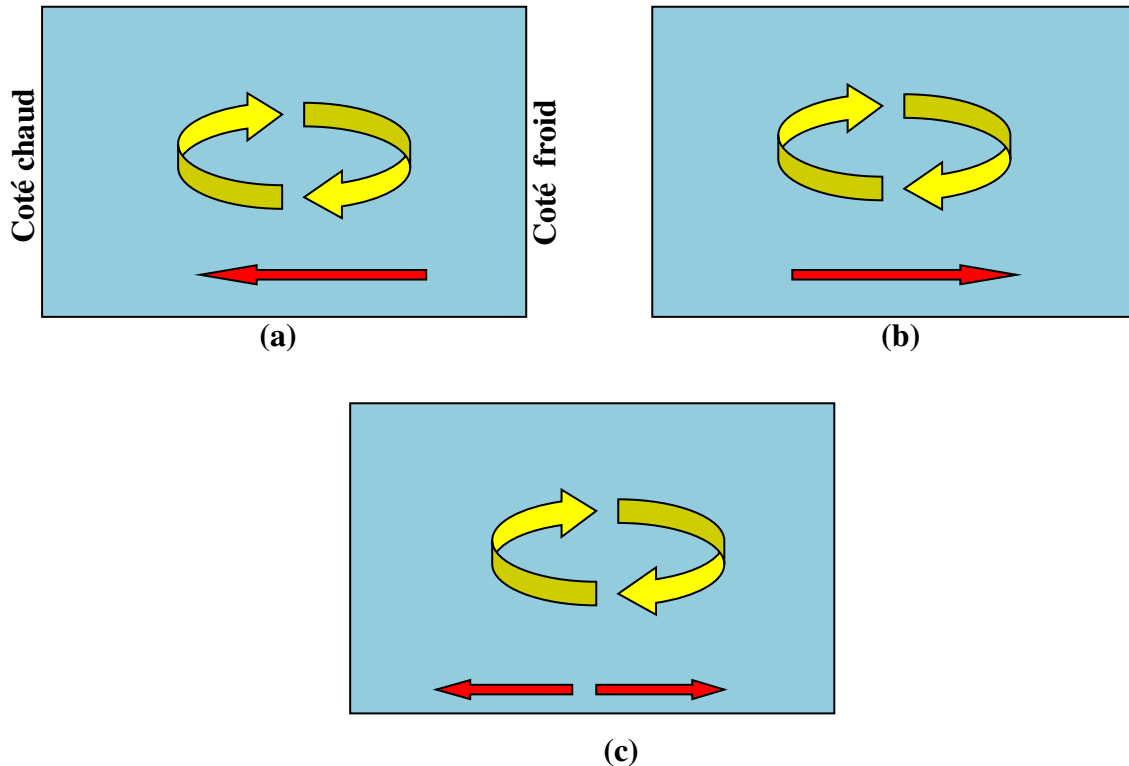
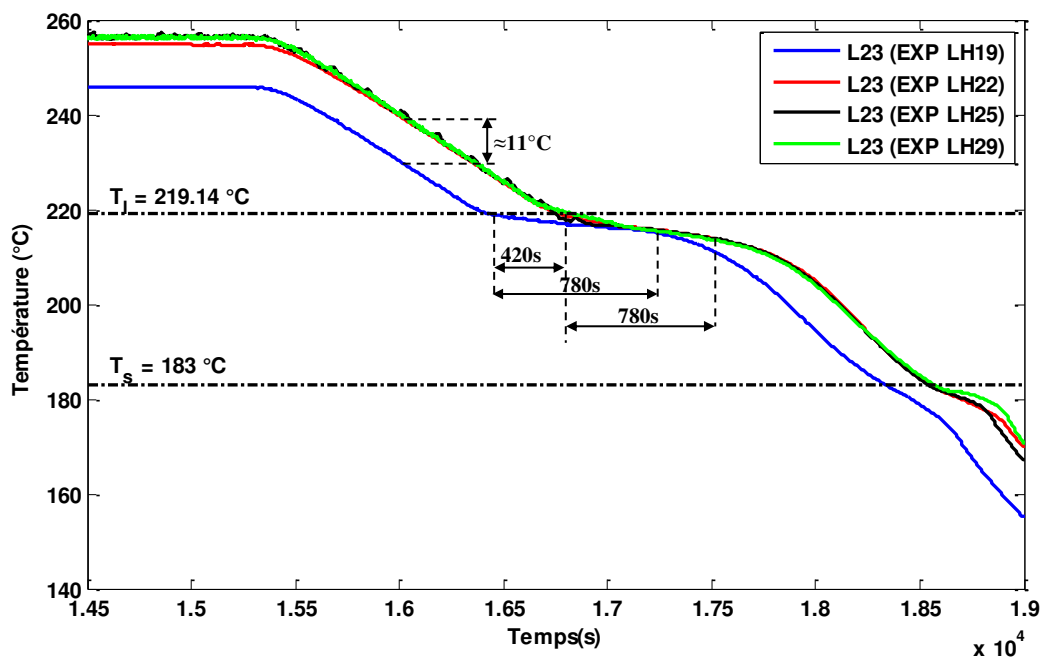


Figure V.13. Les différents modes de brassage électromagnétique par rapport au sens de la convection thermosolutale : (a) brassage dans le même sens de la convection naturelle, (b) brassage dans le sens opposé à la convection naturelle et (c) brassage alterné de fréquence ($f = 0,125\text{Hz}$).

La figure (V.14-a) montre clairement un écart de température d'environ 11°C entre la courbe de refroidissement du thermocouple *L23* de l'expérience *LH19*, réalisée sous l'effet de la convection naturelle et les trois autres cas réalisé sous l'effet du brassage électromagnétique (*LH22*, *LH25* et *LH29*), et qui présentent des courbes presque superposées dans ce cas. Cet écart est justifié par l'effet du brassage électromagnétique qui favorise le transfert thermique et l'homogénéisation de la température dans le bain liquide. Nous avons remarqué que toutes les courbes présentaient, le même point anguleux (changement de pente de refroidissement), à la température ($\approx 218,8^{\circ}\text{C}$) qui correspond au début de la solidification, c'est-à-dire une surfusion de ($\approx 0,34^{\circ}\text{C}$) par rapport à la température théorique de liquidus de l'alliage Sn-10wt.%Pb qui vaut ($T_L = 219,14^{\circ}\text{C}$). Cependant, on remarque un retard de solidification d'environ 420s pour les cas brassés par rapport le cas de la solidification thermosolutale. De plus, ce point de mesure (*L23*), présente dans tous les cas un large pseudo-palier d'environ 780s , correspondant à l'étape de solidification accompagnée d'un apport thermique important (chaleur latente), ce qui nous donne une forte probabilité quant à la formation des grains

équiaxes dans cette zone. Ce résultat est très cohérent avec les macrostructures révélées pour ces cas de solidification que l'on présentera ci-après.

Pour le thermocouple *L39* présenté dans la figure (V.14-b), le même écart de température d'environ (11°C), est enregistré entre *LH19* et les autres cas brassés (*LH22*, *LH25* et *LH29*). Les courbes de refroidissement présentent des points anguleux à différentes surfusions, qui varient entre $1,8$ et $2,4^{\circ}\text{C}$, par exemple, le thermocouple *L39* mesure une surfusion d'environ ($\approx 1,8^{\circ}\text{C}$) pour le cas l'expérience *LH19*, et entre 2 et $2,4^{\circ}\text{C}$ pour les autres cas. Il est important de noter qu'en ce point de mesure, les expériences *LH19* et *LH22* ne présentent quasiment aucun palier de solidification comparé aux larges paliers du thermocouple *L23*. Cependant le thermocouple *L39* présente un pseudo-palier de 70s pour le cas du brassage alterné (*LH29*) et d'environ 110s pour le cas brassé dans le sens opposé de la convection (*LH25*). Ce comportement peut être probablement expliqué par la nature colonnaire se la solidification dans cette zone où le dégagement de la chaleur latente est moins important que celui de la structure équiaxe. Ce thermocouple est situé à une distance de $1,5\text{cm}$ du côté froid et 2cm de la base du creuset, ce qui correspond à une zone caractérisée par des faibles valeurs de vitesses convectives et par la formation des premières couches solides, raison pour laquelle ce thermocouple ne donne pas des indications claires sur le dégagement de la chaleur latente.



(a)

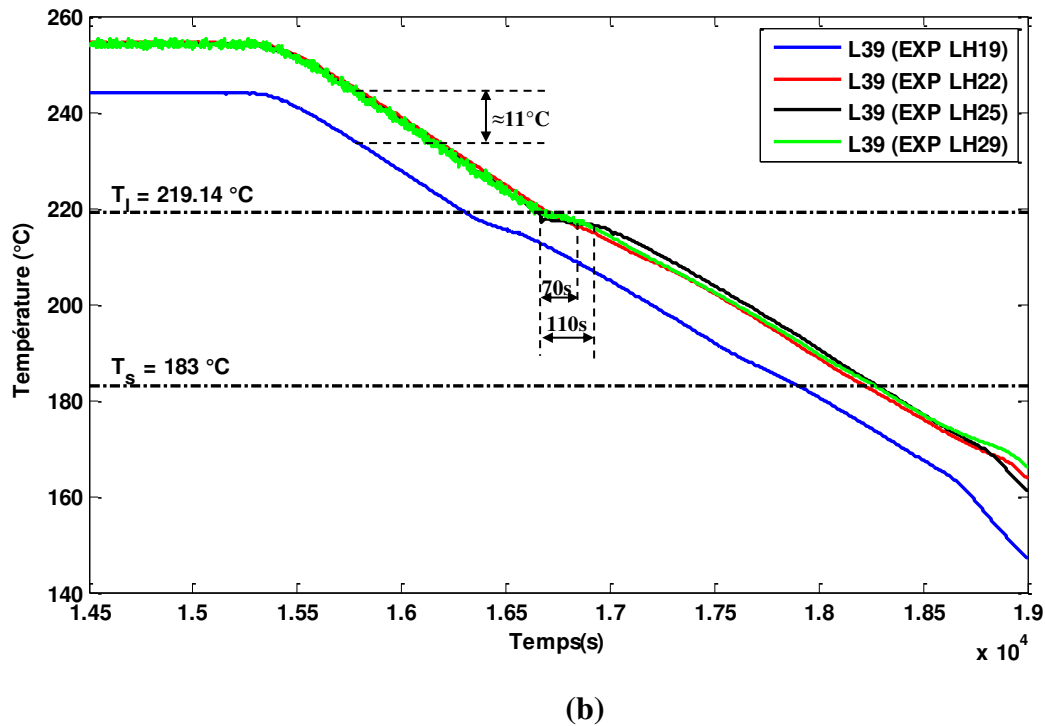


Figure V.14. Les courbes de refroidissement obtenues à partir des données expérimentales. (a) thermocouple L23 et (b) thermocouple L39, pour les trois cas de brassage décrits précédemment comparés au cas de solidification sous la convection naturelle (thermosolutale). Les conditions expérimentales: Sn-10wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$, courant appliqué $I = 9,5A$, fréquence $f = 50Hz$, conductivité électrique de l'alliage $\sigma = 1.86 \times 10^6 \Omega^{-1}.m^{-1}$, champ magnétique $B_0 = 45mT$.

Dans la deuxième partie de cette étude comparative, les cartes de température couplées aux vecteurs des gradients thermiques locaux pour les quatre cas de solidification discutés précédemment (LH19, LH22, LH25, LH29) à trois moments choisis pendant le refroidissement sont présentées sur la figure (V.15). Les valeurs numériques correspondantes du champ de température instantané sont données dans l'annexe III (tableau III.6). Rappelons qu'à l'étape initiale, la différence de température entre les deux faces transversales où ont lieu les échanges thermiques est de $\Delta T = 40K$ ($FL3 = 280^\circ C$, $FR3 = 240^\circ C$). Ainsi, avec l'application du courant $I = 8,2A$, un champ magnétique glissant est généré par le moteur linéaire triphasé, traversant la charge Sn-10wt.%Pb à l'état liquide, en créant des courants induits. Le couplage entre les courants induits et le champ magnétique glissant crée une force motrice (force de Lorentz) responsable du brassage.

Prenons l'instant $t = 16300s$, comme l'instant initial $t_i = 0s$, pour lequel il y a l'apparition des premières couches solides dans l'angle inférieur droit (coté froid) pour

l'expérience de solidification réalisée sous l'effet de la convection naturelle (thermosolutive) *LH19*. Le champ de la température et le champ des fractions solides calculé par le modèle de Scheil-Gulliver, correspondant à cet instant sont illustrés dans la figure (V.15). Sous l'action de la convection thermique, la température la plus basse est localisée dans le coin inférieur droit. Les isothermes et le front de solidification progressent avec une pente positive. L'état actuel de cette zone solidifiée en ce coin droit est pâteux, mais la majorité du reste de la charge est complètement liquide.

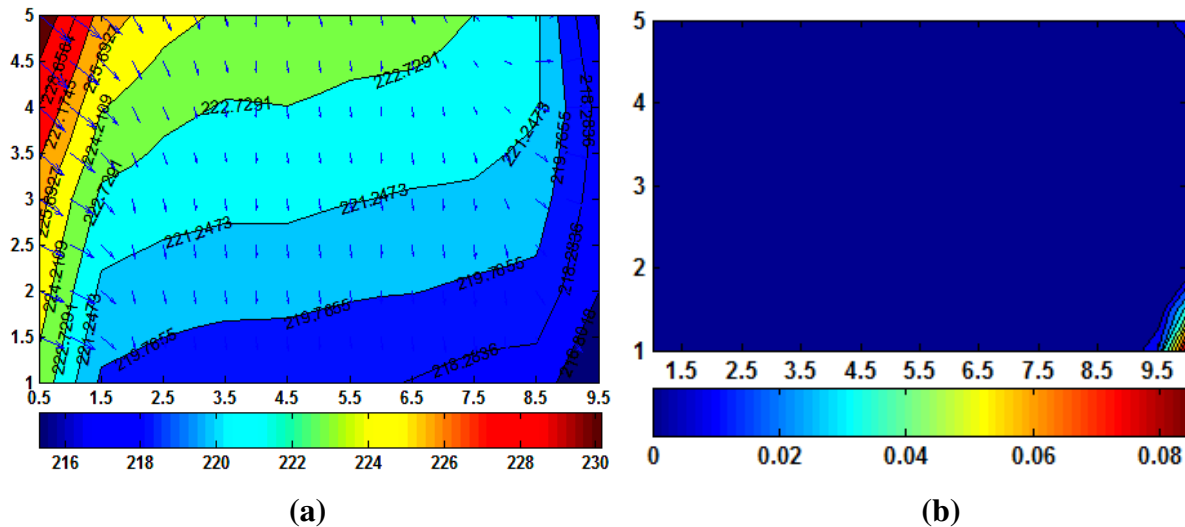
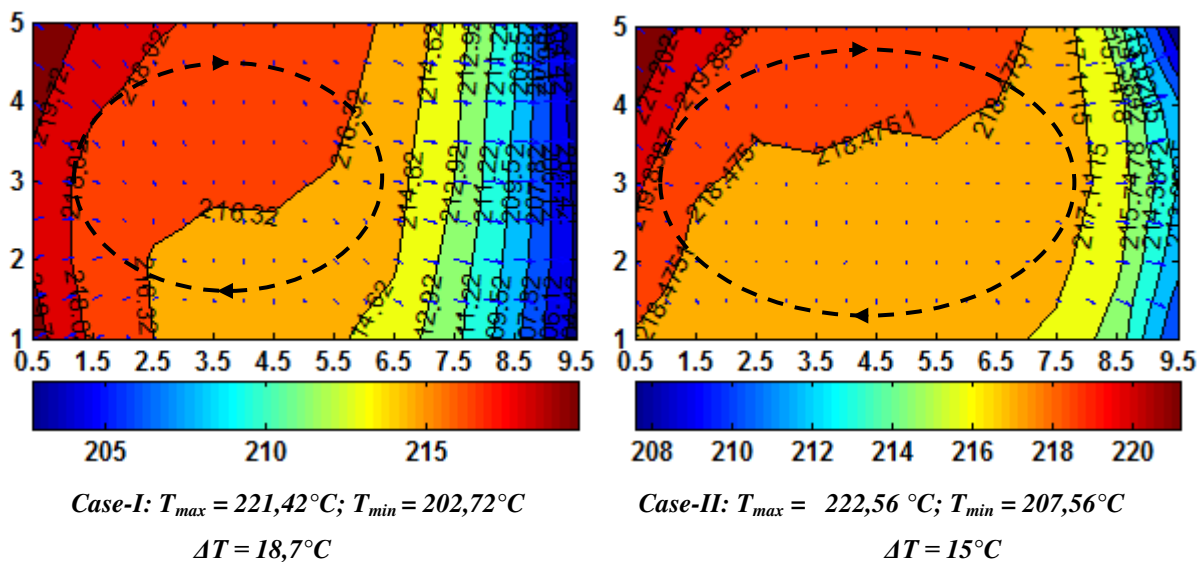


Figure V.15. Carte de température avec les vecteurs du gradient thermique local (a) et fraction solide (b) à l'instant choisi 16300s. Alliage Sn-10wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$, expérience LH19.

Les cartes de température avec les vecteurs du gradient thermique local aux trois moments représentatifs: $t_i = 9, 15$ et $24mn$, pour les quatre cas discutés précédemment sont montrées dans la figure (V.16). Les valeurs numériques correspondantes sont données dans l'annexe (tableau III.7). À l'instant $t_i = 9mn$, (voir la figure V.16-a). Nous utilisons DT pour désigner la différence de température entre la température maximale et la température minimale de chaque cas de distribution de la température ($DT = T_{max} - T_{min}$), et si l'on prend le sens de rotation horaire, comme un sens de comparaison. Quand la convection forcée est imposée, DT diminue de $18,7^\circ C$ à $15^\circ C$, $14,9^\circ C$ jusqu'à $10,2^\circ C$. Cependant, il y a une augmentation de la température minimale (T_{min}) du *Cas-I* (convection naturelle) par rapport aux autres cas brassés de $202,72^\circ C$ à $212,63^\circ C$ en passant par $207,56^\circ C$ et $208,05^\circ C$. Le même comportement a été remarqué sur la température maximale (T_{max}), on observe une augmentation de $221,42^\circ C$ jusqu'à $222,83^\circ C$. Les cartes de température montrent clairement l'effet du brassage électromagnétique sur la distribution de la température, notamment sur

l'homogénéisation de la température dans la charge liquide, et par conséquent sur la configuration de la dynamique d'écoulement. Ainsi, l'étude comparative à cet instant ($t_i = 9mn$), a montré que le brassage dans le sens de la convection (*Cas-II*), favorisait fortement la convection, effet remarqué par l'apparition d'une stratification thermique des isothermes dans le coté froid. Nous avons remarqué que le troisième mode de brassage (brassage dans le sens opposé de la convection) a complètement changé le sens d'écoulement. Ceci est indiqué par la déformation des isothermes dans ce cas avec une pente négative ce que signifie l'apparition d'un vortex dans le sens opposé de la convection thermosolutale dite naturelle. Cependant, le brassage alterné (*Cas-VI*) a créé deux petits vortex de différentes directions, le premier est localisé dans le côté gauche ayant le sens de la convection naturelle et le deuxième est activé dans le côté droit (coté froid) avec un sens opposé. Rappelons que la fréquence du brassage de ce mode est $0,125Hz$, c'est-à-dire une durée de $8s$ dans chaque sens, ce choix a été basé sur deux études (expérimentale et théorique) réalisées dans les travaux de X.D. Wang et al [2-3]. Dans l'étude théorique une gamme de modulation entre $0,05$ et $0,25Hz$ a été proposée afin d'avoir suffisamment de temps pour amortir les instabilités à un niveau de turbulence normale. Il est important de noter l'efficacité du brassage modulé sur l'homogénéisation de la température, ce qui est discernable sur les cartes thermique du *Cas-IV* dans tous les instants choisis. Ce mode de brassage est caractérisé par la température maximale la plus élevée par rapport aux trois autres cas.



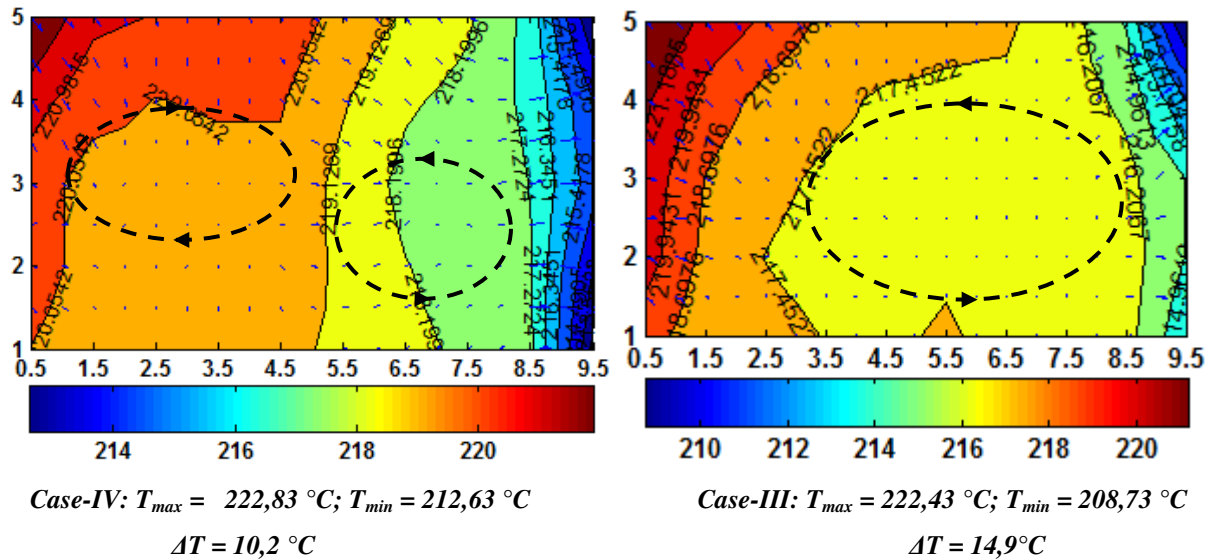


Figure V.16. Cartes de température couplées aux vecteurs des gradients thermiques locaux pour les quatre expériences de solidification (LH19, LH22, LH25 et LH29), à l'instant $t_i = 9mn$. Les conditions expérimentales: Sn-10wt.%Pb, $\Delta T = 40K$, CR = 0,03K/s, courant appliqué $I = 8,2A$.

L'instant $t_i = 15mn$, est présentée dans la figure (V.17). Nous avons observé s'agissant de DT une tendance identique à celle de l'instant précédent. DT diminue de $22,6\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $13,8\text{ }^{\circ}\text{C}$ passant par $16\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $13,9\text{ }^{\circ}\text{C}$, toujours dans le même sens de comparaison choisi. Une augmentation significative a été remarquée quant à l'évolution de la température minimale (T_{min}) de $193,52\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $200,46\text{ }^{\circ}\text{C}$, $202,83\text{ }^{\circ}\text{C}$ jusqu'à atteindre $203,43\text{ }^{\circ}\text{C}$. La température maximale, T_{max} varie légèrement entre $216,12\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $217,05\text{ }^{\circ}\text{C}$. Un retard d'avancement du front de solidification a été observé pour les cas brassés (Cas-II, Cas-III et Cas-IV). Les cartes thermiques de ces cas montrent que le front de solidification n'a pas dépassé une distance $3,5cm$ alors que dans le premier cas le pied du front de solidification a parcouru une distance d'environ $6,5cm$ ($\approx 65\%$ du lingot est solidifiée). Un deuxième front de solidification a été observé au coin bas gauche dans la carte du champ de température du Cas-III (brassage dans le sens opposé). Ceci est probablement dû au blocage imposé par l'inversion du sens de la convection forcée par rapport à la convection naturelle qui est responsable du ralentissement de la diffusion de la chaleur latente issue des couches solides formées, dans le bain liquide, ce qui favorise la germination dans le liquide en surfusion. Par contre pour les autres cas de solidification, nous pensons que l'agitation thermique est assez forte pour qu'un

germe au-dessous de la taille critique, puisse se développer par effet de refonte, notamment dans le cas brassé dans le sens de la convection.

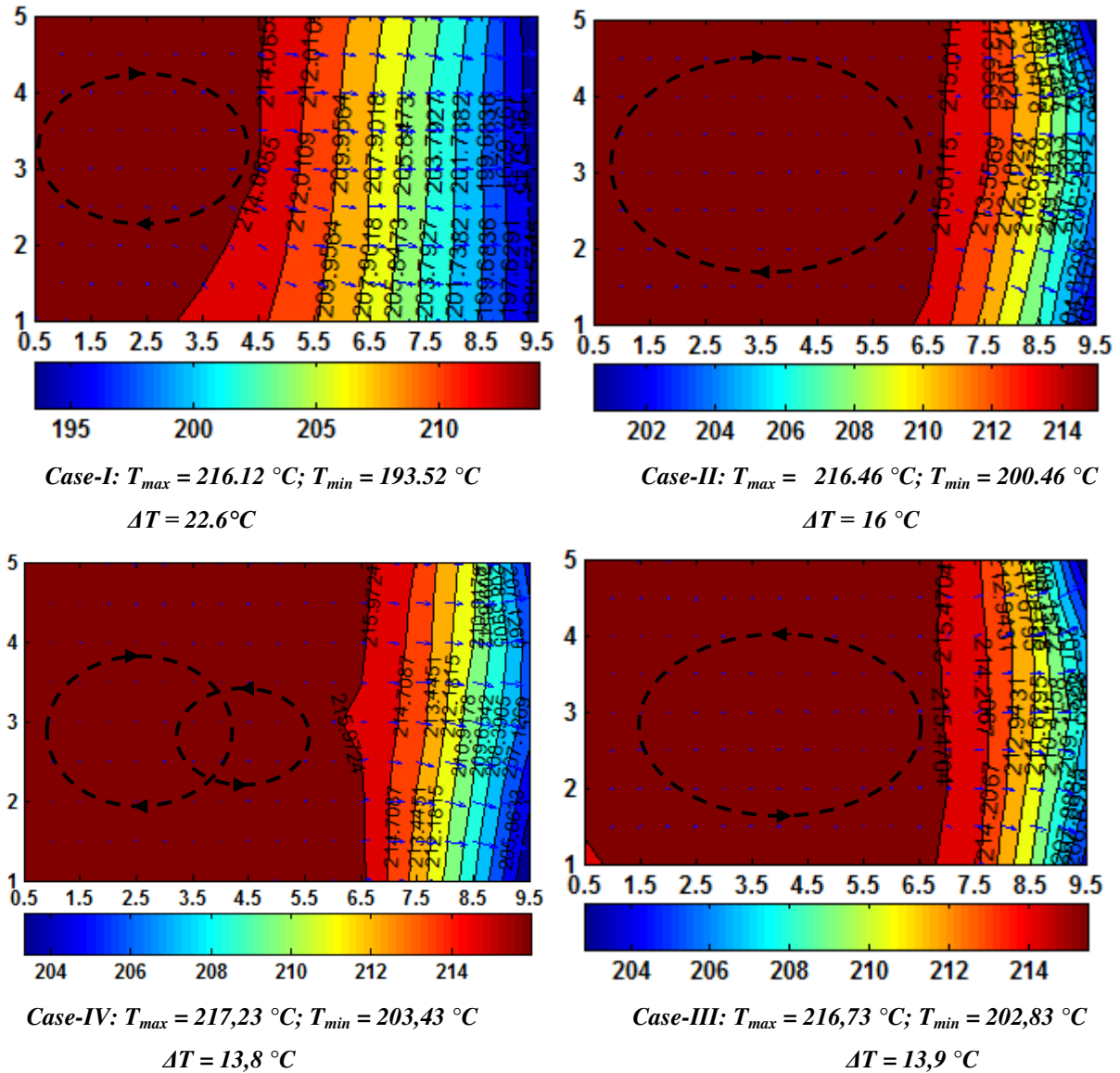


Figure V.17. Cartes de température couplées aux vecteurs des gradients thermiques locaux pour les quatre expériences de solidification (LH19, LH22, LH25 et LH29), à l'instant $t_i = 15\text{mn}$. Les conditions expérimentales sont: Sn-10wt.%Pb, $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03\text{K/s}$, courant appliqué $I = 8,2\text{A}$.

La figure (V.18) correspond à l'instant $t_i = 24\text{mn}$, selon toujours le sens de comparaison adopté. Nous avons remarqué le même comportement par rapport aux moments précédents : une diminution de DT de $25,9^{\circ}\text{C}$ à $20,9^{\circ}\text{C}$, avec cependant une exception. En effet, la différence de température du Cas-IV ($DT = 21,3^{\circ}\text{C}$) est supérieure à celle de Cas-III qui vaut ($DT = 20,9^{\circ}\text{C}$). T_{min} et T_{max} sont augmenté de $180,72^{\circ}\text{C}$ à $191,03^{\circ}\text{C}$ et de $206,62^{\circ}\text{C}$ à

212,33°C, respectivement. Le front de solidification des cas brassés (II, III et IV) est en recul d'environ 2cm par rapport le *Cas-I*, (front de solidification localisé au niveau de 2.5cm ce que signifié 80% du lingot est solidifié). L'apparition du deuxième front dans le côté gauche a été observée dans toutes les cartes de température, notamment dans le *Cas-III* (la distance parcourue est 2cm). La déformation des isothermes dans les cas brassés et les faibles valeurs des gradients thermiques locaux, donnent des indications claires sur l'activité du brassage électromagnétique dans le dernier liquide.

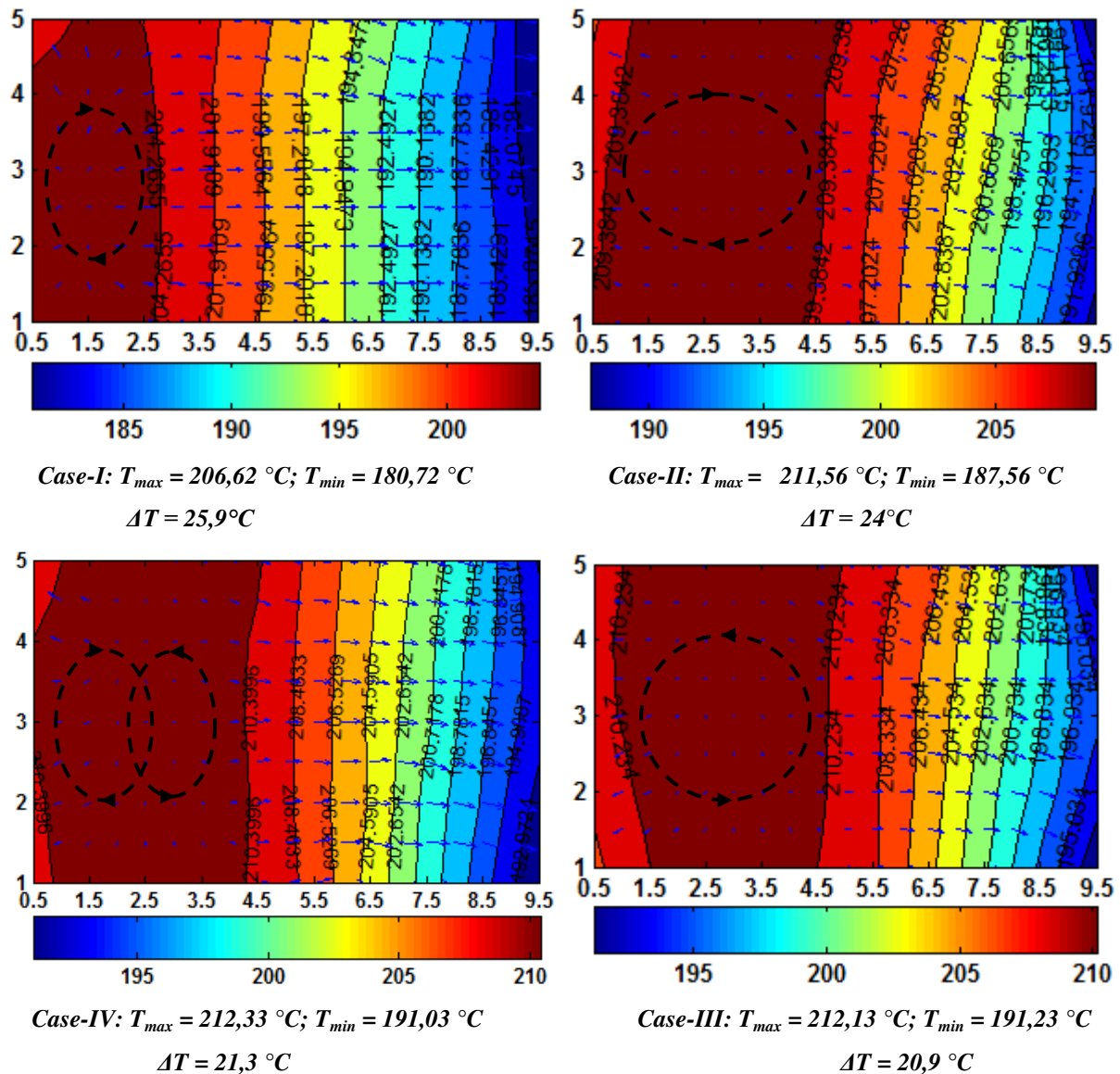


Figure V.18. Cartes de température couplées aux vecteurs des gradients thermiques locaux pour les quatre expériences de solidification (LH19, LH22, LH25 et LH29), à l'instant $t_i = 24\text{mn}$. Les conditions expérimentales sont: Sn-10wt.%Pb, $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03\text{K/s}$, courant appliqué $I = 8,2\text{A}$.

V.3. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA STRUCTURE DES GRAINS

Afin d'évaluer l'effet des différents modes de brassage électromagnétique sur la structure cristalline finale et la taille de grain, les macrostructures des lingots obtenus à partir des quatre expériences de solidification ont été révélées par la procédure détaillée dans le chapitre IV dans la section des analyses post-mortem.

La figure (V.19-a) présente la macrostructure du cas de la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb, sous l'effet de la convection thermosolutale de l'expérience *LH19*. Il est clair que la morphologie dominante dans la macrostructure de ce cas est colonnaire avec une transition colonnaire-équiaxe (CET), correspondant au dernier liquide à la fin de solidification. Le processus de la CET peut être expliqué par la diminution du gradient thermique dans le bain liquide (voir les cartes thermiques présentées dans la figure (V.16)) et l'augmentation de la vitesse du front de solidification à cause de l'amélioration de l'échange thermique entre les parties solidifiées et les deux échangeurs. L'inclinaison des grains colonnaire est cohérente avec le sens de la convection naturelle. Au niveau de la base du lingot, nous avons remarqué une croissance d'une deuxième structure colonnaire d'inclinaison différente, due probablement à la stratification du plomb par effet gravitationnel (liquide riche en élément de soluté) qui pourrait favoriser la croissance des dendrites colonnaires.

Par ailleurs, la figure (V.19-b) présente le cas de la solidification sous l'effet de la convection forcée dans le même sens de la convection thermosolutale (*LH22*). Nous avons remarqué que la zone des grains colonnaires a bien régressée. La zone colonnaire de la partie inférieure a presque entièrement disparue, tandis que la zone équiaxe a progressé de manière importante. Ce résultat peut être attribué à l'effet de la force de Lorentz (brassage électromagnétique), localisée dans la partie liquide de l'alliage, créant des vortex de convection au voisinage de l'interface solide-liquide. L'apport de flux convectif chaud depuis le bain liquide ou de liquide riche en soluté (pour un coefficient de partage $k < 1$) depuis le fond de la zone pâteuse peut provoquer la refonte des bras secondaires et par conséquent crée des fragments. Emportés par la convection, ces fragments, sous certaines conditions, peuvent donner naissance à des grains équiaxes.

Le cas du brassage dans le sens opposé de la convection thermosolutale (*LH25*), est présenté dans la figure (V.19-c). Une zone de grains majoritairement équiaxe de taille fine sur presque 85% du lingot, a été observée. Une structure colonnaire est localisée dans l'angle

inférieur droit (coté froid) du lingot. Il est important de noter que l'efficacité du brassage électromagnétique pour affiner la structure est améliorée de manière importante lorsque nous avons inversé le sens du brassage par rapport la convection naturelle. En parallèle de l'effet mécanique de fragmentation appelé (*effet de col*), ce mode de brassage a permis une pénétration importante du liquide dans la zone pâteuse et pourrait renforcer l'effet de la refusion des bras dendritiques. Ces résultats sont en bonne cohérence avec le critère de Fleming sur la refusion de bras de dendrites développé dans la section suivante. Ce critère est basé sur la comparaison entre la vitesse du liquide interdendritique, u_l^d , et la vitesse d'avancement des isothermes, V_T . Il a été montré que la refusion des bras de dendrites peut être attribué à deux facteurs principaux :

- soit l'augmentation de la température ou de la concentration du liquide environnant. L'augmentation de la température du liquide est induite par la pénétration du liquide chaud, provenant du bain liquide, dans la zone pâteuse (vitesse entrante).
- soit l'augmentation de la concentration moyenne provoquée par la convection du liquide interdendritique dans le sens du gradient thermique (vitesse sortante de la zone pâteuse). Le mécanisme de refusion des bras dendritiques devient prépondérant si la vitesse du liquide interdendritique est supérieure à la vitesse d'avancement des isothermes dans le sens de progression du front de solidification. La refusion est donc effective lorsque $u_l^d > V_T$.

Un deuxième phénomène peut probablement avoir lieu, favorisant à son tour le processus de fragmentation des bras dendritiques. Il s'agit de l'augmentation de la viscosité du liquide interdendritique due à la présence même de ces fragments, ce qui pourrait diminuer certainement la vitesse de l'écoulement dans la zone pâteuse mais favorisait l'entraînement des fragments transportés par les mouvements de la convection forcée. Notons que ce phénomène a été traité dans les travaux de J. P. Gu et al [7], et Q. Li et al [8].

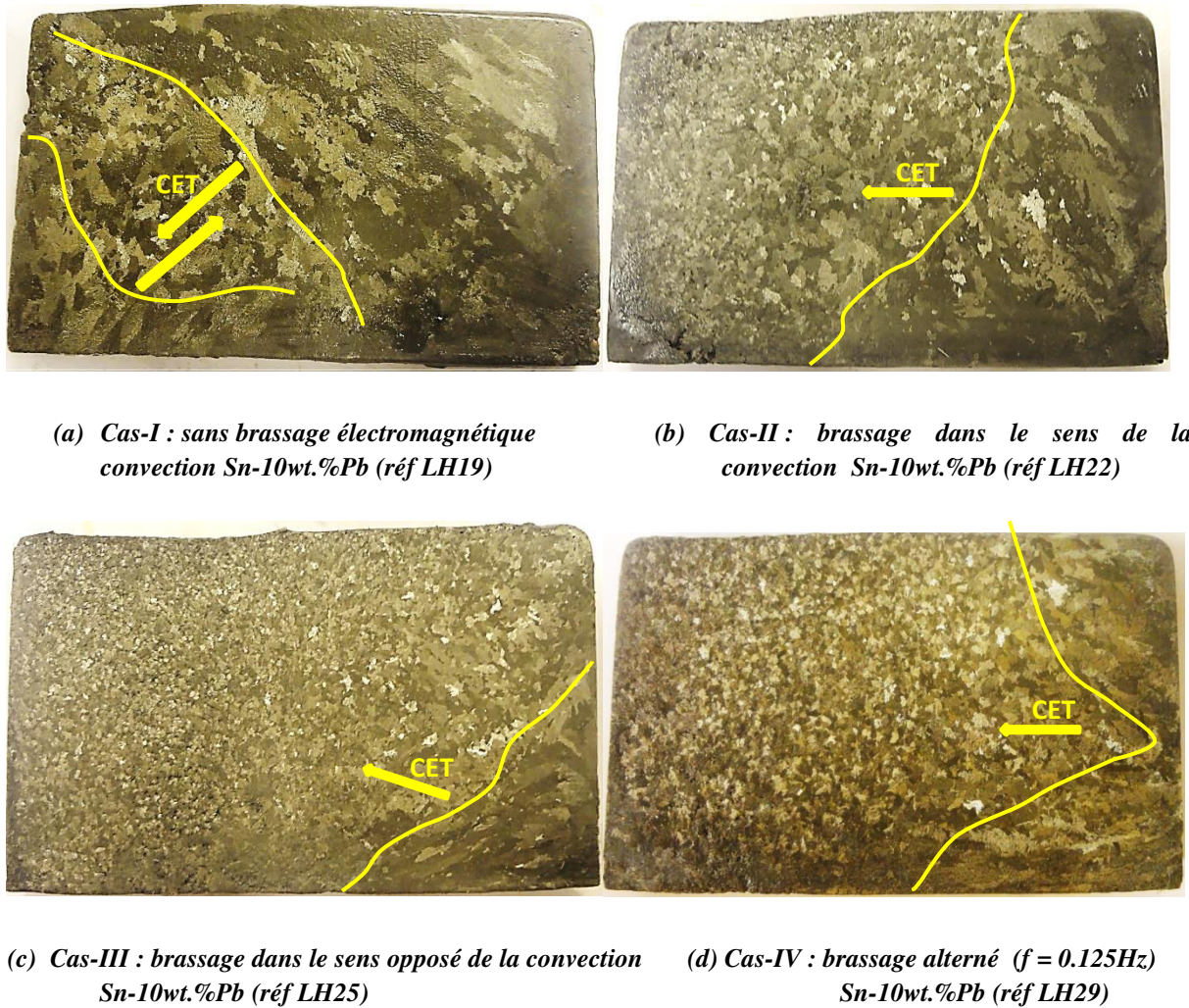


Figure V.19. Macrostructure sur le plan latéral de différents lingots de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Pour une différence de température $\Delta T = 40\text{K}$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03\text{K/s}$ et intensité du courant appliquée $I = 8,2\text{A}$. Quatre cas sont présentés: Cas-I solidification sous l'effet de la convection naturelle (a), Cas-II solidification sous l'effet du brassage électromagnétique dans le même sens que la convection naturelle (b), Cas-III solidification sous l'effet du brassage électromagnétique dans le sens opposé que la convection naturelle (c) et Cas-IV solidification sous l'effet du brassage électromagnétique alterné (fréquence d'inversion du sens des forces $f = 0,125\text{Hz}$).

La figure (V.19-d) présente le cas de la solidification sous l'effet d'un brassage alterné avec une fréquence de $0,125\text{Hz}$, (expérience LH29). Ce cas présente, aussi, une structure majoritairement équiaxe. Une structure colonnaire est localisée dans les deux angles du côté froid (côté droit). Notons que ce mode de brassage a montré son efficacité à homogénéiser la

température dans le liquide en diminuant sensiblement le gradient thermique (voir les cartes de température dans la figure V.16). Nous avons remarqué que dans ce mode de solidification sous l'effet du brassage électromagnétique, l'étendue de la zone liquide en surfusion, en avant du front de solidification, est presque deux fois plus importante que dans le cas de la solidification sous l'effet de la convection thermosolutale (LH19). Maintenir cette surfusion importante a favorisé considérablement la refonte des fragments. Le choix de la fréquence $f=0,125Hz$, est assez adéquat pour favoriser le processus de la fragmentation des bras dendritique, ainsi que l'affinage des grains. En effet, il a été démontré dans le travail de X.D. Wang [9] par des moyens de modélisation numérique qu'un mouvement convectif périodiquement inversé entraîné dans la zone pâteuse est capable de diminuer l'importance de la méso et la macroségrégation et par conséquent supprimer la formation des canaux ségrégés. Pour parvenir à cette suppression du canal, il s'avère qu'il existe une période de modulation optimale qui n'est pas trop longue pour éviter le développement de canaux ségrégés, et pas trop courte pour extraire le soluté ou de le transporter à une distance considérable dans le bain liquide. Le temps caractéristique typique impliqué dans ce mécanisme est le temps de transit de flux convectif dans la zone pâteuse, qui peut varier d'environ 4 à 20 secondes selon la porosité de la zone pâteuse considérée. D'autre part, le flux convectif doit être assez grand pour atteindre l'homogénéisation du soluté. Donc, il reste toute une gamme de fréquence variant entre $0,05$ et $0,25Hz$, à explorer expérimentalement, afin de savoir si le choix le plus optimal pour contrôler et améliorer la structure cristalline finale, notamment pour diminuer, voir même supprimer les défauts liés aux ségrégations.

V.3.4. CRITERE DE FLEMINGS SUR LA REFUSION LOCALE DES BRAS DENDRITIQUE

Le phénomène de refusion d'un alliage se traduit par la diminution de sa fraction volumique de solide. Considérons un bras de dendrite de section circulaire en cours de refusion, la fraction de solide, en deux dimensions, s'exprime comme le rapport de la surface occupée par le solide sur la surface disponible (figure V.20) :

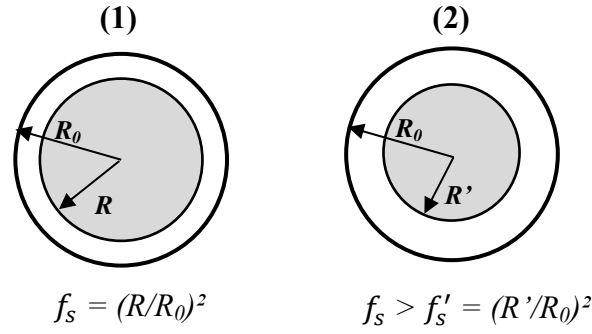


Figure.V.20. Illustration schématique de la refusion d'un bras de dendrite de section circulaire

Lors de la refusion de ce bras de dendrite, le rayon et la fraction de solide diminuent (figure. V.20). En considérant la loi des leviers, le diagramme de phase binaire ($k < 1$) présenté à la figure (V.21) correspond aux situations pour lesquelles le rayon de la section du bras de dendrite est égal à $R(1)$ et à $R'(2)$, $R > R'$ (voir figure. V.21). La diminution de la fraction de solide peut donc être obtenue en augmentant la température pour une même concentration moyenne C_l (de T_1 à T_2) ou en augmentant la concentration moyenne pour une même valeur de la température T_1 (de C_1 à C_2). La refusion locale d'un bras de dendrite est donc induite par un apport de liquide chaud ou plus riche en soluté.

Ce phénomène de variation de la concentration a été étudié lors d'études portant sur la macroségrégation présentée dans le premier chapitre, prenant en compte la vitesse d'avance des isothermes, la vitesse du fluide interdendritique, la variation de densité et de la fraction de solide volumique. L'équation LSRE, développée par Flemings [11], et décrivant ce phénomène (diffusion nulle dans le solide) s'écrit :

$$\frac{\partial f_L}{\partial c_L} = -1 \left(\frac{1 - \beta}{1 - k} \right) \left(1 + \frac{u_l^d \cdot \nabla T}{CR} \right) \frac{f_L}{c_L} \quad (V.17)$$

où β est le coefficient de retrait ($\beta = \rho_l / \rho_s - 1$), u_l^d la vitesse du liquide interdendritique, CR la vitesse de refroidissement, f_l la fraction de liquide et f_s la concentration du liquide. ρ_l et ρ_s sont les masses spécifiques des phases liquide et solide, respectivement.

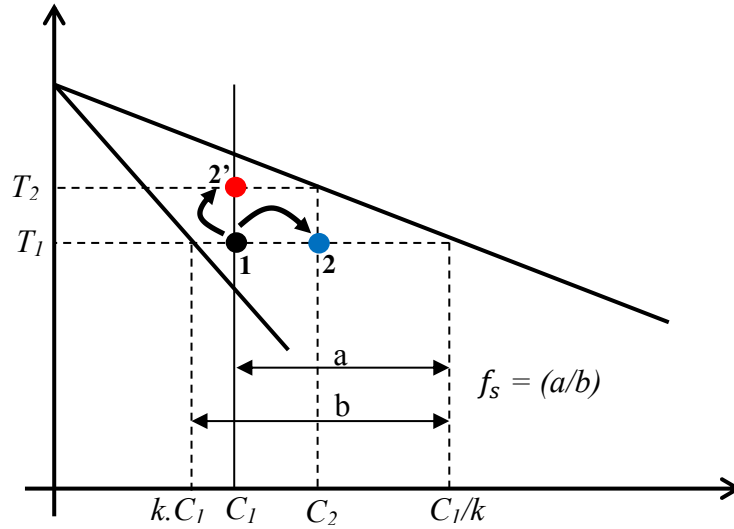


Figure. V.21. Diagramme de phase binaire illustrant le mécanisme de la refusion des bras de dendrite

Or, la vitesse de refroidissement peut s'exprimer en fonction de la vitesse d'avance des isothermes, V_T , suivant la relation:

$$|CR| = V_T \cdot \nabla T$$

L'équation (V.17) devient :

$$\frac{\partial f_L}{\partial c_L} = - \left(\frac{1 - \beta}{1 - k} \right) \left(1 + \frac{u_L^d \cdot \nabla T}{V_T \cdot \nabla T} \right) \frac{f_L}{c_L} \quad (V.18)$$

et par projection sur la direction d'avancement (direction parallèle à ∇T) on obtient :

$$\frac{\partial f_L}{\partial c_L} = - \left(\frac{1 - \beta}{1 - k} \right) \left(1 + \frac{u_n}{V_T} \right) \frac{f_L}{c_L} \quad (V.19)$$

Dans le cas où les masses spécifiques des phases solide et liquide sont considérées égales, β devient nul. Après intégration de la relation (V.19), une relation de type Scheil (cas pour lequel il n'y a pas de convection interdendritique, $u_n = 0$) est obtenue, en fonction des vitesses du liquide interdendritique et d'avance des isothermes :

$$f_L = \left(\frac{C_L}{C_0} \right)^{-\left(\frac{1}{1-k}\right)\left(1-\frac{u_n}{V_T}\right)} \quad (V.20)$$

On définit alors un critère de refusion lorsque :

$$\frac{u_n}{V_T} > 1 \quad (V.21)$$

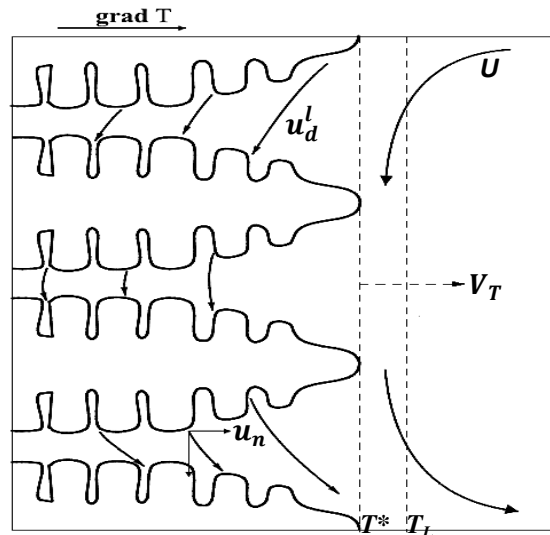


Figure. V.22. Représentation schématisée des vitesses de convection dans le liquide, U , et dans les régions interdendritiques, u_d^l , et sa projection sur le gradient de température, parallèle à la direction d'avancement des isothermes, u_n . La vitesse d'avancement des isothermes est notée V_T .

A l'échelle d'un bras secondaire de dendrite, si la vitesse du liquide interdendritique sortante est plus importante que la vitesse d'avance des isothermes, dans le sens du gradient de température, il y aura donc un apport de liquide plus froid et plus allié (figure. V.22). On peut alors considérer que la température plus basse du liquide avoisinant n'aura pas d'influence comparé à l'effet de la concentration en soluté, la diffusion de la chaleur étant très rapide par rapport à celle du soluté, homogénéisant la température rapidement. Par contre, l'augmentation de la concentration moyenne du liquide avoisinant provoque la refusion du bras de dendrite jusqu'à refusion complète de son "col", permettant le détachement du fragment (voir figure. V.21). En effet, la formation des canaux ségrégués est une conséquence directe de ce phénomène dans le cas de la convection naturelle ou forcée, dans lesquels des fragments de dendrites refondus sont emportés par la convection allant dans le sens du gradient de température, A. Hellawell et al [12]. Dans ce cadre, on définit un nombre qui exprime le rapport entre la diffusivité thermique et le coefficient de diffusion, le nombre de Lewis. Dans notre cas, ce nombre est égal à $6,84 \times 10^3$ et $6,05 \times 10^3$ pour l'alliage Sn-3wt.%Pb et Sn-10wt.%Pb, respectivement (voir les valeurs de la diffusivité thermique et du coefficient de diffusion dans le liquide en annexes I).

Il semble donc que la fragmentation ne soit effective que lorsque les bras secondaires de dendrites sont suffisamment développés (présence d'un "col" à la base du bras de dendrite). T. Companella [13], a estimé approximativement la distance à laquelle un bras secondaire est

susceptible d'être refondu (figure. V.23), par l'observation d'une dendrite d'alliage organique SCN-acétone. Dans ce cas, cette distance est égale à $400\mu\text{m}$, ce qui correspond à environ $8\lambda_2$.

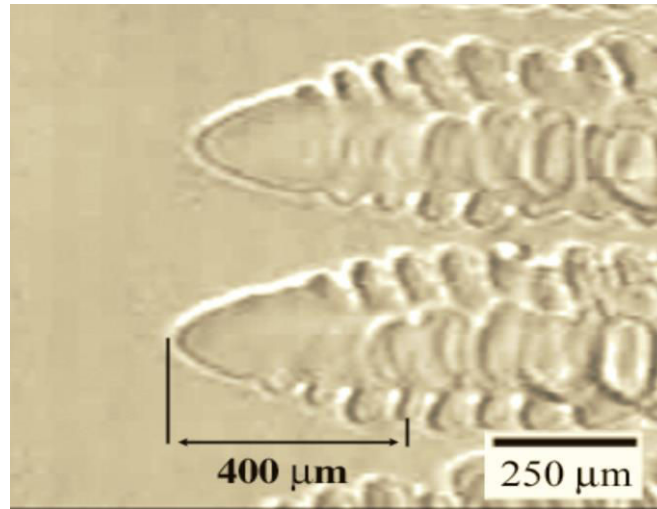


Figure. V.23. Agrandissement de la figure (I.6) illustrant la croissance dendritique d'un alliage organique SCN-acétone. Cette figure a été utilisée pour déterminer la distance à partir de laquelle un bras secondaire de dendrite peut donner naissance à un fragment, c'est-à-dire de laquelle il présente un « col » à sa base, P. D. Grasso [14].

La position du brasseur électromagnétique par rapport à la position de l'isotherme qui correspond au liquidus est un paramètre prépondérant sur la refusion des bras de dendrites, puisque cette refusion dépend directement de la vitesse du liquide interdendritique. On peut notamment estimer la distance minimale nécessaire pour induire la refusion, en déterminant l'ordre de grandeur de la vitesse du liquide interdendritique via l'écoulement de type Darcy en négligeant l'effet de pesanteur :

$$u_n = -\frac{k_p}{\rho\nu} \frac{dp}{dz} \quad (V.22)$$

où p est la pression. On peut alors estimer l'ordre de grandeur du gradient de pression induit par l'action du champ magnétique, R. Moreau [15] : $B_0^2/\mu_0 \cdot L$. Dans notre cas, on définit L comme, H , la hauteur du creuset qui correspond à ($H=6\text{cm}$). L'équation (V.22) devient donc :

$$u_n \sim \frac{k_p}{\rho\nu} \frac{B_0^2}{\mu_0 H} \quad (V.23)$$

Pour que la refusion ait lieu, la condition (V.23) doit être satisfaite et la relation suivante est donc obtenue :

$$C_R \sim \frac{1}{V_T} \frac{k_p}{\rho \nu} \frac{B_0^2}{\mu_0 H} > 1 \quad (V.24)$$

La refusion dépend donc de la convection induite par l'action du champ magnétique B , de la vitesse de refroidissement CR , de la perméabilité de l'alliage considéré k_p (et donc de l'évolution de sa fraction de solide) et de la hauteur du creuset, H :

- Une puissance d'induction accrue (c'est-à-dire un champ électromagnétique plus important) augmente la vitesse de convection du liquide en volume et la vitesse de convection du liquide interdendritique.
- Une perméabilité importante améliore la refusion. En effet, une bonne perméabilité de la zone pâteuse favorise la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. La convection du liquide interdendritique peut donc être suffisamment importante pour fragmenter les dendrites, ce qui provoque l'affinage de la structure.
- L'augmentation de la vitesse de refroidissement a deux effets distincts. Premièrement la refusion des bras de dendrites n'est pas favorisée car la vitesse d'avance des isothermes est augmentée. Cela ne permet donc pas au liquide riche en soluté d'atteindre des régions plus pauvres afin de refondre les bras de dendrites. Deuxièmement, l'étendue de la surfusion en avant du front de solidification est plus importante. La survie des fragments est donc améliorée. Pour obtenir la fragmentation des dendrites, la vitesse de refroidissement doit donc être suffisamment importante pour que les fragments ne soient pas instantanément refondus, mais elle doit également être plus faible que la vitesse de convection du liquide interdendritique.
- Diminuer la distance brasseur-creuset favorise la refusion, par l'augmentation de la pénétration du liquide dans la zone pâteuse. En effet, localiser les mouvements de convection sur le front de solidification induit une meilleure pénétration du liquide dans la zone pâteuse, ce qui a pour effet d'augmenter la vitesse de convection du liquide interdendritique.

Il a été montré que l'affinage de grains dépendait fortement du phénomène de fragmentation, mais pas seulement. En effet, il est important de considérer le transport et surtout la survie de ces fragments pour expliquer la présence de structure affinée. Cependant ce phénomène étant très complexe, il n'a pas été détaillé dans ce travail.

V.5. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA MESO ET LA MACROSEGREGATION

Afin d'analyser qualitativement l'effet des modes du brassage électromagnétique appliqués sur la distribution de la concentration du plomb, une radiographie X des échantillons a été réalisée (CEA Saclay-laboratoire, France). L'objectif principal est d'observer tous les types de ségrégations, en particulier les distributions des canaux ségrégés qui sont difficiles à localiser. Globalement, les résultats expérimentaux avec leurs traitements numériques, illustrés dans la figure (V.24) confirment l'existence de plusieurs modes de ségrégation (micro, méso et macroségrégation). Une ségrégation sous forme de canaux est localisée au niveau du côté droit de tous les échantillons, ainsi que la ségrégation correspondante au dernier liquide dans la partie inférieure gauche des échantillons. Les dimensions des canaux ségrégés sont toujours de plusieurs centimètres de longueur et de quelques millimètres au plus de largeur.

La figure (V.24-a) présente le cas de la solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb sous l'effet de la convection thermosolutale. Une large zone de ségrégation a été observée dans le côté inférieur gauche du lingot, présentant un niveau d'intensité supérieure à 200 *pixels*. Un confinement des mésoségrégations est localisé dans l'angle droit dû probablement à un empilement des canaux à cet endroit. Ceci est une conséquence de la convection naturelle qui a assez de temps pour transporter le soluté lourd de la zone pâteuse vers la partie inférieure du lingot. Nous avons remarqué que les canaux ségrégés dans ce cas, présentaient une forme géométrique tubulaire oblique et un niveau de concentration en variant entre 180 et 200 *pixels*, en niveau d'intensité. Ce résultat est dû probablement à une supériorité de la vitesse de drainage de l'élément solutale lourd (plomb) générée par l'écoulement interdendritique sous l'effet gravitationnel par rapport à la vitesse d'avancement du front de solidification.

La radiographie X du lingot solidifié sous l'effet d'un brassage électromagnétique dans le sens de la convection est présentée dans la figure (V.24-b). Une légère régression de la zone de ségrégation qui correspond au dernier liquide, avec le même niveau concentration que le cas précédent (>200 *pixel*), a été observée. En effet, ce mode de brassage favorise la pénétration du liquide chaud provenant de la zone liquide dans la zone pâteuse en augmentant, premièrement l'effet du pompage de l'élément solutale dans le liquide interdendritique et deuxièmement la refusion des bras dendritiques secondaires, et par conséquent la méso et la macroségrégation, ainsi que l'augmentation des tailles des canaux ségrégés. Cependant, le

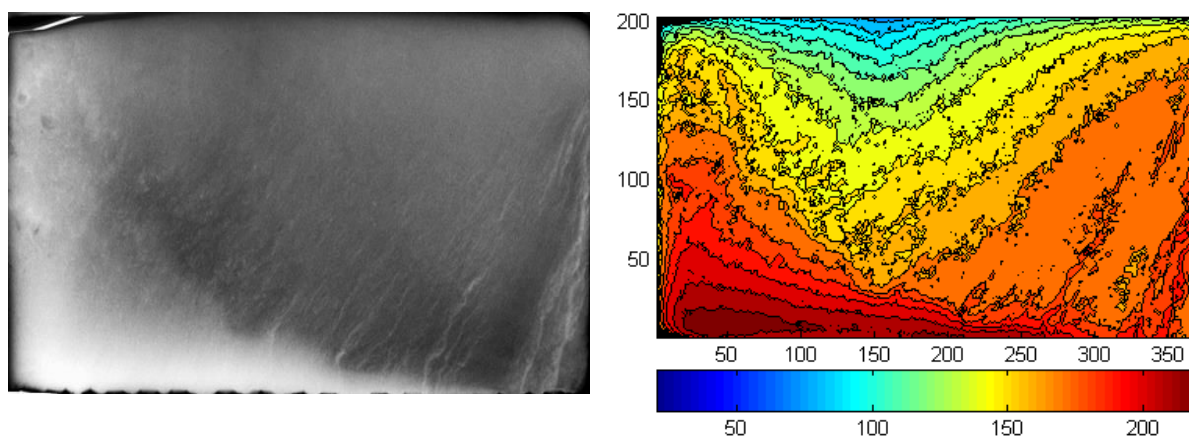
traitement numérique de la photo de radiographie X de ce lingot, montre clairement une diminution sensible de la concentration des canaux ségrégés, variant entre 130 et 150 *pixels*.

Le mode de brassage dans le sens opposé de la convection thermosolutale est montré dans la figure (V.24-c). Nous remarquons que la zone de la ségrégation dite normale, est moins importante par rapport aux cas précédents, et elle est localisée dans le centre du lingot. Ceci peut être attribué au deuxième front de solidification développé à partir du côté gauche du lingot (voir les cartes de température à l'instant $t_i = 24mn$). Cette zone de ségrégation présente un niveau de concentration moins important que dans les deux cas précédents variant entre 180 et 200 *pixels*. Un nombre important de canaux ségrégés avec des tailles importantes a été remarqué dans le côté droit de ce lingot. Ces canaux présentent un niveau d'intensité variant entre 150 et 200 *pixels*.

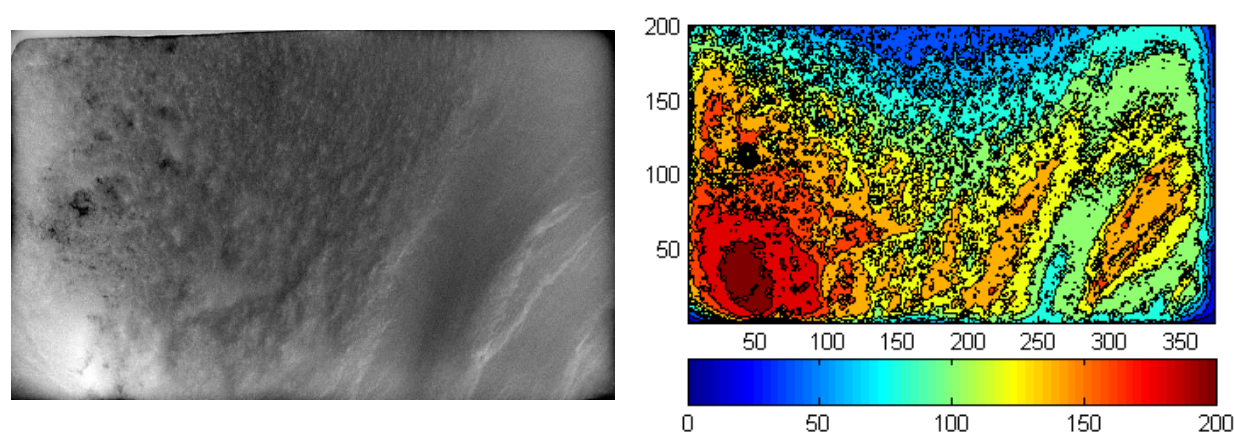
Nous pensons que l'application du brassage électromagnétique dans le sens opposé de la convection thermosolutale, a plusieurs effets sur la ségrégation:

- 1- La création d'une force s'opposant au mécanisme de stratification du plomb, ce qui réduit sensiblement la taille et la densité de la ségrégation dans le dernier liquide.
- 2- Une compétition entre les forces de drainage gravitationnelles vers le bas et la force issue du flux convectif dans le sens opposé vers le haut. En effet, il est clair qu'il y a un effet de décollement de la zone de ségrégation par rapport au cas de la solidification sous l'effet de la convection naturelle et le cas brassé dans le même sens de cette dernière.
- 3- La fragmentation des bras dendritique due à la refusion, entraîne une microségrégation dans la zone caractérisée par la formation de grains équiaxes.

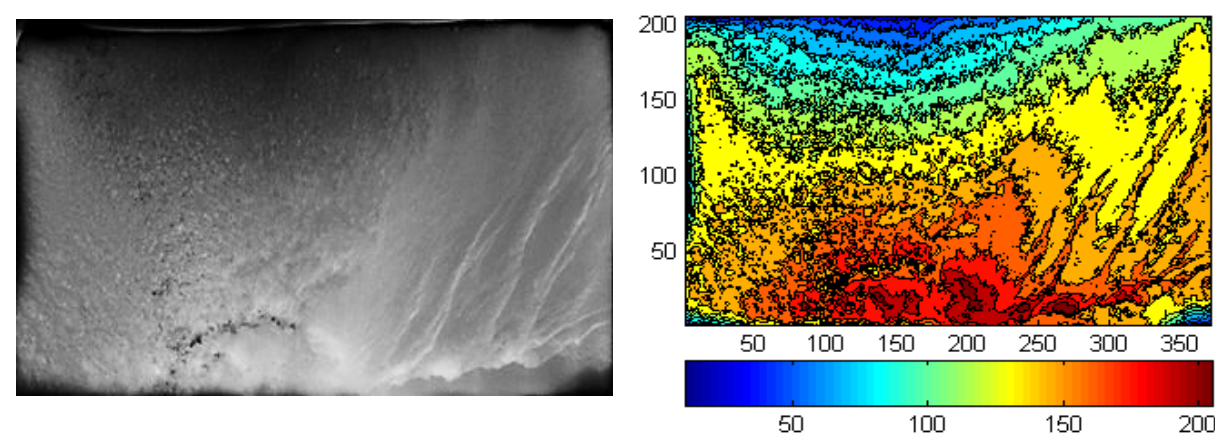
Il découle de ce dernier résultat, qu'une réduction de la force du brassage dans le sens opposé, réalisée en diminuant l'intensité du courant inducteur appliqué jusqu'à atteindre une configuration de blocage et non d'inversion du sens de la convection, pourrait corriger le problème du développement des canaux ségrégés dans les premières zones de solide formées.



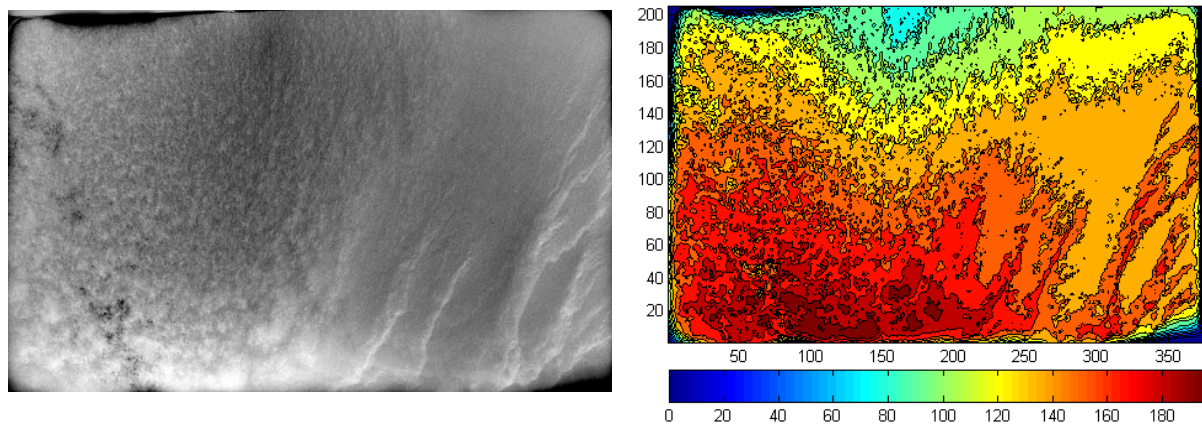
(a) *Cas-I : sans brassage électromagnétique. Sn-10wt.%Pb (réf LH19)*



(b) *Cas-II : brassage dans le sens de la convection. Sn-10wt.%Pb (réf LH22)*



(c) *Cas-III : brassage dans le sens opposé de la convection. Sn-10wt.%Pb (réf LH25)*



(d) *Cas-IV : brassage alterné ($f = 0.125\text{Hz}$). Sn-10wt.%Pb (réf LH29)*

Figure V.24. Photos de radiographie X à gauche et leurs traitement numérique à droite des lingots solidifiés montrant les différents modes de ségrégation, notamment les canaux ségrégés. Alliage Sn-10wt.%Pb, différence de température $\Delta T = 40\text{K}$, vitesse de refroidissement $CR = 0,03\text{K/s}$ et l'intensité de l'ampérage appliquée $I = 8,2\text{A}$. Quatre cas de solidification sont présentés: (a) sous l'effet de convection nature Cas-I, (réf LH19), (b) sous l'effet de la convection forcée dans le même sens que la convection naturelle Cas-II, (réf LH22), (c) sous l'effet de la convection forcée dans le sens opposé à la convection naturelle Cas-III, (réf LH25) et (d) sous l'effet d'une convection forcée alternée avec une fréquence $f = 0,125\text{Hz}$, Cas-IV, (réf LH29).

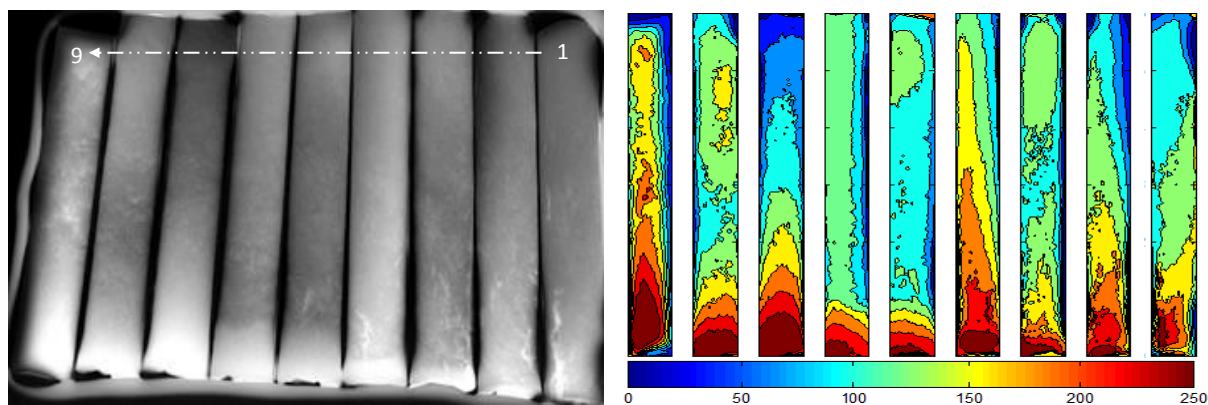
La figure (V.24-D), présente le dernier cas du brassage (brassage modulé avec une fréquence de $0,125\text{Hz}$). Il est clair que ce mode de brassage favorise la formation des canaux ségrégés. Nous remarquons une augmentation sensible du nombre et de la taille des canaux ségrégés dans ce lingot, avec un niveau d'intensité variant entre 180 et 200pixels . Ce phénomène peut être expliqué par le choix de la fréquence d'inversion ($f = 0,125\text{Hz}$). Cette fréquence choisie, est assez optimale pour favoriser la transition colonnaire-équiaxe. Il s'avère cependant qu'elle est trop lente pour éviter la formation des canaux ségrégés, c'est-à-dire que le temps d'inversion du sens (8s) est supérieur au temps de transit du flux convectif dans la zone pâteuse. Nous pensons qu'une augmentation de la fréquence peut aider à réduire significativement la formation des canaux ségrégés.

V.6. EFFET DU BRASSAGE ELECTROMAGNETIQUE SUR LA MORPHOLOGIE DES CANAUX SEGREGES

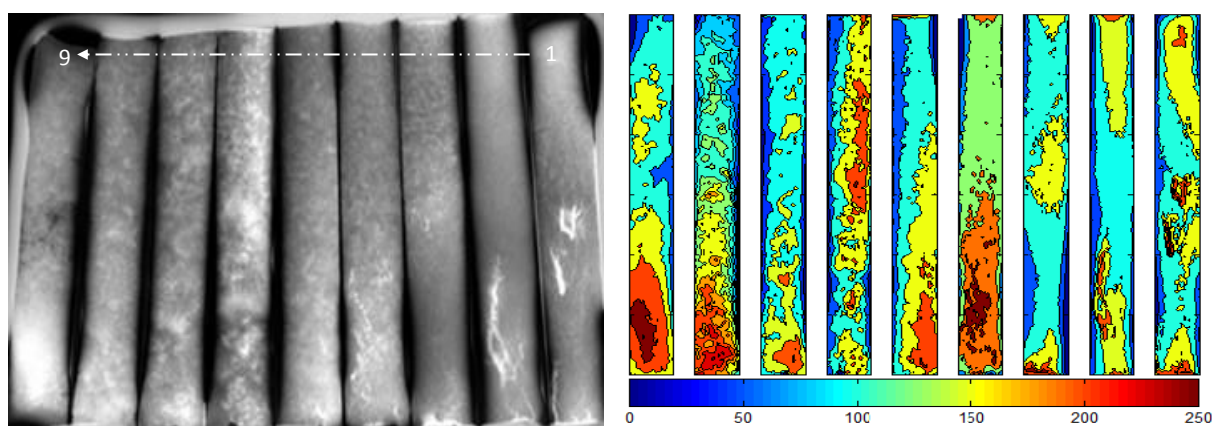
Les photos de la radiographie X sur les coupes transversales de chaque lingot, ont permis de caractériser l'effet des différents modes de brassage électromagnétique sur la morphologie générale de la ségrégation et en particulier celle des canaux ségrégés dans la direction transversale des lingots. La procédure expérimentale a été présentée dans le chapitre IV.

La radiographie X des neuf tranches du lingot *LH19* (solidification sous l'effet de la convection naturelle), présentée sur la figure (V.25-a), montre clairement une large zone de ségrégation étalée sur la base du lingot avec des niveaux d'intensités entre 200 et 250 en *pixels*. Un canal ségrégé est localisé dans la partie inférieure gauche de la première tranche sous forme tubulaire caractérisé par un niveau élevé de concentration (environ 250 *pixels*), et une épaisseur d'environ un millimètre. D'autres canaux de faibles tailles sont apparus dans les tranches deux, trois et quatre avec un niveau d'intensité variant entre (200 et 250 *pixels*). Une zone de microségrégation est repérée dans la quatrième et la neuvième tranche d'intensité variante. Nous avons remarqué que dans ce cas de solidification les canaux ségrégés avaient une tendance à se développer à proximité des parois latérales du lingot.

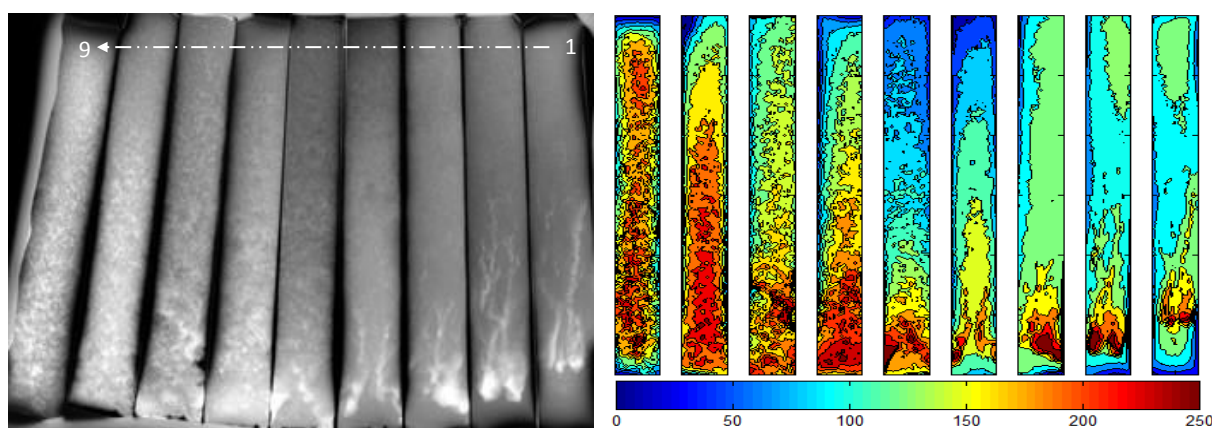
Les tranches du cas de solidification sous un brassage électromagnétique dans le même sens de la convection (*LH22*), ont permis de distinguer différentes morphologies de ségrégation, (voir figure V.25-b). Plusieurs canaux sont localisés dans les deux premières tranches et présentent un niveau élevé de concentration (entre 200 et 250 *pixels*) et des positions différentes par rapport aux cas précédents. Nous avons remarqué l'existence de la morphologie de deux canaux développés et issus de même source de drainage avec une taille approximativement un millimètre. Ce résultat renforce fortement l'approche théorique de X.D. Wang et al [9] à propos de la capacité du brassage à centraliser la ségrégation sous forme de canaux à mi- épaisseur du lingot. Ainsi, la radiographie X et son traitement numérique confirme l'effet significatif de ce mode pour diminuer la stratification du plomb. Une régression de la zone de ségrégation dite normale a été observée. Les tranches six, sept et huit montrent une variété de microségrégations correspondant à la structure équiaxe affinée.



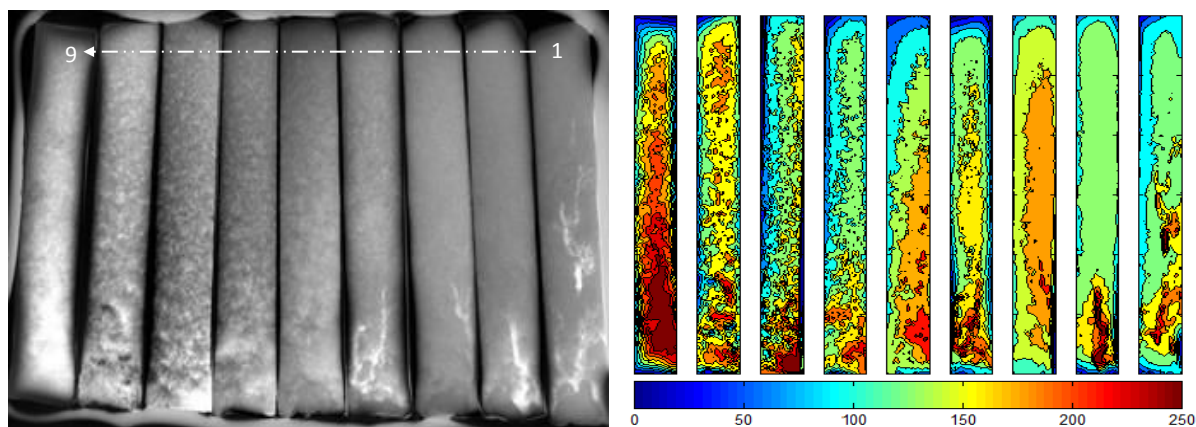
(a) *Cas-I: sans brassage électromagnétique. Sn-10wt.%Pb (réf LH19)*



(b) *Cas-II: brassage dans le sens de la convection. Sn-10wt.%Pb (réf LH22)*



(c) *Cas-III: brassage dans le sens opposé de la convection. Sn-10wt.%Pb (réf LH25)*



(d) Cas-IV: brassage alterné ($f = 0.125\text{Hz}$). Sn-10wt.%Pb (réf LH29)

Figures IV.25.

Radiographie X des coupes transversales à gauche et cartes des contours des iso-concentrations à droite pour les expériences de solidification de l'alliage Sn-10wt%Pb: (a) Cas-I sous l'effet de convection naturelle (réf LH19), (b) Cas-II sous l'effet de la convection forcée dans le même sens (réf LH22), (c) Cas-III sous l'effet de la convection forcée dans le sens opposé (réf LH25) et (d) Cas-IV sous l'effet d'une convection forcée alternée avec une fréquence $f = 0,125\text{Hz}$, (réf LH29). Les neuf tranches sont numérotées de droite à gauche.

Les coupes transversales du lingot solidifié sous l'effet de la convection forcée dans le sens opposé de la convection sont présentées sur la figure (V-25-c). Ce cas présente une particularité en ce qui concerne la morphologie, ainsi que la taille des canaux ségrégés selon la direction transversale. Les canaux sont explicitement localisés dans les quatre premières tranches, avec une morphologie non régulière (forme géométrique complexe), et présentent des canaux de grandes tailles dans la partie inférieure qui peuvent atteindre d'environ 4mm . Le niveau de concentration des canaux varie entre 200 et 250pixels . Une pseudo-symétrie au niveau de la morphologie de la formation des canaux ségrégés est apparue dans les tranches un, deux et quatre. Un mécanisme de décollement de la macroségrégation est bien repéré à partir de la cinquième tranche jusqu'à la première à cause de l'effet de l'inversion du sens du brassage par rapport la convection naturelle. Une microsegrégation correspondante à la formation des grains équiaxes dans toutes les cinq dernières tranches a été observée. Nous avons remarqué une diminution très significative de l'effet de stratification du plomb dans la base du lingot, excepté dans la septième et neuvième tranche. Une cheminée de macroségrégation est bien claire dans la dernière tranche, probablement créée par la formation

d'un double vortex dans le dernier liquide due à l'avancement des deux fronts de solidification.

La figure (V.25-c) montre la radiographie X des coupes transversales du dernier mode de brassage (*Cas-IV*). Nous remarquons plusieurs types de ségrégation, et en particulier la mésoségrégation sous forme de canaux ségrégés dans les quatre premières tranches. Les canaux ont une tendance à se développer à mi-épaisseur du lingot avec une taille au voisinage de un millimètre. Nous avons rencontré des difficultés pour décrire la morphologie de la macroségrégation dans ce cas, notamment dans la première et la quatrième tranche. La deuxième tranche montre clairement la formation d'un canal avec un pied de taille importante et un niveau d'intensité élevé qui peut atteindre *250pixels*. Une large zone de microségrégation apparue à partir de la quatrième jusqu'à la neuvième tranche, correspondant à la formation des grains équiaxes fins provenant du mécanisme de la transition colonnaire équiaxe (CET). Nous avons observé un résultat identique aux deux cas précédents du brassage électromagnétique, à propos de la diminution significative de la zone de stratification du plomb dans la base du lingot. La cheminée de ségrégation qui correspond à l'effet de la convection dans le dernier liquide solidifié est bien localisée dans la dernière tranche.

V.7. Conclusion Partielle

A la lumière de l'étude comparative expérimentale présentée dans ce chapitre, nous pouvons déduire quelques constatations et conclusions d'ordre général concernant la morphologie de la ségrégation, ainsi que l'effet des différents modes du brassage électromagnétiques appliqués sur le processus de solidification.

1. Les différentes morphologies de ségrégation sont essentiellement générées par le mouvement du fluide à l'intérieur de la zone pâteuse. Ce mouvement peut être généré par trois mécanismes différents:
 - 1.1. En raison de l'équilibre thermodynamique dans la zone pâteuse, la répartition de la concentration solutale du liquide présente des gradients de concentration qui sont directement liés aux gradients de température. Ainsi, les gradients par leur effet déstabilisant, sont responsables de la convection thermosolutale.
 - 1.2. Le brassage électromagnétique agit directement sur la phase liquide dans la zone pâteuse pour générer un mouvement fluide.
 - 1.3. La convection dans la zone liquide peut créer des variations de pression le long du front de solidification, et par conséquent elle force un écoulement à l'intérieur de la zone pâteuse (liquide interdendritique), comme dans un milieu poreux.
2. Le brassage électromagnétique dans le sens de la convection thermosolutale (naturelle) ne supprime pas les canaux ségrégés. Un tel mode de brassage peut même créer et promouvoir les ségrégations. Toutefois, les positions des canaux ségrégés sont directement liées à la configuration de l'écoulement générée par la force électromagnétique (force de Laplace) appliquée. Cependant, un changement sensible au niveau de la macrostructure a été observé, notamment s'agissant de la transition colonnaire –équiaxes (CET).
3. Le brassage dans le sens opposé de la convection naturelle a montré son efficacité à obtenir des structures équiaxes sur presque tout le lingot. Par contre, il a un effet d'augmentation du développement des canaux ségrégés, malgré la régression très significative de la taille de la zone de ségrégation correspondant à la fin de solidification.
4. Dans le cas d'un brassage alterné de fréquence $f = 0.125\text{Hz}$, nous avons remarqué un effet identique au cas du brassage dans le sens opposé à la convection, à savoir une structure majoritairement équiaxe, une diminution de la stratification de l'élément

solutal et une formation de canaux ségrégés de haute concentration et de taille importante.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE V

- [1] R. Ernst, C. Garnier. « *Mesure numérique des caractéristiques d'un circuit oscillant pour le chauffage à induction* », Revue Générale d'Electricité, V.8, (1989), p. 1-8.
- [2] X.D. Wang, R. Moreau, J. Etay and Y. Fautrelle. « *A Periodically Reversed Flow Driven by a Modulated Traveling Magnetic Field: Part I. Experiments with GaInSn* », Metall. Mat. Transaction B. V40, (2009), p 82-90.
- [3] X.D. Wang, R. Moreau, J. Etay and Y. Fautrelle. « *A Periodically Reversed Flow Driven by a Modulated Traveling Magnetic Field: Part II. Theoretical Model* », Metall. Mat. Transaction B. V40, (2009), p 104-113.
- [4] D. Brito, H. C. Nataf, P. Cardin, J. Aubert, J. P. Masson. « *Ultrasonic doppler velocimetry in liquid gallium* », Experiments in Fluids, V. 31, (2001), p. 653 – 663.
- [5] S. Eckert, G. Gerbeth : « *Velocity measurements in liquid sodium by means of ultrasound Doppler velocimetry* », Experiments in Fluids, V. 32, (2002), p. 542 – 546.
- [6] Y. Takeda. « *Measurement of velocity profile of mercury flow by ultrasound Doppler shift method* », Nuclear Technology, V. 79, (1987), p. 120-124.
- [7] J. P. Gu, C. Beckermann and A. F. Giamei, " *Motion and Remelting of Dendrite Fragments during Directional Solidification of a Nickel-Base Superalloy*", Metall. Mat. Transaction A. V28, (1997), p 1533.
- [8] Q. Li and C. Beckermann, " *Modeling of Free Dendritic Growth of Succinonitrile-Acetone Alloys with Thermosolutal Melt Convection*", J. of crystal growth, V. 236, (2002), p. 432.
- [9] X.D. Wang, A. Ciobanas, F. Baltaretu, A.M. Bianchi and Y. Fautrelle. « *Control of the macrosegregations during solidification of a binary alloy by means of a AC magnetic field* », Materials Science Forum, vol.508, (2006), p 163.
- [10] Thèse de Bachir SAADI, « *Contrôle électromagnétique des transferts de masse aux interfaces liquide/liquide* », Institut National polytechnique de Grenoble, 2006.
- [11] M.C. Flemings, « *Solidification processing* », 1974.
- [12] A. Hellawell, J. R. Sarazin and R. S. Steube, " *Channel Convection in Partly Solidified Systems*", Phil. Trans. R. Soc. Lond. A, 345, (1993), p. 507.
- [13] Thèse de Thomas CAMPANELLA, « *Etude de l'effet du brassage électromagnétique sur les microstructures d'alliages cuivreux* », École polytechnique fédérale de Lausanne, 2003.
- [14] P. D. Grasso, J. M. Dreset and M. Rappaz, « *Hot Tear Formation and coalescence Observations in Organic Alloys* », Journal of metals – electronic edition. Jan (2002).

- [15] R. Moreau, "*The fundamental of MHD Related to crystal Growth*", Progress in crystal growth and characterization of materials, (1999), P.161.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le but de cette étude était de caractériser et de mieux comprendre les différents effets de la configuration d'écoulement sur le processus de solidification d'un alliage métallique binaire. Deux modes de convection ont été étudiés : convection thermosolutale dite naturelle créée par les gradients thermiques et solutaux et la convection forcée engendrée par l'application d'un champ magnétique glissant (TMF). Le processus de la solidification de l'étain pur et les deux alliages à base étain, alliages différents en terme de composition (Sn-3wt.%Pb et Sn-10wt.%Pb), a été étudiée et analysée expérimentalement sous plusieurs aspects : thermique dynamique, structure cristalline et homogénéité de concentration (ségrégation).

Les travaux expérimentaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont été basé sur une installation expérimentale réalisée au sein du laboratoire SIMAP/EPM, à Grenoble nommée *AFRODITE*. Ce dispositif expérimental est particulièrement documenté et instrumenté. A travers le contrôle rigoureux des paramètres expérimentaux de solidification notamment la différence de température entre les deux échangeurs thermiques (ΔT) et la vitesse de refroidissement (CR), cette installation a montré son efficacité à fournir des données quantitatives et qualitatives sur le processus de solidification des alliages métalliques.

Dans le but de déterminer l'effet des principaux paramètres expérimentaux qui interviennent lors de la solidification de ces alliages, trois campagnes d'expériences de solidification ont été effectuées. La première, concerne des expériences de calibration réalisées sur l'étain pur (Sn) afin de vérifier la validation des hypothèses de base faites sur l'installation expérimentale. La deuxième campagne, s'intéresse à l'effet de la convection naturelle (thermosolutale) sur le processus de solidification de l'alliage étain-plomb, avec la variation de deux paramètres : la vitesse de refroidissement ($CR = 0,02, 0,03$ et $0,04$ K/s) et de la concentration initiale ($C_0 = 3$ et 10%). La troisième campagne, se focalise sur l'effet de la convection forcée engendrée par un champ magnétique alternatif glissant sur le processus de solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Trois modes de brassage ont été appliqués selon le sens de la force de Lorentz par rapport à la convection naturelle : dans le même sens, dans le sens opposé et finalement un brassage alternatif avec une fréquence de modulation ($f = 0,125\text{Hz}$).

Les résultats expérimentaux obtenus à travers les expériences de solidification réalisées sur l'étain pur (étain 4N), ont montré l'existence d'un léger retrait à l'état solide qui entraîne la présence d'une résistance thermique entre les deux parois d'échanges thermiques

(de fusion) et le lingot à l'état solide. Cette mince couche de vide (systématique) empêche d'effectuer des mesures de fusion propres (tant que le métal liquide n'épouse pas à nouveau les parois d'échanges thermiques) mais ce n'était pas l'objectif du système. Toutefois, cette résistance thermique se retrouve dans toutes les expériences menées, même celles de solidification des alliages étain-plomb, dès l'apparition des premières couches solides. On semble toutefois retrouver une boucle de convection telle qu'attendue lorsque l'échantillon est à l'état liquide (le métal liquide épouse parfaitement les deux faces des échangeurs thermiques). Les mesures expérimentales effectuées ont permis, d'estimer une surfusion maximum de $6,4^{\circ}\text{C}$ pour l'étain pur et un palier de solidification d'environ 20 minutes, ainsi qu'une estimation de la chaleur latente d'environ 24.28kJ pour les deux processus de changement de phase (fusion et solidification). A noter, que ces expériences sur le corps pur ont permis de valider et de recalculer des modèles de simulations numériques en collaboration avec l'équipe du Professeur H. BenHadid du laboratoire LMFA de Lyon.

En ce qui concerne les solidifications de l'alliage Sn-3wt.%Pb sous l'effet de la convection thermosolutale, les résultats obtenus peuvent être résumés comme suit :

- 1- Les cartes thermiques couplées aux vecteurs des gradients thermiques locaux, ont donné des indications claires sur la configuration de l'écoulement du bain liquide après l'application de la différence de température expérimentale moyenne ($\Delta T = 40\text{K}$). cette configuration se présente sous forme d'une boucle de recirculation dans le sens des aiguilles d'une montre. Le redressement progressif des isothermes sous formes de lignes quasiment verticales au cours de la solidification est en bonne cohérence avec la formation et l'avancement de la zone pâteuse. Les vecteurs du gradient thermique local, montrent clairement le transfert de chaleur à l'intérieur de l'échantillon. La dernière zone liquide est marquée par des faibles gradients de température, Cet effet à une conséquence significative sur la nature de la structure (colonnaire ou équiaxes).
- 2- La méthode des vitesses projetées adoptée dans ce travail a permis d'estimer la surfusion locale pour tous les points du maillage de calcul qui varie entre $2,05$ et $6,45^{\circ}\text{C}$, ainsi que le temps de passage du front colonnaire. L'approche analytique utilisée, est basée sur le calcul du module de la vitesse sur le vecteur du gradient thermique ($\vec{U} \cdot \vec{\nabla}T / |\vec{\nabla}T|$). L'estimation de l'instant de passage du front colonnaire a été faite par extrapolation de la courbe des vitesses projetées à proximité de la valeur nulle en utilisant la tangente calculée au point d'inflexion. Il est très

important de noter, que cette méthode n'est plus valide dès que le nœud de calcul coïncide avec le front colonnaire ou lorsque les grains équiaxes apparaissent à la fin de la solidification, à cause du dégagement de la chaleur latente qui n'a pas été pris en compte dans le modèle analytique.

- 3- La révélation de la macrostructure a montré une dominance de la structure colonnaire avec des grains inclinés correspondant à l'existence d'un écoulement en amont de la face de progression. Une zone de grain équiaxe apparaît dans les lingots correspondant au dernier liquide c'est-à-dire à la fin de la solidification. Il est difficile de déterminer les facteurs responsables du mécanisme de la transition colonnaire-équiaxes (CET) au cours de la solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb. Cependant nous pensons que l'augmentation de la vitesse du front colonnaire et la diminution significative des vecteurs de gradient dans l'étendue de la zone en surfusion en avant du front colonnaire sont des facteurs essentiels pour déclencher un tel mécanisme (CET).
- 4- L'étude expérimentale comparative réalisée dans le but d'étudier l'effet de la variation de la vitesse de refroidissement ($CR = 0,02, 0,03 \text{ et } 0,04 \text{ K/s}$), sur le processus de solidification de l'alliage Sn-3wt.%Pb a montré que l'augmentation de la vitesse de refroidissement favorise le mécanisme de la CET. Nous pensons que, cette augmentation à un double effet : premièrement la refusion des bras de dendrites n'est pas favorisée car la vitesse d'avancement des isothermes est augmentée. Cela ne permet donc pas au liquide riche en soluté d'atteindre des régions plus pauvres afin de refondre les bras de dendrites. Deuxièmement, l'étendue de la zone de surfusion en avant du front de solidification est plus importante. La survie des fragments est donc améliorée. En effet, pour obtenir une fragmentation des dendrites, la vitesse de refroidissement doit être suffisamment importante pour que les fragments ne soient pas instantanément refondus en étant transportés vers les zones chaudes.
- 5- Une étude expérimentale sur l'effet de la stratification de l'élément solutale (plomb) a été effectuée, à travers la réalisation de deux expériences de solidification sur l'alliage Sn-10wt.%Pb, avec et sans brassage électromagnétique au cours de la première phase de stabilisation thermique. Il a été montré que la convection thermosolutale peut provoquer la séparation importante du plomb au cours du processus de fusion, ce qui entraîne un gradient de concentration verticale stable après la phase de fusion. La stratification du plomb dans le liquide

représente un gradient de densité stabilisant qui diminue considérablement la convection entraînée par la force de flottabilité ($N = \frac{\text{force d'archimède solutale}}{\text{force d'archimède thermique}} = \frac{\beta_c \nabla C}{\beta_T \nabla T} \approx 28$ dans la zone pâteuse), à la phase liquide lors de l'application d'une différence de température horizontale. Par contre l'application d'un brassage électromagnétique après la phase de fusion a permis l'homogénéisation thermique et chimique, et par conséquent l'application d'une différence de température horizontale (ΔT) peut créer une forte convection thermosolutale.

- 6- Une méthode de dissolution chimique couplée à la technique ICP (*Plasma à Couplage Inductif*) est utilisée pour analyser quantitativement la distribution de la concentration du plomb. Les résultats obtenus sur la répartition de la concentration, montrent que le rejet de soluté commence à partir du côté droit (coté froid) de l'échantillon, de sorte que, à la fin de la solidification, une zone enrichie en plomb apparaît sur la partie inférieure gauche du lingot (macroségrégation). Une deuxième analyse de type post mortem à travers la radiographie X a été réalisée. Les analyses effectuées sur les photos confirment l'existence de plusieurs types de ségrégations à différentes échelles méso et macroscopiques. Des mésoségrégations se présentent sous forme de canaux ont été localisées dans le coté droit des lingots solidifiés, ainsi que des macroségrégations réparties sur la partie inférieure gauche de l'échantillon ayant une forme de cheminé correspondant au dernier liquide solidifié. Les canaux ségrégés mesurent plusieurs centimètres en longueur et quelques millimètres d'épaisseur. Nous pensons que ces ségrégations sont générées par le mouvement du fluide à l'intérieur de la zone pâteuse (liquide interdendritique) couplé à l'effet gravitationnel de l'élément solutale lourd (plomb). La convection naturelle transporte le soluté plus lourd dans la partie inférieure gauche du lingot. Le comportement du canal ségrégé dépend de la vitesse de refroidissement. Pour une lente vitesse de refroidissement ($CR = 0,02K/s$), le rejet global du soluté est plus élevé, tel que le flux convectif à suffisamment de temps pour transporter le soluté de la zone pâteuse vers le liquide. Les analyses effectuées ont montré qu'on peut distinguer quatre zones de répartition de concentration interférées entre eux. Deux zones principales de ségrégation, une zone caractérisée par sa pauvreté en plomb et finalement une zone intermédiaire. Les radiographies X réalisées sur les coupes transversales et leurs traitements numériques ont montré que la majorité des canaux ségrégés ont une

tendance à se développer au centre à mi-épaisseur du lingot et se présentent sous une morphologie complexe. Cependant, une forme quasi-tubulaire a été observée dans la majorité des lingots.

La dernière partie a été consacrée à l'étude de l'effet des trois modes de brassage électromagnétique sur le processus de solidification de l'alliage Sn-10wt.%Pb. Les résultats expérimentaux et leurs exploitations numériques ont montré que :

- 1- Le brassage électromagnétique dans la phase liquide créé par le couplage entre les courants induits et la présence du champ magnétique glissant, a montré son efficacité d'homogénéiser la température et probablement la concentration, en diminuant sensiblement le gradient thermique. Les mesures de la vitesse, effectuées sur une composition eutectique de l'alliage Ga-In-Sn, par la technique de la vélocimétrie doppler ultrasonore (UDV), ont montré que le mode de convection créé par le brassage électromagnétique, dans une configuration identique à celle de l'installation expérimentale *AFRODITE*, est turbulent ($\overline{Re} = 4307,5$).
- 2- La transition colonnaire-équiaxe est observée dans tous les lingots solidifiés sous un brassage électromagnétique. Il est important de noter que de manière générale, les différents modes du brassage, non seulement favorisent la transition colonnaire équiaxe mais peuvent également, affiner d'une manière très significative les grains équiaxes.
- 3- L'efficacité du brassage électromagnétique pour affiner la structure est améliorée de manière importante lorsque le sens du brassage électromagnétique est inversé. Nous pensons que le phénomène prépondérant et qui est responsable du mécanisme de la CET était la fragmentation par effet de refusion des bras dendritique. Il a été démontré que la convection forcée induite par la force de Lorentz était environ dix fois plus importante que la convection naturelle créée par les gradients thermiques et solutaux. En effet, la pénétration du liquide dans la zone pâteuse est plus importante. La refusion des bras de dendrites dépend fortement de la vitesse du liquide interdendritique, qui elle-même est fonction de la perméabilité de la zone pâteuse. Cette refusion, entraînant la formation de fragments, favorise la croissance de grains équiaxes, si les fragments survivent.
- 4- Le parcours des fragments et leurs croissances peuvent être considérés comme un deuxième facteur qui peut contribuer à la fragmentation et l'affinage des grains, en tenant compte de l'entraînement de ces particules, induit par les mouvements et leur

croissance sous convection forcée. Ce phénomène a été décrit dans des travaux antérieurs notamment de Ch. BECKERMANN [CHAP V, REF7], par effet de l'augmentation de la viscosité du liquide interdendritique due à la présence même de ces fragments.

- 5- Les radiographies X effectuées sur les lingots, ainsi que sur les coupes transversales de l'alliage Sn-10wt.%Pb, solidifiés sous l'effet du brassage électromagnétique ont montré que malgré l'effet très significatif sur l'amélioration de structure cristalline finale, les différents modes du brassage appliqués, n'ont pas aidé à corriger les défauts liés à la ségrégation notamment les canaux ségrégés.

5.1. La radiographie de l'expérience de solidification réalisée sur l'alliage Sn-10wt.%Pb sous l'effet du brassage dans le même sens de la convection thermosolutale a montré que cette configuration de brassage avait une tendance à promouvoir la formation et le développement des canaux ségrégés. Nous pensons que, la convection forcée favorise la pénétration de liquide chaud provenant du bain liquide, dans la zone pâteuse, et sous l'effet de la refusion des bras dendritique le phénomène du drainage de l'élément solutale (liquide interdendritique), s'intensifie et par conséquence la taille et le nombre des canaux ségrégés sont plus importants.

5.2. La configuration du brassage dans le sens opposé de la convection naturelle (thermosolutale) donne lieu à un effet compétitif contre le phénomène de la stratification du plomb. Une compétition entre les forces de drainage gravitationnelles vers le bas et les forces d'inertie issues du flux convectif dans le sens opposé vers le haut provoque un effet de décollement de la zone de ségrégation. Une régression importante dans la taille de la zone de ségrégation correspond au dernier liquide à la fin de solidification a été observée. Nous pensons, qu'une étude expérimentale complémentaire est nécessaire afin d'ajuster les paramètres expérimentaux de contrôle de ce mode de brassage (intensité du courant, position d'inducteur, vitesse de refroidissement et différence de température appliquée), dans le but de réduire et voir supprimer complètement les défauts des canaux ségrégés.

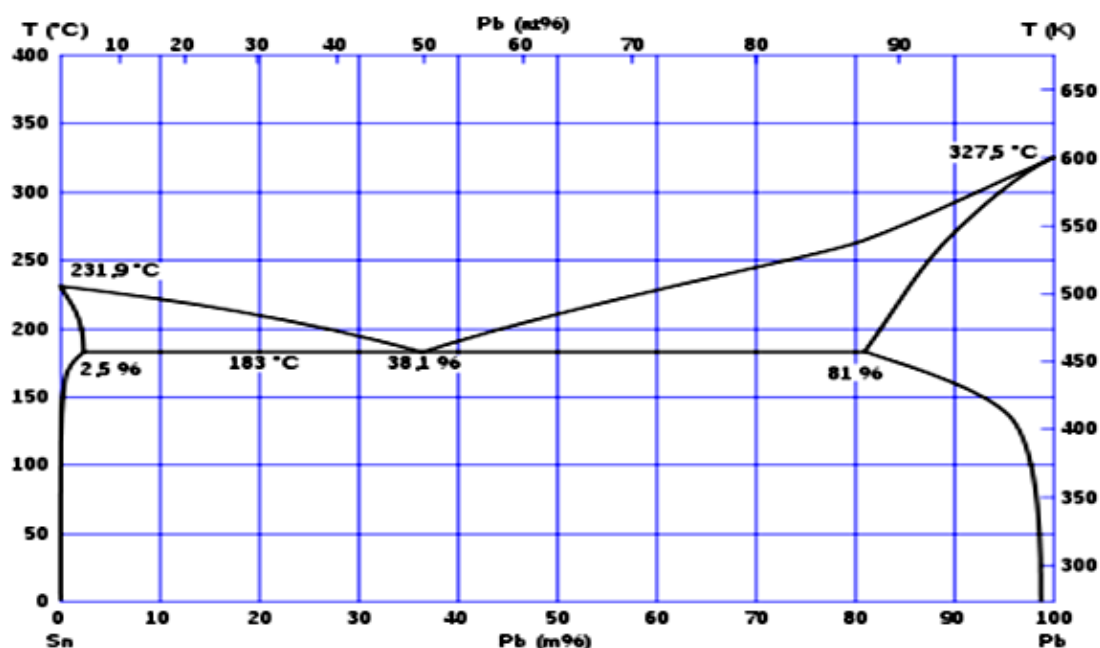
5.3. La fréquence choisie pour le cas du brassage modulé ($f = 0,125\text{Hz}$), a montré son efficacité à favoriser la transition colonnaire-équiaxes et affiner les grains, mais elle reste inefficace pour corriger les défauts liés à la ségrégation. Il a été démontré dans les travaux de X. D. Wang [CHAP V, REF 2 et 3] réalisés sur l'installation *AFRODITE*, qu'il existait une fréquence optimale dans une gamme de variation entre $0,05$ et $0,25\text{Hz}$. Cette fréquence peut être efficace pour supprimer les ségrégations dans la zone pâteuse. Il apparaît donc important d'étudier de manière plus approfondie le critère de base pour choisir la fréquence de modulation. Ce critère doit prendre en considération deux temps caractéristiques. Le premier, concerne le temps nécessaire pour transporter l'élément solutale à une distance notable de la zone pâteuse vers le bain liquide, le deuxième est le temps nécessaire du développement d'un canal (temps de ségrégation).

Les travaux futurs à mener pourraient aborder le problème de la reproductibilité des expériences, ce qui est essentiel pour la mise au point d'un benchmark. La problématique concerne la capacité (ou incapacité) de reproduire jusqu'à un certain détail les phénomènes tels que la distribution de température, les ségrégations et les structures solidifiées. Une première approche est d'ailleurs en cours. Selon les premières études, il semble que par exemple les macro-ségrégations soient reproductibles mais pas les mésoségrégations, les canaux typiquement. Cette approche pourrait donner lieu à un traitement statistique des résultats, ce qui semble plus cohérent avec les modélisations aux macro-échelles. Enfin, les développements futurs pourraient aussi concerner l'étude d'alliages plus complexes, comme les alliages ternaires à bas points de fusion utilisés pour le soudage.

ANNEXES

ANNEXE I

Annexe I.1. Diagramme de phase de l'alliage Sn-Pb



Annexe I.2. Propriétés physiques

	Sn	Pb	Sn- 10%Pb	Sn- 5%Pb	Sn- 3%Pb	unités
Température de liquidus	231,97	327,5	219,46	220	228,14	°C
Température de solidus	231,97	327,5	183,42	183,42	183,42	°C
Coefficient de partage	-	-	0,0656	0,0656	0,0656	-
Pente de liquidus	-	-	-1,2826	-1,2826	-1,2856	K/pbs
Composition eutectique	-	-	38,1	38,1	38,1	Pds
Température eutectique	-	-	183,42	183,42	183,42	°C
Densité du liquide	7000	10678	7480	7380	7110	kg/m ³
Densité de solide	6670	11700	7840	7720	6821	kg/m ³
Chaleur spécifique du liquide	250 à (232°C) 242 à (300°C) 241 à (400°C)	152 à (327°C) 144 à (400°C) 137 à (500°C)	243	259	265	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
Chaleur spécifique du solide	-	-	209	221	226	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
Chaleur latente	60697		56140	57120	57512	J/kg
Conductivité thermique du liquide	30	15,4 (327°C)	33	33	33	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
Conductivité thermique du solide	60	29,7 (300°C)	63	64	64	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
Coefficient d'expansion thermique	2,35E-05		6,60E-05		9,5E-5	K ⁻¹
Coefficient d'expansion solutale			-4,20E-04		-5,3E-3	(pds ⁻¹)

Viscosité cinématique	2,73E-7	3*	0.001	2,67E-07	0.002	m ² /s
Viscosité dynamique	0,00191	3*		0,001		kg.m ⁻¹ .s ⁻¹
Références	1*	1*	1*; 2*	2*	2*	2*

1*: Smithells metals. Ver6.0;

2*: J.M.V. Quaresma. Metall. Mater. Trans. 31A (2000) 3167

3*: Thèse de G. Quillet, EPM/SIMAP

D'autres propriétés physiques impliquées	Sn3Pb	unité
Secondary arm spacing	9e-5	m
Primary arm spacing	5.0e-4	m

ANNEXE II

Annexe II.1 Expériences de solidification réalisées sur l'étain pur (4N)

Tableau II.1. Expériences de solidification du corps pur (Sn)

Matériaux	Différence de température expérimentale moyenne (K)	Vitesse de refroidissement (K/s)	Référence de l'expérience
Etain (pur)	0	0.03	LH28
Etain (pur)	20	0.03	LH32

Tableau II.2. Cartes de températures instantanées enregistrées pour trois moments choisis correspondant pour l'expérience Sn-pur. Les conditions expérimentales : $\Delta T = 0K$, $CR = 0,03K/s$.

	Cartes thermiques (°C)
3000s	127.05 118.45 113.05 109.05 108.75 108.35 110.45 113.65 119.85 128.05 126.95 118.15 112.25 108.95 107.45 107.75 109.15 112.35 117.75 126.05 126.25 118.15 112.45 108.85 107.35 107.25 108.85 111.75 116.65 123.35 125.75 118.05 112.25 108.85 107.45 106.95 108.75 111.15 116.35 123.75 126.95 117.45 111.85 108.35 106.75 106.95 107.85 110.25 115.15 124.25
12500s	256.05 243.25 235.85 231.95 230.85 230.55 232.05 235.75 242.85 254.75 254.75 242.85 235.25 231.45 229.65 229.85 231.05 234.55 241.15 252.45 253.35 242.15 235.35 231.05 229.55 229.35 230.75 233.85 239.95 249.05 253.25 241.25 234.15 230.75 229.25 229.15 230.55 233.35 239.45 249.45 252.35 238.85 233.05 229.95 229.05 229.25 230.05 232.35 237.85 250.15
21550s	212.05 222.05 228.15 230.65 230.65 230.35 230.15 229.35 227.05 220.55 220.55 225.05 229.05 231.35 231.45 231.45 231.35 230.95 228.65 224.75 223.45 227.45 230.25 231.55 231.75 231.75 231.55 231.15 228.85 225.45 223.45 227.35 230.25 231.55 231.95 231.85 231.75 231.05 228.65 225.25 222.65 226.55 229.35 231.25 231.45 231.75 231.45 230.35 227.95 224.35

Annexe II.2 : Méthode d'estimation des flux thermiques, basée sur un élément quadratique complet

Cette méthode utilise une approximation quadratique Lagrangienne à une dimension dans les deux directions ξ et η .

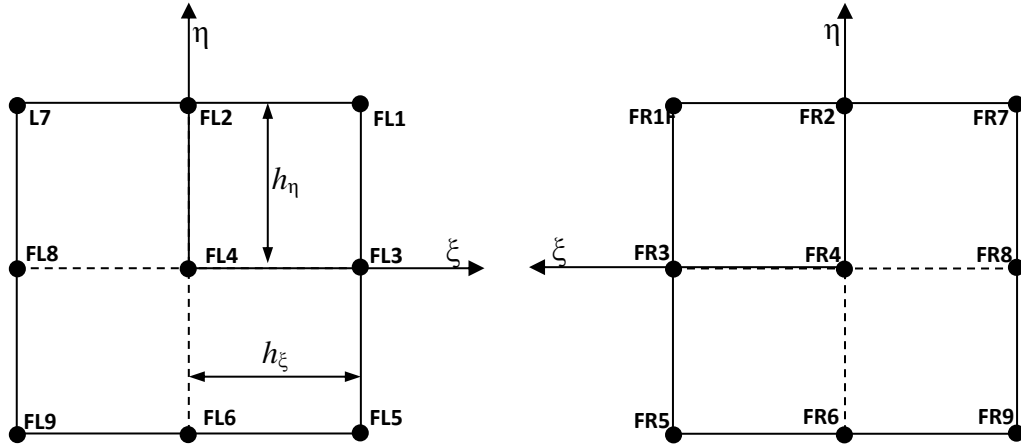


Figure A.II.1. Schéma illustratif de la répartition des thermocouples de chaque échangeur sur un élément quadratique complet.

- Les fonctions d'interpolation

$\{N\}$	$\{\partial N / \partial \xi\}$
FR1	$\frac{(1 + 2\xi)(1 + \eta)\eta}{4}$
FR2	$-(1 + \eta) \xi \eta$
FR3	$\frac{(1 + 2\xi)(1 - \eta^2)}{2}$
FR4	$-2(1 - \eta^2) \xi$
FR5	$\frac{-(1 + 2\xi)(1 - \eta)\eta}{4}$
FR6	$(1 - \eta) \xi \eta$
FR7	$\frac{-(1 - 2\xi)(1 + \eta)\eta}{4}$
FR8	$\frac{-(1 - 2\xi)(1 - \eta^2)}{2}$
FR9	$\frac{(1 - 2\xi)(1 - \eta)\eta}{4}$

- **Application de la méthode**

En interpole le champ de la température à l'aide des fonctions $N_n(x, y)$ définies précédemment :

$$T(x, y, t) = \sum_{n=1}^9 N_n(x, y) \cdot T_n(t) \quad (\text{A.1})$$

Or:

$$\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma} = \lambda \cdot \sum_{n=1}^9 T_n(t) \left(\frac{\partial N_n(x, y)}{\partial x} \right) \quad (\text{A.2})$$

Γ : La surface d'échange

- **Interpolation locale par élément**

$$\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^i = \lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial \xi} \right)_{\Gamma} \left(\frac{\partial \xi}{\partial x} \right) = \frac{\lambda \cdot s}{h_x} \cdot \sum_{n=1}^9 T_n(t) \left(\frac{\partial N_n(x, y)}{\partial \xi} \right) \quad (\text{A.3})$$

$$\begin{aligned} \lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^i = \frac{\lambda}{h_x} & \left[\left(\frac{(1+2\xi)(1+\eta)\eta}{4} \right) FR1(t) + (-(1+\eta)\xi \cdot \eta) FR2(t) + \left(\frac{(1+2\xi)(1-\eta^2)}{2} \right) FR3(t) + \right. \\ & (-2(1-\eta^2)\xi) FR4(t) + \left(\frac{-(1+2\xi)(1-\eta)\eta}{4} \right) FR5(t) + ((1-\eta)\xi\eta) FR6(t) + \\ & \left. \left(\frac{-(1-2\xi)(1+\eta)\eta}{4} \right) FR7(t) + \left(\frac{-(1-2\xi)(1-\eta^2)}{2} \right) FR8(t) + \left(\frac{(1-2\xi)(1-\eta)\eta}{4} \right) FR9(t) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

- **Densités des flux**

1- Densité du flux traversant le point FR1 ($\xi = 1$ et $\eta = 1$)

$$\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR1} = \frac{\lambda}{h_{\xi}} \left[\left(\frac{3}{2} \right) FR1(t) - (2) FR2(t) + \left(\frac{1}{2} \right) FR7(t) \right] \quad (\text{A.5})$$

2- Densité du flux traversant le point FR3 ($\xi = 1$ et $\eta = 0$)

$$\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR3} = \frac{\lambda}{h_{\xi}} \left[\left(\frac{3}{2} \right) FR3(t) - (2) FR4(t) + \left(\frac{1}{2} \right) FR8(t) \right] \quad (\text{A.6})$$

3- Densité du flux traversant le point FR5 ($\xi = 1$ et $\eta = -1$)

$$\lambda \cdot \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR5} = \frac{\lambda}{h_{\xi}} \left[\left(\frac{3}{2} \right) FR5(t) - (2) FR6(t) + \left(\frac{1}{2} \right) FR9(t) \right] \quad (\text{A.7})$$

- Calcul du Flux thermique global par la méthode de la moyenne

$$\lambda. s. \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{moy} = \frac{\lambda.s}{3.h_{\xi}} \left[\left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR1} + \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR3} + \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma}^{FR5} \right] = \frac{\lambda.s}{3.h_x} \left[\frac{3(FR1(t) + FR3(t) + FR5(t))}{2} - \right. \\ \left. 2(FR2(t) + FR4(t) + FR6(t)) + \frac{FR7(t) + FR8(t) + FR9(t)}{2} \right] \quad (A.8)$$

- Méthode par intégration sur l'élément quadratique complet

A la surface d'échange $\xi = 1$ et $\eta \in [-1 ; +1]$

$$\lambda. s. \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma} = \frac{\lambda.s}{h_{\xi}} \int_{-1}^{+1} \left[\left(\frac{(1+2\xi)(1+\eta)\eta}{4} \right) FR1(t) + (-(1+\eta)\xi.\eta) FR2(t) + \left(\frac{(1+2\xi)(1-\eta^2)}{2} \right) FR3(t) + \right. \\ \left. (-2(1-\eta^2)\xi) FR4(t) + \left(\frac{-(1+2\xi)(1-\eta)\eta}{4} \right) FR5(t) + ((1-\eta)\xi\eta) FR6(t) + \right. \\ \left. \left(\frac{-(1-2\xi)(1+\eta)\eta}{4} \right) FR7(t) + \left(\frac{-(1-2\xi)(1-\eta^2)}{2} \right) FR8(t) + \left(\frac{(1-2\xi)(1-\eta)\eta}{4} \right) FR9(t) \right] d\eta \quad (A.9)$$

$$\lambda. s. \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma} = \frac{\lambda.s}{h_{\xi}} \int_{-1}^{+1} \left[\left(\frac{3(1+\eta)\eta}{4} \right) FR1(t) + (-(1+\eta).\eta) FR2(t) + \left(\frac{3(1-\eta^2)}{2} \right) FR3(t) + \right. \\ \left. (-2(1-\eta^2)) FR4(t) + \left(\frac{-3(1-\eta)\eta}{4} \right) FR5(t) + ((1-\eta)\eta) FR6(t) + \left(\frac{(1+\eta)\eta}{4} \right) FR7(t) + \right. \\ \left. \left(\frac{(1-\eta^2)}{2} \right) FR8(t) + \left(\frac{-(1-\eta)\eta}{4} \right) FR9(t) \right]_{\xi=1} d\eta \quad (A.10)$$

$$\lambda. s. \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma} = \frac{\lambda.s}{h_{\xi}} \left[\left(\frac{3}{8}\eta^2 + \frac{3}{12}\eta^3 \right) FR1(t) - \left(\frac{1}{2}\eta^2 + \frac{1}{3}\eta^3 \right) FR2(t) + \left(\frac{3}{2}\eta - \right. \right. \\ \left. \frac{1}{2}\eta^3 \right) FR3(t) \left(-2\eta + \frac{2}{3}\eta^3 \right) FR4(t) + \left(-\frac{3}{8}\eta^2 + \frac{3}{12}\eta^3 \right) FR5(t) + \\ \left(\frac{1}{2}\eta^2 - \frac{1}{3}\eta^3 \right) FR6(t) + \left(\frac{1}{8}\eta^2 + \frac{1}{12}\eta^3 \right) FR7(t) + \left(\frac{1}{2}\eta - \frac{1}{6}\eta^3 \right) FR8(t) + \\ \left. \left(-\frac{1}{8}\eta^2 + \frac{1}{12}\eta^3 \right) FR9(t) \right]_{-1}^{+1} \quad (A.11)$$

$$\lambda. s. \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right)_{\Gamma} = \frac{\lambda.s}{h_{\xi}} \left(\frac{FR1(t)}{2} - \frac{2}{3}FR2(t) + 2FR3(t) - \frac{8}{3}FR4(t) + \frac{1}{2}FR5(t) - \frac{2}{3}FR6(t) + \right. \\ \left. \frac{1}{6}FR7(t) + \frac{2}{3}FR8(t) + \frac{1}{6}FR9(t) \right) \quad (A.12)$$

Annexe II.3 Expériences de solidification réalisées sur l'alliage Sn-3wt.%Pb sous l'effet de la convection thermosolutale

Tableau II.3. Expériences de solidification sous l'effet de la convection naturelle (brassage appliqué seulement durant la première phase d'homogénéisation thermique) avec une concentration massique de 3% de Pb (changement de la vitesse de refroidissement)

Alliage	Différence de température expérimentale moyenne (K)	Vitesse de refroidissement (K/s)	Référence de l'expérience
Sn-3wt.%PB	40	0.02	LH18
		0.03	LH5
		0.04	LH13

Tableau II.4. Cartes de températures instantanées enregistrées pour quatre moments choisis correspondant pour l'expérience Sn-3wt.%Pb. Les conditions expérimentales sont les suivantes: $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

Cartes thermiques (°C)										
14500s	252.69	249.89	249.49	249.29	249.09	248.89	248.59	247.99	247.69	243.49
	250.19	246.49	246.19	246.49	246.48	246.29	246.19	246.09	245.99	241.29
	247.29	243.09	242.79	242.89	243.19	243.09	243.19	242.89	242.79	238.49
	245.09	239.49	239.19	239.29	239.69	239.68	239.59	239.09	238.99	235.29
	242.29	236.49	236.29	236.09	235.99	235.98	235.49	235.09	234.79	232.39
15000s	241.89	240.19	239.89	239.59	239.19	239.18	238.89	238.19	235.39	223.99
	240.09	237.59	237.29	237.39	237.19	237.18	236.99	236.59	232.29	220.99
	237.79	234.89	234.59	234.69	234.89	234.79	234.69	234.09	228.69	219.49
	236.29	232.39	232.09	232.19	232.59	232.49	232.48	231.29	225.79	218.09
	236.19	230.99	230.39	230.29	230.28	230.39	230.29	228.79	223.99	217.79
15500s	231.69	231.29	230.99	230.79	230.29	227.69	221.89	214.59	208.09	202.29
	231.29	230.09	229.89	229.89	229.49	226.89	221.09	214.39	207.79	201.29
	230.49	229.09	228.59	228.69	228.29	225.69	220.19	213.99	207.39	201.29
	231.29	228.89	227.89	227.69	227.49	224.59	219.49	212.89	207.19	200.89
	231.29	229.19	227.79	226.89	226.49	223.69	218.79	212.89	206.79	201.29
16000s	225.09	224.49	220.39	215.99	211.69	206.09	201.29	196.19	191.39	186.99
	223.99	224.29	220.69	216.29	211.59	206.29	201.39	196.49	191.39	186.19
	222.69	223.69	220.39	216.19	211.69	206.69	201.59	196.59	191.29	186.39
	221.89	222.99	220.29	216.29	211.99	206.79	202.09	196.19	191.39	186.19
	222.09	222.69	220.09	215.99	211.69	206.99	202.09	196.69	191.29	186.59

Annexe II.4.

Mesure de la vitesse projetée sur le gradient de température

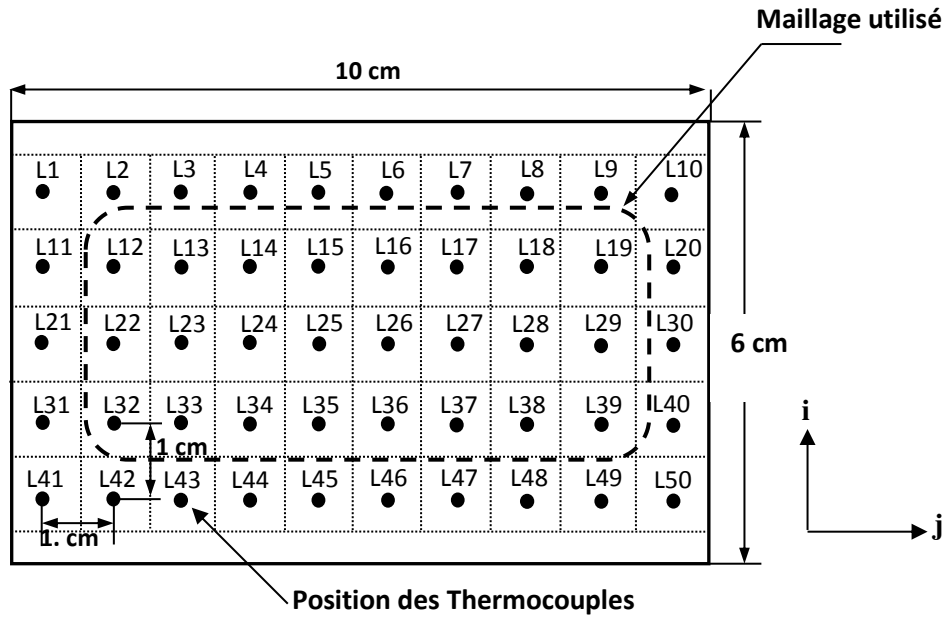


Figure A.II.2. Sous-domaine contenant les points choisis pour le calcul du champ de vitesse représenté par la zone délimitée par la ligne discontinue.

$$\left[\frac{\partial T}{\partial t}\right]_{(i,j)}^k = \left(\frac{T(i,j,k) - T(i,j,k - \delta t)}{\delta t}\right) \quad (\text{A.13})$$

$$[\vec{\nabla} T]_{(i,j)}^{k - \delta t/2} = \left[\left(\frac{T(i,j+1,k - \frac{\delta t}{2}) - T(i,j-1,k - \frac{\delta t}{2})}{2\delta x} \right) + \left(\frac{T(i+1,j,k - \frac{\delta t}{2}) - T(i-1,j,k - \frac{\delta t}{2})}{2\delta y} \right) \right]^{1/2} \quad (\text{A.14})$$

$$[\nabla^2 T]_{(i,j)}^{k - \delta t/2} = \left[\left(\frac{T(i,j+1,k - \frac{\delta t}{2}) + T(i,j-1,k - \frac{\delta t}{2}) - 2T(i,j,k - \frac{\delta t}{2})}{(\delta x)^2} \right) + \left(\frac{T(i+1,j,k - \frac{\delta t}{2}) + T(i-1,j,k - \frac{\delta t}{2}) - 2T(i,j,k - \frac{\delta t}{2})}{(\delta y)^2} \right) \right]^{1/2} \quad (\text{A.15})$$

Tableau II.5.

Temps de passage du front de solidification représenté par l'isotherme $224,7^{\circ}\text{C}$ à chaque position point de mesure (50 thermocouples). L'alliage Sn-3wt.%Pb et les paramètres de solidification sont $\Delta T = 40\text{K}$, $CR = 0,03\text{K/s}$ (référéncée LH1). Le tableau donne également les valeurs des vitesses d'avancement du front colonnaire, ainsi que et le gradient thermique effectif local.

Nœuds	Les instants de passage du front colonnaire (s)	Estimation de la vitesse du front colonnaire $V_i = \Delta x / (\text{temps parcouru})$ en ($\mu\text{m/s}$)	Gradient thermique effectif local $GT_{\text{eff}} = CR * (\text{temps parcouru})$ en (K/cm)
FL10	14990	$V_{10-9} = 52.63$	$GT_{\text{eff}(10-9)} = 6$
FL9	15180	$V_{9-8} = 71.42$	$GT_{\text{eff}(9-8)} = 5.7$
FL8	15320	$V_{8-7} = 76.92$	$GT_{\text{eff}(8-7)} = 4.8$
FL7	15450	$V_{7-6} = 83.33$	$GT_{\text{eff}(7-6)} = 4.5$
FL6	15570	$V_{6-5} = 83.33$	$GT_{\text{eff}(6-5)} = 3.9$
FL5	15690	$V_{5-4} = 100$	$GT_{\text{eff}(5-4)} = 3.9$
FL4	15790	$V_{4-3} = 100$	$GT_{\text{eff}(4-3)} = 3.3$
FL3	15890	$V_{3-2} = 90.90$	$GT_{\text{eff}(3-2)} = 2.7$
FL2	16000	$V_{2-1} = 333.33$	$GT_{\text{eff}(2-1)} = -0.9$
FL1	16030	$V_{10-2} = 79.2$	$GT_{\text{eff}}(\text{aver}) = 30.3\text{K}/10\text{cm}$
FL20	14920	$V_{20-19} = 45.5$	$GT_{\text{eff}(20-19)} = 6.6$
FL19	15140	$V_{19-18} = 62.5$	$GT_{\text{eff}(19-18)} = 4.8$
FL18	15300	$V_{18-17} = 76.9$	$GT_{\text{eff}(18-17)} = 3.9$
FL17	15430	$V_{17-16} = 76.9$	$GT_{\text{eff}(17-16)} = 3.9$
FL16	15560	$V_{16-15} = 83.3$	$GT_{\text{eff}(16-15)} = 3.6$
FL15	15680	$V_{15-14} = 90.9$	$GT_{\text{eff}(15-14)} = 3.3$
FL14	15970	$V_{14-13} = 100$	$GT_{\text{eff}(14-13)} = 3$
FL13	15890	$V_{13-12} = 90.9$	$GT_{\text{eff}(13-12)} = 3.3$
FL12	16000	$V_{12-11} = -1000$	$GT_{\text{eff}(12-11)} = -0.3$
FL11	15990	$V_{20-12} = 74.07$	$GT_{\text{eff}}(\text{aver}) = 32.4\text{K}/10\text{cm}$
FL30	14870	$V_{30-29} = 45.45$	$GT_{\text{eff}(30-29)} = 6.6$
FL29	15090	$V_{29-28} = 58.82$	$GT_{\text{eff}(29-28)} = 5.1$
FL28	15260	$V_{28-27} = 71.42$	$GT_{\text{eff}(28-27)} = 4.2$
FL27	15400	$V_{27-26} = 76.92$	$GT_{\text{eff}(27-26)} = 3.9$
FL26	15530	$V_{26-25} = 76.92$	$GT_{\text{eff}(26-25)} = 3.9$
FL25	15660	$V_{25-24} = 90.90$	$GT_{\text{eff}(25-24)} = 3.3$
FL24	15770	$V_{24-23} = 90.90$	$GT_{\text{eff}(24-23)} = 3.3$
FL23	15880	$V_{23-22} = 100$	$GT_{\text{eff}(23-22)} = 3$
FL22	15980	$V_{22-21} = -500$	$GT_{\text{eff}(22-21)} = -0.6$
FL21	15960	$V_{30-22} = 72.07$	$GT_{\text{eff}}(\text{aver}) = 33.3\text{K}/10\text{cm}$
FL40	14820	$V_{40-39} = 45.45$	$GT_{\text{eff}(40-39)} = 6.6$
FL39	15040	$V_{39-38} = 62.50$	$GT_{\text{eff}(39-38)} = 4.8$
FL38	15200	$V_{38-37} = 58.82$	$GT_{\text{eff}(38-37)} = 5.1$
FL37	15370	$V_{37-36} = 76.92$	$GT_{\text{eff}(37-36)} = 3.9$
FL36	15500	$V_{36-35} = 71.42$	$GT_{\text{eff}(36-35)} = 4.2$
FL35	15640	$V_{35-34} = 83.33$	$GT_{\text{eff}(35-34)} = 3.6$
FL34	15760	$V_{34-33} = 90.90$	$GT_{\text{eff}(34-33)} = 3.3$
FL33	15870	$V_{33-32} = 100$	$GT_{\text{eff}(33-32)} = 3$
FL32	15970	$V_{32-31} = -250$	$GT_{\text{eff}(32-31)} = -1.2$
FL31	15930	$V_{40-32} = 69.56$	$GT_{\text{eff}}(\text{aver}) = 34.5\text{K}/10\text{cm}$

FL50	14780	$V_{50-49} = 50$	$GT_{eff(50-49)} = 6$
FL49	14980	$V_{49-48} = 52.63$	$GT_{eff(49-48)} = 5.7$
FL48	15170	$V_{48-47} = 62.50$	$GT_{eff(48-47)} = 4.8$
FL47	15330	$V_{47-46} = 66.66$	$GT_{eff(47-46)} = 4.5$
FL46	15480	$V_{46-45} = 76.92$	$GT_{eff(46-45)} = 3.9$
FL45	15610	$V_{45-44} = 76.92$	$GT_{eff(45-44)} = 3.9$
FL44	15740	$V_{44-43} = 90.90$	$GT_{eff(44-43)} = 3.3$
FL43	15850	$V_{43-42} = 111.11$	$GT_{eff(43-42)} = 2.7$
FL42	15940	$V_{42-41} = -333.33$	$GT_{eff(42-41)} = -0.9$
FL41	15910	$V_{50-42} = 68.96$	$GT_{eff(aver)} = 34.8K/10cm$

Tableau II.6. L'estimation des vitesses projetées avec le schéma numérique centré premier ordre, ainsi que le temps de passage du front de solidification avec la température correspondante pour tous les nœuds de calcul.

Nœuds	Les instants de passage du front colonnaire (s)	Estimation de la vitesse du front colonnaire $V_i=0.01/(Tag_{i+1}-Tag_i)$ en ($\mu m/s$)	Températures correspondantes en ($^{\circ}C$)
FL13	15920	$V_{13-14} = 142.85$	223.59
FL14	15858	$V_{14-15} = 84.03$	221.69
FL15	15731	$V_{15-16} = 80.64$	222.19
FL16	15607	$V_{16-17} = 56.18$	222.09
FL17	15429	$V_{17-18} = 72.99$	224.69
FL18	15292	$V_{13-18} = 79.61$	224.89
FL23	15906	$V_{23-24} = 135.13$	223.59
FL24	15832	$V_{24-25} = 97.08$	222.29
FL25	15729	$V_{25-26} = 78.74$	221.69
FL26	15602	$V_{26-27} = 44.84$	221.89
FL27	15379	$V_{27-28} = 102.04$	225.59
FL28	15281	$V_{23-28} = 80$	223.59
FL33	15894	$V_{33-34} = 114.94$	223.89
FL34	15803	$V_{34-35} = 108.69$	223.09
FL35	15711	$V_{35-36} = 66.22$	222.19
FL36	15560	$V_{36-37} = 62.89$	222.59
FL37	15401	$V_{37-38} = 42.19$	223.29
FL38	15164	$V_{33-38} = 68.49$	226.09

Tableau II.7. Les valeurs de la vitesse projetée sur le vecteur gradient thermique à l'instant $t = 15000s$ pour les points de la figure. (A.II.2).

Temps (s)	Les valeurs des vitesses projetées (cm/s)							
15000	0.1419	0.0052	-0.0435	0.0380	-0.0495	-0.0429	-0.2814	-0.1558
	0.1628	0.0479	0.0209	-0.0237	0.0077	-0.0240	-0.2255	-0.0661
	0.2978	0.1036	0.0738	-0.0394	0.0248	-0.0881	-0.1671	-0.0263

Tableau II.8. Caractéristiques géométriques de la macrostructure. Sn-3wt.%Pb. Conditions expérimentales $\Delta T = 40K$; $CR=0,03K/s$, L.Hachani [2].

Taille du grain (mm ²)	Surface du grain (mm ²)	(%) surface	Nombre de grain
$x < 2$	170.49	1,94	298
$2 < x < 5$	246.28	2,81	77
$5 < x < 10$	244.45	2,79	36
$10 < x < 20$	401.75	4,58	30
$20 < x < 40$	415.05	4,74	14
$40 < x < 80$	665.42	7,59	13
$80 < x < 160$	206.34	2,35	2
$160 < x < 320$	691.08	7,89	3
$320 < x < 640$	1259.02	14,37	3

Tableau II.9. Mesures de l'espacement dendritique secondaire (λ_2). Sn-3wt.%Pb. Conditions expérimentales $\Delta T = 40K$; $CR=0,03K/s$, L. Hachani [2].

DAS (μm) Sn-3wt.%Pb		
Partie gauche	Partie centrale	Partie droite
99	90	91

Tableau II.10. Valeurs de mesures de la fraction eutectique. L'espacement entre les points de mesure est respectivement 2,2mm dans la direction y (direction verticale de la matrice) et 7,7mm dans la direction x horizontale (direction horizontale de la matrice).

Fraction eutectique (%)													
1.012	2.227	3.170	6.004	3.661	7.670	4.805	8.377	6.673	8.695	4.303	3.202	2.373	
4.530	2.934	4.263	2.392	4.630	4.571	2.615	3.157	3.516	2.864	3.024	2.394	2.249	
2.315	3.326	2.962	1.905	4.217	4.055	3.939	4.041	3.142	1.738	11.009	1.803	2.640	
3.150	1.924	1.035	3.617	4.384	4.142	3.300	2.584	2.441	2.960	3.902	1.627	2.501	
1.896	1.858	3.020	1.847	2.474	4.394	2.091	5.722	3.179	3.911	3.170	3.315	2.501	
1.785	3.133	2.746	4.342	3.138	2.675	2.021	5.260	3.350	1.675	2.026	7.582	1.824	
3.233	0.734	2.759	2.491	2.561	0.992	2.598	3.645	3.649	3.398	1.333	2.142	1.470	
2.528	0.811	2.228	2.581	3.008	2.740	2.706	2.196	2.356	3.047	2.288	1.564	0.746	
2.058	1.114	1.563	1.414	2.702	0.909	2.097	3.203	2.029	5.302	2.881	1.879	2.627	
2.851	2.151	3.361	2.515	1.378	2.042	1.807	3.623	2.870	2.791	1.432	1.674	2.391	
1.856	2.311	2.085	2.627	1.598	1.507	2.143	1.833	1.399	2.212	1.822	2.231	2.293	
3.557	2.417	2.794	2.881	1.924	1.391	1.162	2.385	2.135	3.116	2.365	1.417	1.322	
0.872	1.622	1.942	3.202	4.481	3.569	2.836	3.076	3.088	2.313	2.928	2.479	1.406	
3.701	0.899	2.708	1.020	0.734	3.368	2.315	1.766	2.099	2.148	1.453	1.186	1.831	
2.523	1.294	1.687	1.392	4.384	2.378	2.635	2.576	2.958	3.163	2.107	1.774	1.289	
3.135	14.640	1.156	0.872	1.806	3.032	2.633	2.499	2.436	2.828	2.842	2.072	1.938	
1.945	2.506	1.362	0.879	2.454	1.996	1.597	1.913	2.359	1.302	2.216	2.457	1.666	
2.550	1.311	2.833	1.997	1.213	2.270	2.618	2.926	2.200	3.240	2.672	2.094	1.249	
0.848	1.986	2.153	1.489	3.063	2.415	2.550	1.629	2.141	2.599	2.540	1.775	1.464	
2.354	3.679	1.100	1.054	2.696	3.612	1.710	1.794	2.083	2.551	3.599	3.059	1.732	
1.629	1.678	1.968	0.652	0.968	2.222	1.601	2.301	1.924	2.507	2.158	1.955	1.477	
1.358	2.039	2.164	1.577	2.054	2.320	2.430	2.028	2.085	1.913	2.453	1.572	1.284	
3.083	1.890	0.428	3.030	1.992	1.646	1.916	2.398	2.244	2.907	1.581	1.899	2.493	
0.924	1.175	1.893	1.646	1.290	2.283	1.581	1.208	1.667	1.918	1.981	1.342	1.554	
3.373	0.657	1.157	1.138	1.978	2.339	1.650	1.441	1.394	1.682	2.068	1.047	1.292	
0.466	1.717	0.365	2.682	1.427	2.422	1.575	1.406	1.814	1.839	2.522	1.354	1.775	
2.733	1.854	3.270	2.052	0.895	1.156	1.936	1.459	1.908	2.616	1.263	1.916	2.487	

Annexe II.4

Expériences de solidification réalisées sur l'alliage Sn-10wt.%Pb sous l'effet de la convection thermosolutale

Tableau II.11.

Expériences de solidification sous l'effet de la convection naturelle (brassage appliqué seulement durant la première phase d'homogénéisation thermique) avec une concentration massique de **10%** de **Pb** (changement de la vitesse de refroidissement).

Alliage	Différence de température expérimentale moyenne (K)	Vitesse de refroidissement (K/s)	Référence de l'expérience
Sn-10wt.%PB	40	0.03	LH19
		0.02	LH20
		0.04	LH21
		0.03	LH33

Remarque: LH33, est une expérience de solidification sous l'effet de la convection naturelle sans aucun brassage, dans le but d'étudier l'effet de la sédimentation du plomb sur la configuration d'écoulement (convection).

Tableau II.12.

Cartes de températures instantanées enregistrées pour trois moments choisis correspondant pour l'expérience Sn-3wt.%Pb (réf LH1), Sn-10wt.%Pb (réf LH19) et Sn-10wt.%Pb (réf LH33). Les conditions expérimentales: $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

	Expérience	Cartes thermiques (°C)
14000s	Sn-3wt.%Pb_LH1	264.49 261.69 261.09 261.08 260.39 260.49 260.09 259.69 259.19 254.19 261.99 257.99 257.79 257.78 257.69 257.59 257.49 257.48 257.59 252.59 258.79 254.39 253.99 254.09 254.29 254.19 254.39 254.19 254.39 250.09 256.39 250.89 250.59 250.69 250.89 250.99 250.89 250.59 250.79 247.29 254.09 248.29 247.99 247.79 247.49 247.59 247.09 247.08 247.18 244.49
	Sn-10wt.%Pb_LH19	257.02 250.42 248.22 247.52 247.02 247.12 246.62 246.12 245.22 241.32 253.92 248.52 247.22 246.52 246.72 246.52 246.22 245.92 245.52 242.72 251.62 246.72 245.82 245.52 245.62 245.52 245.22 245.23 244.92 242.52 250.32 245.42 244.62 244.42 244.43 244.22 244.02 244.03 243.82 241.92 249.02 244.12 243.52 243.22 243.12 243.13 242.82 242.72 242.52 240.72
	Sn-10wt.%Pb_LH33	260.24 256.64 254.24 252.24 250.24 248.24 246.14 244.04 241.44 237.94 259.64 256.84 254.64 252.44 250.24 248.04 245.54 243.34 240.64 237.84 259.54 256.84 254.44 252.34 250.14 247.64 245.64 243.24 240.24 237.54 259.64 257.14 254.74 252.44 250.24 247.74 245.34 242.64 239.94 236.94 260.74 257.74 255.04 252.44 250.14 248.04 245.04 242.44 239.54 237.04

14800s	Sn3- wt. %Pb_LH1	245.79 243.49 243.09 242.89 242.49 242.48 242.39 241.79 240.99 233.99
		243.59 240.49 240.19 240.29 240.28 240.19 239.99 240.09 239.29 230.49
		240.89 237.39 237.09 237.29 237.49 237.48 237.29 237.28 236.19 227.39
		239.19 234.39 234.19 234.39 234.79 234.69 234.68 234.29 232.89 225.09
		236.89 232.09 232.08 231.99 231.97 231.98 231.79 231.59 229.59 223.99
	Sn- 10wt. %Pb_LH19	237.12 231.92 230.22 229.42 229.43 229.02 228.72 228.12 226.92 221.92
		234.12 229.82 228.62 228.22 228.23 228.12 227.72 227.62 226.92 223.42
		231.82 227.92 227.42 227.12 227.02 226.92 226.62 226.52 226.12 223.12
		230.62 226.52 225.92 225.62 225.82 225.52 225.32 225.02 224.92 222.32
		229.32 225.12 224.72 224.32 224.33 224.22 223.62 223.42 223.12 220.92
	Sn- 10wt. %Pb_LH33	241.44 239.54 237.94 236.44 234.74 232.74 230.44 227.64 224.14 218.94
		241.04 239.34 237.74 236.04 234.14 231.84 229.24 226.44 222.94 218.84
		240.74 239.24 237.54 235.74 233.74 231.34 228.74 225.94 222.04 218.54
		240.94 239.34 237.44 235.54 233.64 230.84 228.34 224.94 221.34 217.44
		241.34 239.54 237.64 235.54 233.54 231.34 227.94 224.64 220.64 217.24
16400s	Sn3- wt. %Pb_LH1	201.29 198.19 195.89 192.89 190.69 186.79 183.69 179.89 176.69 173.79
		201.39 198.69 195.79 193.19 190.29 186.89 183.59 180.19 176.59 172.99
		201.99 199.09 196.29 193.19 190.49 187.19 183.59 180.19 176.29 172.79
		202.29 199.49 196.49 193.39 190.89 187.29 184.09 179.79 176.49 172.69
		202.19 199.29 196.59 193.49 190.69 187.49 183.99 180.19 176.19 173.09
	Sn- 10wt. %Pb_LH19	204.32 206.22 205.62 203.72 201.52 198.12 195.32 191.62 187.92 181.42
		206.42 207.42 206.02 203.52 200.72 197.62 194.22 190.82 186.92 182.02
		207.12 207.82 205.92 203.62 200.82 197.62 194.12 190.72 186.92 182.52
		206.72 207.62 206.02 203.62 201.02 197.62 194.42 190.42 187.22 183.12
		206.32 206.82 205.62 203.32 200.62 197.72 194.12 190.52 186.82 183.02
	Sn- 10wt. %Pb_LH33	203.04 204.44 205.24 203.94 202.54 200.14 197.64 194.04 189.74 183.14
		205.04 205.34 204.94 203.84 201.94 199.24 196.14 192.64 188.24 183.24
		206.24 206.54 205.74 204.14 201.94 198.94 195.74 192.14 187.24 182.84
		205.74 206.84 206.04 204.34 202.24 198.84 195.54 191.14 186.74 181.64
		204.64 206.14 206.04 204.44 202.34 199.54 195.34 191.04 186.04 181.64

ANNEXE III

Annexe III.1. Mesure des composantes verticale et horizontale du champ magnétique

La distribution horizontale et verticale du champ magnétique a été mesurée dans un plan vertical par rapport à la culasse magnétique de l'inducteur comme le montre la figure (A.III.1). Pour cela, on utilise un capteur inductif à spires, illustré sur la figure (A.III.2). Le capteur est constitué d'une tige isolante, autour de laquelle, est enroulé un fil de cuivre de manière à obtenir n spires de section S . Lorsqu'un champ magnétique traverse la section S , une différence de potentiel e est créée aux bornes du fil de cuivre. Cela permet de calculer les composantes B_x et B_y du champ magnétique, par la relation suivante R. Ernst [1] :

$$e = n \cdot \omega \cdot B \cdot S$$

Où n , ω , S représentent respectivement le nombre de spires ($n = 90$), la pulsation du champ magnétique et la section des spires ($S = 18,86 \text{ mm}^2$).

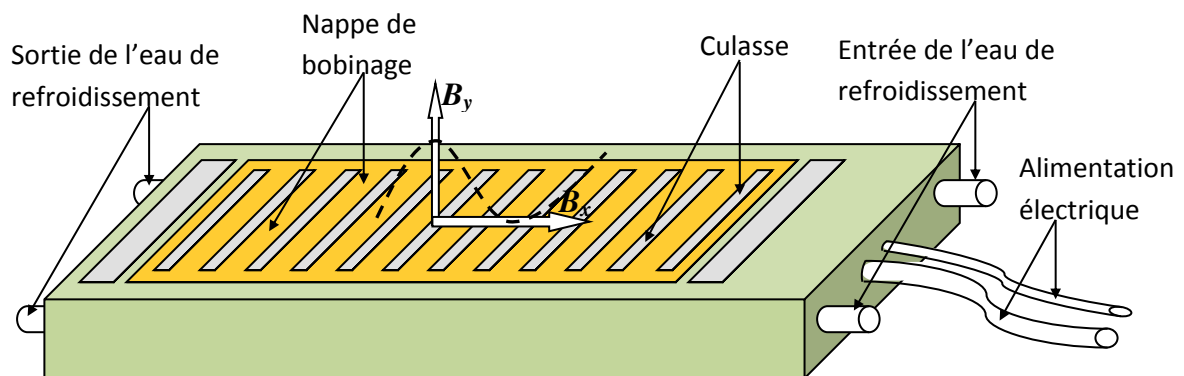


Figure A.III.1. Schéma de l'inducteur et les deux composantes du champ magnétique.

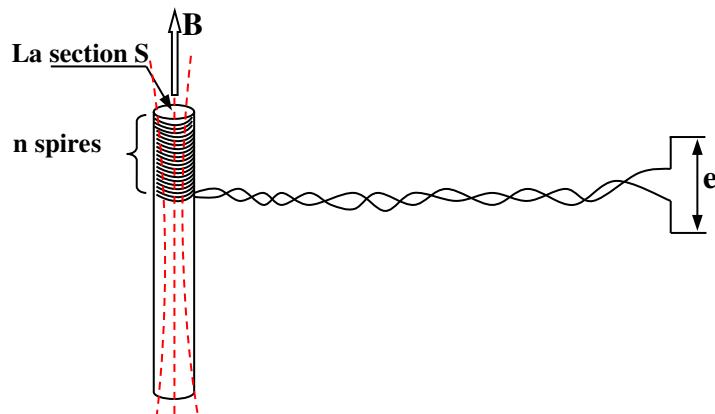


Figure A.III.2. Schéma de principe d'un capteur inductif à spires.

Table III.1. Les valeurs mesurées du champ magnétique $\|\vec{B}\|$ le long de l'axe x, à différentes intensités des courants appliqués.

X(mm)	B (mT)		
	I = 7.5 A	I = 8.5 A	I = 10 A
10	15.003	16.691	17.704
20	43.085	50.556	59.263
30	23.251	25.722	30.109
40	40.870	43.865	50.866
50	38.569	40.064	51.834
60	17.606	22.590	25.661
70	38.164	43.105	50.994
80	29.580	32.865	38.216
90	25.214	29.858	33.204
100	40.329	45.519	51.065
110	21.784	22.141	26.270
120	29.662	34.447	39.480
130	31.633	36.605	41.141
140	18.658	22.963	25.650
150	43.501	46.855	55.275
160	23.968	27.759	31.697
170	26.279	30.586	36.848
180	30.757	39.118	46.515

Table III.2. Propriétés physiques de l'alliage Ga-In-Sn

Composition	67wt.%Ga-20.5wt.%Sn-12.5wt.%In
Température de fusion, T_m	10.5 °C
Densité, ρ	$6.4 \times 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$
conductivité électrique, σ	$3.4 \times 10^6 (\Omega \cdot m)^{-1}$
viscosité cinématique, ν	$3.4 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
vitesse du son, c	2860 m.s^{-1}
tension superficielle, γ	0.533 N.m^{-1}

Tableau III.3. Vélodimétrie Doppler ultrasonore : paramètres de l'alliage Ga-In-Sn

paramètres	Valeurs et unités
Longueur d'onde	0.715 mm
t_{PRF}	577.1 μs
Points par profil	123
Temps de mesure total	147.7 s

Annexe III.2. Expériences de solidification réalisées sous l'effet du brassage électromagnétique

Tableau III.4. Expériences de solidification sous l'effet du brassage électromagnétique (brassage appliqué dès la première phase d'homogénéisation thermique jusqu'à la fin du processus expérimental) réalisée sur l'alliage étain-plomb de concentration massique de **3%** de **Pb**.

Alliage	Différence de température	Vitesse de refroidissement	Référence de l'expérience
Sn-3wt.% PB	40K	0,03 K/s	LH14
			LH15
			LH16
			LH17
			LH23
			LH24
			LH31

- 1- Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH14 : brassage dans le sens opposé à la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 2- Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH15 : brassage dans le sens opposé à la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 3- Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH16 : brassage dans le même sens que la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 4- Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH17 : brassage dans le même sens que la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).

- 5- **Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH23** : brassage alterné avec une fréquence de 0.125Hz (Ampérage appliqué 8.2A).
- 6- **Sn03PB_ΔT40_VR0.03_LH24** : brassage alterné avec une fréquence de 0.125Hz (Ampérage appliqué 8.2A).
- 7- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH31** : brassage intermittent (30s de brassage et 15s sans brassage ; Ampérage appliqué 8.2A)

Tableau III.6. Expériences de solidification sous l'effet du brassage électromagnétique (brassage appliqué dès la première phase d'homogénéisation thermique jusqu'à la fin du processus expérimental) réalisée sur l'alliage étain-plomb de concentration massique de **10%** de **Pb**.

Alliage	Différence de température	Vitesse de refroidissement	Référence de l'expérience
Sn-10wt.%PB	40K	0,03 K/s	LH22
			LH25
			LH26
			LH27
			LH29
			LH30

- 1- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH22** : brassage dans le même sens que la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 2- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH25** : brassage dans le sens opposé à la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 3- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH26** : brassage dans le sens opposé à la convection naturelle (Ampérage appliqué 8.2A).
- 4- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH27** : brassage alterné avec une fréquence de 0.125Hz (Ampérage appliqué 8.2A).
- 5- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH29** : brassage alterné avec une fréquence de 0.125Hz (Ampérage appliqué 8.2A).
- 6- **Sn10PB_ΔT40_VR0.03_LH30** : brassage intermittent (100s de brassage et 10s sans brassage ; Ampérage appliqué 8.2A).

Annexe III.3.

Mesures de champ de température pour les cas brassés à différent instants

Tableau III.7.

Cartes de températures instantanées enregistrées pour trois moments correspondant à l'alliage Sn-10wt.%Pb des expériences référencées, *LH19*, *LH22*, *LH25* et *LH*, respectivement. Les conditions expérimentales sont les suivantes: $\Delta T = 40K$, $CR = 0,03K/s$.

	Expérience	Cartes thermiques (°C)
ti = 9 mn	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH19</i>	221.42 219.22 218.22 217.72 217.62 217.02 216.02 213.72 209.92 202.72 220.22 218.22 217.52 217.12 217.02 216.72 215.62 213.32 209.42 203.62 219.22 217.32 216.82 216.52 216.52 216.22 215.12 212.92 209.12 204.02 219.52 217.22 216.22 215.92 216.02 215.52 214.82 212.22 208.82 204.22 220.42 217.72 216.32 215.52 215.22 214.82 213.92 211.62 208.22 203.82
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH22</i>	222.56 220.56 219.76 219.46 219.36 219.16 218.96 217.96 215.06 207.56 221.26 219.36 218.66 218.66 218.56 218.56 218.46 217.86 216.26 211.76 220.06 218.56 218.26 218.36 218.26 218.36 218.16 217.86 216.56 212.96 219.46 218.16 217.86 217.76 217.96 217.96 218.06 217.46 216.06 212.06 218.26 217.56 217.36 217.46 217.36 217.56 217.36 216.86 215.06 210.26
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH25</i>	222.43 220.93 219.73 218.43 217.93 217.63 217.63 216.83 214.83 208.73 221.43 219.53 218.23 217.63 217.33 217.33 217.23 216.83 215.93 212.43 220.73 218.63 217.63 217.33 217.33 217.33 217.03 217.03 216.53 214.93 220.53 218.33 217.43 217.23 217.43 217.33 217.23 216.93 216.83 214.93 219.23 217.93 217.63 217.43 217.33 217.53 217.23 217.13 216.73 214.03
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH29</i>	222.83 221.23 220.93 220.83 220.63 219.73 219.03 218.33 216.93 212.63 221.43 220.33 220.03 220.13 220.13 219.23 218.33 217.93 217.03 214.53 220.43 219.73 219.83 219.83 219.83 218.83 217.93 218.03 217.23 214.93 220.53 219.63 219.63 219.83 219.73 218.93 218.23 217.73 217.33 213.63 220.03 219.43 219.43 219.33 219.23 219.03 218.43 218.03 217.43 212.63
ti = 15 mn	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH19</i>	215.52 215.72 215.52 215.02 214.42 211.92 208.82 205.02 200.72 193.52 215.72 215.52 215.42 215.02 214.22 211.62 208.22 204.22 199.92 194.22 215.72 215.72 215.42 215.02 214.12 211.32 207.92 204.12 199.82 194.62 215.52 215.72 215.22 214.62 213.42 210.72 207.82 203.62 199.92 195.12 216.12 215.42 214.62 213.62 212.42 210.22 207.22 203.32 199.52 194.92
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH22</i>	216.16 216.46 216.36 216.36 216.46 216.26 215.76 213.96 209.96 200.46 215.96 216.06 215.96 215.96 215.96 215.96 215.46 213.96 210.76 204.66 215.86 215.86 215.86 216.06 215.96 215.96 215.46 213.86 210.16 205.16 215.66 215.96 215.96 215.96 216.06 215.86 215.36 212.76 208.96 203.66 215.56 215.66 215.76 215.86 215.76 215.76 214.76 211.76 207.56 201.76
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH25</i>	216.53 216.73 216.73 216.63 216.53 216.43 216.03 214.63 211.03 202.83 216.53 216.33 216.13 216.33 216.13 216.23 215.83 214.83 212.03 206.53 216.23 216.13 216.03 216.23 216.33 216.23 215.83 215.03 212.03 208.03 215.73 216.03 216.13 216.13 216.43 216.33 216.03 214.93 211.43 206.83 215.33 215.73 215.93 216.03 216.13 216.23 215.83 214.63 210.53 204.83
	Sn-10wt.%Pb_ <i>LH29</i>	216.93 217.03 217.13 217.23 217.13 216.63 216.33 214.63 211.23 205.23 216.83 216.83 216.63 216.73 216.63 216.33 216.13 214.33 210.93 206.63 216.73 216.73 216.63 216.53 216.43 216.23 215.83 214.13 210.23 206.43 216.73 216.73 216.63 216.53 216.53 216.33 216.13 213.33 209.43 204.73 216.63 216.63 216.63 216.43 216.53 216.53 216.23 213.03 208.53 203.33

ti = 24 mn	Sn- 10wt.%Pb_LH19	202.92	204.72	204.22	202.72	200.42	197.22	194.42	190.72	187.12	180.72
		205.02	205.92	204.62	202.52	199.82	196.62	193.42	189.92	186.12	181.12
		206.02	206.52	204.92	202.62	199.92	196.72	193.32	189.82	186.12	181.82
		205.72	206.62	204.92	202.62	200.12	196.72	193.52	189.62	186.52	182.52
		205.52	205.92	204.72	202.32	199.72	196.82	193.42	189.62	186.22	182.52
	Sn- 10wt.%Pb_LH22	206.76	210.46	211.56	211.16	210.36	208.46	206.26	202.86	197.86	187.56
		207.96	210.86	211.46	211.06	209.76	207.56	205.06	201.76	197.76	191.46
		208.86	210.96	211.36	211.06	209.76	207.26	204.26	200.96	196.96	192.16
		209.06	210.86	211.26	210.86	209.66	206.86	203.76	199.66	195.96	190.76
		209.66	210.76	210.96	210.66	209.16	206.86	203.16	199.16	194.46	188.96
	Sn- 10wt.%Pb_LH25	209.13	211.23	212.13	211.83	211.03	209.23	207.23	203.83	199.53	191.23
		209.63	211.33	211.73	211.63	210.63	208.83	206.23	202.93	199.43	194.23
		209.53	211.23	211.53	211.43	210.63	208.73	205.73	202.53	198.93	195.43
		208.63	210.83	211.33	211.23	210.53	208.63	205.63	201.53	198.13	193.93
		207.93	210.23	210.93	210.83	210.23	208.73	205.03	201.03	196.63	191.73
	Sn- 10wt.%Pb_LH29	208.93	211.73	212.33	211.93	210.63	207.83	205.13	201.83	198.33	192.73
		210.43	212.03	212.13	211.73	210.13	207.63	204.63	201.23	197.73	193.93
		210.53	211.83	211.93	211.63	210.03	207.53	204.33	201.03	197.13	193.73
		210.13	211.43	211.63	211.43	210.23	207.43	204.43	200.13	196.63	192.23
		210.03	211.03	211.23	211.03	210.23	207.83	203.93	199.93	195.73	191.03

Résumé

Ce travail se situe dans la perspective d'un contrôle de la structure de solidification des alliages métalliques sous l'effet de la convection naturelle et forcée afin d'améliorer à terme la maîtrise des microstructures de solidification grâce à un brassage électromagnétique permettant d'avoir une homogénéisation du bain liquide qui par la suite peut améliorer la microstructure finale de l'alliage. La possibilité retenue dans ce travail est de réaliser ce brassage sans contact avec la solution liquide (alliage sous fusion) et sans pollution par d'autres éléments en utilisant un brassage par la force de Lorentz. L'objet de la thèse comporte une étude théorique à la fois expérimentale basée sur une installation expérimentale particulièrement documentée et instrumentée, développée au laboratoire SIMAP/EPM à Grenoble, nommée AFRODITE. Ce dispositif expérimental permet de fournir des données quantitatives et qualitatives sur le processus de solidification des alliages métalliques. Ces données sont nécessaires à la contribution aux études menées sur la solidification des alliages métallique et enrichir la base des données des modèles numériques développés pour prédire les défauts liés à la solidification. L'alliage choisi dans notre travail est l'étain-plomb, vu sa basse température de fusion. Les expériences réalisées, visent à étudier l'effet de deux modes de configuration dynamique sur la solidification de l'alliage Sn-Pb: la convection thermosolutale avec la variation de deux paramètres essentiels (la vitesse de refroidissement et la différence de température expérimentale) et la convection forcée par l'utilisation de plusieurs modes de brassage électromagnétique. Cette étude s'intéresse en particulier à la caractérisation des macrostructures et les défauts liés à la macroségrégation. L'originalité de l'étude vise à mesurer in situ les températures instantanées. Ceci nous a permis d'évaluer l'évolution du transfert thermique due à la convection naturelle/forcée, ainsi que leurs influence sur le processus de la solidification sous différents aspects. L'analyse post-mortem de l'alliage métallique, fournit la structure de solidification et la distribution des ségrégations à différentes échelles (mésoscopique et macroscopique).

Abstract

This work is situated in the prospects of solidification control of the metallic alloys structure under the effect of natural and forced convection to enhance in term the control of solidification microstructures through an effective electromagnetic stirring to have a homogenizing the liquid which may subsequently improve the final microstructure of the alloy. The possibility considered in this work is to achieve this stirring without contacting the liquid solution (alloy in fusion) and pollution by other elements using a stirring by the Lorentz force. The purpose of the thesis consists both a theoretical and experimental study based on an experimental setup particularly documented and instrumented developed in SIMAP/EPM laboratory in Grenoble, named AFRODITE. The experimental device used to provide quantitative and qualitative data on the process of solidification of metallic alloys. These data are necessary for the contribution to studies on the solidification of metallic alloys and enrich the data base of numerical models developed to predict defects related to solidification. The alloy selected from our work is tin-lead, for its low melting temperature. The experiments performed are designed to study the effect of two types of dynamic configuration on the solidification of Sn-Pb alloy: the thermosolutal convection with the variation of two essential parameters (cooling rate and the difference in experimental temperature) and forced convection by the use of several modes of electromagnetic stirring. This study is particularly interested in the characterization of macrostructures and defects related to macrosegregation. The originality of this study is to measure in situ instantaneous temperatures. This allowed us to assess the evolution of the heat transfer due to natural / forced convection and their influence on the process of solidification in different aspects. The post-mortem analysis of the metal alloy provides the solidification structure and distribution of segregation at different scales (mesoscopic and macroscopic).