



**HAL**  
open science

# Modélisation et étude de la macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide : application aux alliages de zirconium

Mathieu Revil-Baudard

► **To cite this version:**

Mathieu Revil-Baudard. Modélisation et étude de la macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide : application aux alliages de zirconium. Matériaux. Université de Lorraine, 2012. Français. NNT : 2012LORR0297 . tel-01596710

**HAL Id: tel-01596710**

**<https://theses.hal.science/tel-01596710>**

Submitted on 28 Sep 2017

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## AVERTISSEMENT

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

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

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

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

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

# **Modélisation et étude de la macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide**

## **Application aux alliages de zirconium**

THÈSE

Présentée et soutenue publiquement le 9 juillet 2012

Pour l'obtention du grade de  
**Docteur de l'Université de Lorraine**  
(Science et Ingénierie des Matériaux)

par

**Mathieu REVIL-BAUDARD**  
Ingénieur INPG

Composition du Jury :

Rapporteurs	M.	Yves FAUTRELLE	Professeur, Grenoble INP
	M.	Benoît GOYEAU	Professeur, Ecole Centrale de Paris
Examineurs	M.	Éric ARQUIS	Professeur, IPB/ENSCBP
	M.	Hervé COMBEAU	Professeur, École des Mines de Nancy (Directeur de thèse)
	M.	Alain JARDY	Chargé de recherche CNRS, Institut Jean Lamour (Co-Directeur de thèse)
	Mme.	Isabelle RONGA	Directrice R&D, CEZUS
Invités	Mme.	Faustine LECLERC	Ingénieur R&D procédés, CEZUS
	M.	Yvon MILLET	Directeur R&D Europe, Timet



# Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au sein des équipes « Procédés d'élaboration » et « Solidification » du département Science et Ingénierie des Matériaux et Métallurgie (SI2M) de l'Institut Jean Lamour (IJL). Je tiens à exprimer ma reconnaissance à Mme. Sabine DENIS, Directrice du département SI2M, pour m'avoir accueilli au sein du département.

J'exprime ma sincère gratitude à M. Eric ARQUIS, Professeur à l'IPB/ENSCBP, pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury de cette thèse.

J'adresse toute ma reconnaissance à M. Hervé COMBEAU, Professeur à l'École des Mines de Nancy, et M. Alain JARDY, Chargé de recherche CNRS, qui ont dirigé ce travail. Je les remercie pour leurs conseils, leur soutien et la confiance qu'ils m'ont accordée, m'ayant laissé une large autonomie dans le déroulement de mon travail de recherche.

Je remercie sincèrement M. Yves FAUTRELLE, Professeur à Grenoble INP, et M. Benoît GOYEAU, Professeur à l'École Centrale de Paris, pour avoir consacré une partie de leur temps à l'examen de ce mémoire et accepté d'en être les rapporteurs.

Ce travail a été réalisé en étroite collaboration avec la société CEZUS du groupe AREVA. Je tiens à remercier Mme. Véronique REBEYROLLE qui était Directrice R&D de CEZUS durant mon stage de fin d'étude et mes trois années de thèse, ainsi que Mme. Isabelle RONGA qui occupe actuellement cette fonction et qui a accepté de participer au jury.

Je remercie vivement Mme. Faustine LECLERC, Ingénieur R&D Procédés de CEZUS, pour la pertinence de ses nombreux et précieux conseils, sa confiance, son enthousiasme et sa grande disponibilité.

Je remercie également toutes les personnes de CEZUS avec qui j'ai travaillé dans le cadre des essais industriels réalisés au cours de cette thèse ; je pense en particulier à MM. Pascal GUÉRIN et Christophe DEVILLE-CAVELLIN.

Mes remerciements vont également à M. Yvon MILLET, Directeur R&D Europe de TIMET, et Mme. Jessica ESCAFFRE, Ingénieur R&D d'Aubert & Duval, pour leur disponibilité et l'intérêt porté à mon travail.

Je souhaite également remercier tous les membres du laboratoire pour l'aide scientifique, technique ou administrative qu'ils m'ont m'apportée. Je pense en particulier à M. Miha ZALOŽNIK, Chargé de recherche CNRS, et M. Bernard DUSSOUBS, Ingénieur calcul, ainsi qu'à Géraldine, Laurence, Martine, Francesco et Patricio.

Je dédie ce travail à mes parents et à ma sœur. Leur soutien et leurs encouragements m'ont toujours aidé et je tiens à leur exprimer ici ma reconnaissance et mon affection.

Je remercie enfin tous mes collègues pour leur sympathie et les moments partagés dans et en dehors du laboratoire. Merci à Andrea, Aurore, Benoît, Gaël, Ghassan, Ismaël, Julien, Khalid, Mathilde, Marie, Olivier, Paolo, Valerio, Vincent, Yannick, sans oublier tous les autres...



# Table des matières

<b>Nomenclature .....</b>	<b>xi</b>
<b>I Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>I.1 Les alliages de zirconium.....</b>	<b>1</b>
I.1.a Généralités .....	1
I.1.b Élaboration et mise en forme.....	3
<b>I.2 Le procédé VAR .....</b>	<b>4</b>
I.2.a Description générale .....	4
I.2.b Modélisation du procédé.....	5
<b>I.3 Les phénomènes responsables de la macroségrégation .....</b>	<b>6</b>
I.3.a La macroségrégation .....	6
I.3.b Mouvement relatif des phases solide et liquide .....	8
<b>I.4 La macrostructure et la macroségrégation dans un lingot VAR .....</b>	<b>10</b>
I.4.a Macrostructure générale des lingots de coulée .....	10
Superalliages et aciers.....	11
Alliages de titane et de zirconium .....	12
I.4.b La macroségrégation dans les lingots VAR.....	13
<b>I.5 Objectifs du travail de thèse et plan du mémoire .....</b>	<b>14</b>
<b>I.6 Bibliographie .....</b>	<b>15</b>
<b>II Description du modèle de solidification d'un lingot VAR</b>	<b>19</b>
<b>II.1 Les équations de conservation locales .....</b>	<b>19</b>
II.1.a Forme générale des équations de conservation.....	19
II.1.b Modélisation statistique de la turbulence .....	20
Conservation de la masse totale et de la quantité de mouvement .....	21
Conservation de la chaleur .....	22
Conservation de la masse d'un constituant.....	23
II.1.c Modèles de turbulence.....	23

<b>II.2</b>	<b>Dérivation des équations de conservation modélisant la solidification d'un alliage.....</b>	<b>26</b>
II.2.a	La prise de moyenne volumique.....	26
	Propriétés commutatives avec la prise de moyenne temporelle.....	28
	Double décomposition – fluctuations spatiales et temporelles.....	28
II.2.b	Conservation de la masse totale.....	29
II.2.c	Conservation de la quantité de mouvement.....	30
II.2.d	Conservation de l'énergie.....	34
II.2.e	Conservation de la masse d'un constituant $i$ .....	36
II.2.f	Conservation de la densité de grains.....	36
II.2.g	Modèle $k-\varepsilon$ macroscopique.....	37
II.2.h	Conditions aux limites.....	40
II.2.i	Résumé des équations de conservation et principe du couplage avec les modèles de microségrégation.....	40
<b>II.3</b>	<b>Modélisation de la microségrégation.....</b>	<b>42</b>
II.3.a	Bras de levier.....	43
II.3.b	Modèle cinétique de croissance.....	45
<b>II.4</b>	<b>Résolution numérique.....</b>	<b>48</b>
<b>II.5</b>	<b>Conclusion.....</b>	<b>48</b>
<b>II.6</b>	<b>Bibliographie.....</b>	<b>49</b>
<b>III</b>	<b>Refusions VAR expérimentales des alliages de zirconium M5<sup>®</sup> et Zircaloy-4.....</b>	<b>53</b>
<b>III.1</b>	<b>Conditions opératoires.....</b>	<b>54</b>
III.1.a	Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4.....	54
III.1.b	Refusion expérimentale de l'alliage M5 <sup>®</sup> .....	55
<b>III.2</b>	<b>Plan de prélèvement.....</b>	<b>56</b>
<b>III.3</b>	<b>Caractérisation de la microségrégation.....</b>	<b>57</b>
<b>III.4</b>	<b>Résultats.....</b>	<b>58</b>
III.4.a	Macrostructure.....	58
III.4.b	Microségrégation.....	61
	Alliage Zircaloy-4.....	61
	Alliage M5 <sup>®</sup> .....	63
III.4.c	Macroségrégation.....	64
	Alliage Zircaloy-4.....	64
	Alliage M5 <sup>®</sup> .....	71
<b>III.5</b>	<b>Synthèse.....</b>	<b>75</b>
<b>III.6</b>	<b>Bibliographie.....</b>	<b>76</b>

<b>IV</b>	<b>Simulation de la refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4 : étude de la macroségrégation</b>	<b>75</b>
IV.1	Introduction .....	75
IV.2	Influence de la convection naturelle.....	76
IV.2.a	Introduction.....	76
IV.2.b	Comportement hydrodynamique .....	79
	Vitesses orthoradiales élevées (instant $t_1$ (brassage alterné) et $t_3$ (brassage unidirectionnel)).....	79
	Vitesses orthoradiales faibles (instant $t_2$ au cours du brassage alterné).....	83
IV.2.c	Macroségrégation .....	86
IV.2.d	Comparaison à la macroségrégation expérimentale.....	90
	Macroségrégation longitudinale.....	90
	Macroségrégation radiale.....	90
IV.3	Influence de l'espacement interdendritique dans le modèle de perméabilité de la zone pâteuse.....	97
IV.4	Influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification.....	105
IV.5	Conclusion.....	112
IV.6	Bibliographie.....	112
<b>V</b>	<b>Simulation de la refusion expérimentale de l'alliage M5® : étude de la macroségrégation</b>	<b>115</b>
V.1	Introduction .....	115
V.2	Influence de la convection naturelle.....	115
V.2.a	Introduction.....	115
V.2.b	Comportement hydrodynamique .....	118
	Vitesses orthoradiales élevées (instants $t_1$ et $t_2$ ).....	118
	Vitesses orthoradiales faibles (instant $t_3$ ) .....	121
V.2.c	Macroségrégation .....	123
	Macroségrégation longitudinale.....	125
	Macroségrégation radiale.....	125
V.3	Influence de l'espacement interdendritique dans le modèle de perméabilité de la zone pâteuse.....	130
V.4	Influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification.....	133

<b>V.5</b>	<b>Influence des conditions thermiques à la limite latérale du lingot.....</b>	<b>138</b>
V.5.a	Introduction .....	138
V.5.b	Macroségrégation et comparaison aux mesures expérimentales .....	139
<b>V.6</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>142</b>
<b>V.7</b>	<b>Bibliographie .....</b>	<b>142</b>
<b>VI</b>	<b>Modélisation et simulation du transport de grains équiaxes lors de la refusion de l'alliage Zircaloy-4</b>	<b>145</b>
<b>VI.1</b>	<b>Introduction .....</b>	<b>145</b>
<b>VI.2</b>	<b>Révision des équations résolues pour tenir compte du mouvement de grains équiaxes .....</b>	<b>146</b>
VI.2.a	Introduction .....	146
VI.2.b	Conservation de la masse totale.....	146
VI.2.c	Conservation de la quantité de mouvement .....	147
	Écoulement d'une suspension de grains équiaxes ( $g_s \leq g_s^c$ ) .....	147
	Écoulement en milieu poreux.....	149
VI.2.d	Conservation de l'énergie.....	149
VI.2.e	Conservation de la masse d'un constituant $i$ .....	149
VI.2.f	Conservation de la quantité de grains .....	150
<b>VI.3</b>	<b>Résultats et discussion.....</b>	<b>150</b>
VI.3.a	Introduction .....	150
VI.3.b	Comportement hydrodynamique et thermique.....	151
VI.3.c	Macroségrégation.....	152
<b>VI.4</b>	<b>Conclusion .....</b>	<b>155</b>
<b>VI.5</b>	<b>Bibliographie .....</b>	<b>156</b>
<b>VII</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>157</b>
<b>Annexes</b>	<b>.....</b>	<b>163</b>
<b>A</b>	<b>Propriétés thermophysiques de l'alliage Zircaloy-4</b>	<b>165</b>

<b>B</b>	<b>Validation du modèle : évolution du profil du puits liquide au cours des refusions VAR expérimentales d'alliages de zirconium</b>	<b>167</b>
<b>B.1</b>	<b>Présentation des simulations</b>	<b>167</b>
B.1.a	Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4	169
B.1.b	Refusion expérimentale de l'alliage M5 <sup>®</sup>	170
<b>B.2</b>	<b>Résultats et discussion</b>	<b>172</b>
B.2.a	Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4	172
B.2.b	Refusion expérimentale de l'alliage M5 <sup>®</sup>	175
<b>B.3</b>	<b>Conclusion</b>	<b>179</b>
<b>B.4</b>	<b>Bibliographie</b>	<b>180</b>
<b>C</b>	<b>Simulation de la refusion VAR d'un acier faiblement allié - étude de la macroségrégation</b>	<b>181</b>
<b>C.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>181</b>
<b>C.2</b>	<b>Présentation des refusions</b>	<b>181</b>
<b>C.3</b>	<b>Microségrégation et volatilisation du Mn</b>	<b>182</b>
C.3.a	Microségrégation	182
C.3.b	Volatilisation du manganèse	184
	Prise en compte de la volatilisation du manganèse dans le modèle	185
<b>C.4</b>	<b>Résultats et discussion</b>	<b>186</b>
C.4.a	Influence de la diffusion restreinte	186
C.4.b	Influence de la convection naturelle d'origine solutale	190
C.4.c	Influence de la volatilisation du manganèse	195
C.4.d	Modification des paramètres opératoires afin de réduire la perte de Mn due à la volatilisation	201
<b>C.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>205</b>
<b>C.6</b>	<b>Bibliographie</b>	<b>205</b>



# Nomenclature

## Caractères latins

	<b>Définition</b>	<b>Unité</b>
$A_i$	Surface spécifique de l'interface solide/liquide	$m^2$
$c_1$	Constante du modèle $k-\varepsilon$	
$c_2$	Constante du modèle $k-\varepsilon$	
$c_3$	Constante du modèle $k-\varepsilon$	
$c_\mu$	Constante du modèle $k-\varepsilon$	
$c_{\mu l}$	Constante du modèle de Prandtl-Kolmogorov	
$c_D$	Constante de dissipation du modèle de Prandtl-Kolmogorov	
$c_p$	Chaleur spécifique massique	$J.kg^{-1}.K^{-1}$
$D$	Coefficient de diffusion	$m^2.s^{-1}$
$d$	Diamètre d'un pore (calcul de $Re_p$ )	$m$
$d_0$	Diamètre initial des germes	$m$
$d_g$	Diamètre d'un grain	$m$
$f$	Coefficient d'activité chimique	
$F$	Coefficient de Forchheimer	
<b>F</b>	Force volumique	$kg.m^{-2}.s^{-2}$
<b>F<sub>el</sub></b>	Force volumique électromagnétique	$kg.m^{-2}.s^{-2}$
$g$	Fraction massique	
$g_s^c$	Fraction solide de blocage des grains	
$g_s^{contact}$	Fraction massique solide lors du contact entre les grains (modèle de microségrégation)	
<b>g</b>	Pesanteur	$m.s^{-2}$
$G_k^T$	Terme de création de $k$ dû aux gradients thermiques	$W.m^{-3}$
$G_k^S$	Terme de création de $k$ dû aux gradients de titre massique	$W.m^{-3}$
$h$	Enthalpie massique (ou hauteur)	$J.kg^{-1}$ (ou $m$ )
$h_{liq}$	Enthalpie massique à la température de liquidus	$J.kg^{-1}$
$h_{liq0}$	Enthalpie massique au début de solidification quasi-eutectique	$J.kg^{-1}$
$h_{sol}$	Enthalpie massique à la température de solidus	$J.kg^{-1}$
$h_{sol0}$	Enthalpie massique à la température de fin de solidification	$J.kg^{-1}$
$H$	Hauteur totale du lingot	$m$
<b>I</b>	Tenseur unité	
$j_v$	Densité de flux d'évaporation	$kg.m^{-2}.s^{-1}$
$J$	Flux de soluté à l'interface solide/liquide par unité de volume	$kg.m^{-3}.s^{-1}$
$k$	Énergie cinétique turbulente	$J.kg^{-1}$
$k_p$	Coefficient de partage	
$K$	Perméabilité de la zone pâteuse	$m^2$
$l$	Echelle de Kolmogorov	$m$
$L_f$	Chaleur latente de fusion	$J.kg^{-1}$

	<b>Définition</b>	<b>Unité</b>
$m$	Incertitude de mesure concernant les analyses chimiques	%m
$m_L$	Pente du liquidus	K.%m <sup>-1</sup>
$M$	Flux de quantité de mouvement à l'interface solide/liquide par unité de volume	kg.m <sup>-2</sup> .s <sup>-2</sup>
$N$	Densité de grains	m <sup>-3</sup>
$\dot{N}$	Terme de création de grains	m <sup>-3</sup> .s <sup>-1</sup>
$\mathbf{n}_k$	Vecteur normal à l'interface, dirigé vers l'extérieur de la phase $k$	
$p$	Pression	Pa
$p^\bullet$	Pression effective (= $p+2/3\rho k$ )	Pa
$P_k$	Terme de création de $k$ dû aux gradients de vitesses moyennes	W.m <sup>-3</sup>
$Pr$	Nombre de Prandtl	
$Q$	Flux de chaleur à l'interface solide/liquide par unité de volume	W.m <sup>-3</sup>
$r$	Rayon	m
$r, \theta, z$	Système de coordonnées cylindriques	m
$R$	Rayon total du lingot	m
$Re$	Nombre de Reynolds	
$Re_p$	Nombre de Reynolds en milieu poreux	
$\mathbf{s}$	Tenseur des taux de déformation	s <sup>-1</sup>
$S$	Terme source	
$Sc$	Nombre de Schmidt	
$S_v$	Densité d'aire interfaciale	m <sup>-1</sup>
$t$	Temps	s
$T$	Température	K
$T_m$	Température de fusion d'un corps pur	K
$T_{sol0}$	Température de fin de solidification	K
$\mathbf{u}$	Vitesse	m.s <sup>-1</sup>
$\mathbf{u}_i$	Vitesse de déplacement de l'interface solide/liquide	m.s <sup>-1</sup>
$v_{max}$	Vitesse maximale dans le plan ( $r-z$ )	m.s <sup>-1</sup>
$V$	Volume occupé par une phase dans le Volume Élémentaire Représentatif (VER)	m <sup>3</sup>
$V_0$	Volume du Volume Élémentaire Représentatif (VER)	m <sup>3</sup>

### Caractères grecs

	<b>Définition</b>	<b>Unité</b>
$\alpha$	Diffusivité thermique	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>
$\beta_S$	Coefficient d'expansion solutale volumique	%m <sup>-1</sup>
$\beta_T$	Coefficient d'expansion thermique volumique	K <sup>-1</sup>
$\gamma$	Fonction de phase	
$\Gamma$	Diffusivité d'une grandeur extensive	
$\Gamma_k$	Flux de phase $k$ à travers l'interface solide/liquide par unité de volume	kg.m <sup>-3</sup> .s <sup>-1</sup>
$\delta$	Longueur de diffusion	m
$\varepsilon$	Vitesse de dissipation de l'énergie cinétique turbulente	W.kg <sup>-1</sup>
$\kappa$	Constante de von Karman	
$\lambda$	Conductivité thermique	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
$\mu$	Viscosité dynamique	Pa.s <sup>-1</sup>

	<b>Définition</b>	<b>Unité</b>
$\nu$	Viscosité cinématique	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
$\rho$	Masse volumique	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
$\rho^b$	Masse volumique dans le terme de pesanteur de l'équation de Navier-Stokes (Hypothèse de Boussinesq)	$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$
$\sigma_k$	Constante du modèle $k$ - $\varepsilon$	
$\sigma_\varepsilon$	Constante du modèle $k$ - $\varepsilon$	
$\tau$	Tortuosité	
$\boldsymbol{\tau}$	Tenseur des contraintes visqueuses	$\text{Pa} \cdot \text{s}^{-2}$
$\phi$	Porosité	
$\varphi_V$	Densité de flux d'évaporation	$\text{kg} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
$\Psi$	Extensité	
$\psi$	Extensité par unité de masse	
$\omega$	teneur massique en élément	%m

## Symboles

	<b>Définition</b>
$\langle \rangle$	Moyenne volumique
$\langle \rangle^l$	Moyenne volumique intrinsèque pour la phase liquide
$\langle \rangle^s$	Moyenne volumique intrinsèque pour la phase solide
"	Déviations par rapport à la moyenne volumique intrinsèque
—	Moyenne temporelle
'	Fluctuation par rapport à la moyenne temporelle

## Indices

	<b>Définition</b>
0	Nominal
$l$	Phase liquide
$m$	Mélange
$p$	Échelle macroscopique
$s$	Phase solide
$t$	Turbulent
$ref$	Référence

## Exposants

	<b>Définition</b>
0	Instant initial d'un micro pas de temps (modèle de microségrégation)
*	Interface solide/liquide
$gr$	Étape de croissance
$i$	Constituant $i$
$j$	Diffusion
$tr$	Étape de transport
$\Gamma$	Changement de phase



# I Introduction générale

## I.1 Les alliages de zirconium

### I.1.a Généralités

Le zirconium (Zr – numéro atomique 40) appartient à la colonne IVB de la classification périodique de Mendeleïev, comme le titane (Ti – numéro atomique 22) et le hafnium (Hf – numéro atomique 72).

A pression atmosphérique et à température ambiante, le zirconium pur est stable en phase  $\alpha$ , de structure cristallographique hexagonale compacte de paramètres de maille  $a = 0,323$  nm et  $c = 0,515$  nm à 20 °C. Cette phase subit une transformation allotropique à  $T_{\alpha\beta} = 865$  °C, température au-delà de laquelle le zirconium présente une structure cubique centrée de paramètre de maille  $a = 0,361$  nm, la phase  $\beta$ . Cette phase est stable jusqu'à la température de fusion  $T_m = 1855$  °C. Une troisième phase, la phase  $\omega$ , de structure hexagonale ( $a = 0,504$  nm et  $c = 0,311$  nm), est stable à température ambiante pour une pression supérieure à 5 GPa.

Le zirconium est l'élément de base de plusieurs alliages utilisés pour différents composants dans les réacteurs nucléaires. Ils ont été sélectionnés comme matériau de structure dans les assemblages de combustible nucléaire, en particulier pour le gainage, grâce à leur faible section de capture des neutrons, leur excellente résistance à la corrosion et leur tenue mécanique à haute température.

En dehors de ces applications nucléaires, le zirconium est notamment utilisé comme élément d'addition dans les alliages à base de Al, Cu, Mg, Ni, Fe, Ti et Nb et des composés métalliques à base de zirconium servent également dans le stockage de l'hydrogène.

Pour son application nucléaire, les principaux éléments d'alliage ajoutés en quantité notable au zirconium sont l'étain, le niobium, le fer, le chrome, le nickel, le vanadium et l'oxygène. Cependant, les alliages de zirconium pour applications nucléaires sont faiblement chargés en éléments d'addition (< 3% en masse) [1,2].

Les alliages de zirconium sont généralement classés suivant quatre grandes familles (le lecteur pourra notamment se reporter à [3] pour une description plus détaillée).

Les Zircaloy sont historiquement les premiers alliages de zirconium à avoir été utilisés dans les assemblages de combustibles nucléaires dans les années 1940-50 aux Etats-Unis. Le Zircaloy-4 haut étain est la première variante à l'échelle industrielle de cette famille. Afin d'améliorer la tenue à la corrosion uniforme, la teneur en Sn a ensuite été diminuée pour aboutir au Zircaloy-4 bas étain.

Les alliages binaires Zr-1Nb, tels que le M5<sup>®</sup> développé par AREVA NP [4] et l'alliage russe E110 [5,6], constituent la deuxième famille. Grâce, notamment, à leurs résistances à la corrosion et à l'hydruration supérieures, ces alliages sont une alternative intéressante aux Zircaloy pour les différents types de Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) (Pressurized Water Reactor (PWR) en Anglais). L'alliage ZrNb2.5, plus chargé en Nb que les deux alliages cités précédemment, a été principalement développé pour les réacteurs à eau lourde CANDU (CANada Deuterium Uranium).

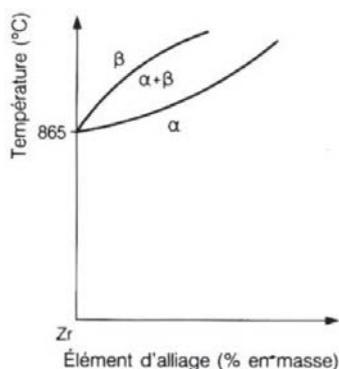
La troisième famille est formée par les alliages dits quaternaires ZrSnFeNb, comme les alliages E635 (Russie) et Zirlo<sup>™</sup> (Etats-Unis) [7]. Par rapport aux alliages Zr-Nb, ils ont été développés avec comme objectif de renforcer la matrice par l'ajout d'étain pour accroître les caractéristiques mécaniques. Cependant, la teneur en Sn doit rester relativement faible pour ne pas détériorer significativement la résistance à la corrosion. Plusieurs alliages appartenant à cette famille sont actuellement en cours de développement au Japon, en Russie et dans les pays occidentaux.

Enfin, la quatrième famille rassemble les alliages ZrSnFeV. Ils sont moins étudiés que les trois familles précédentes.

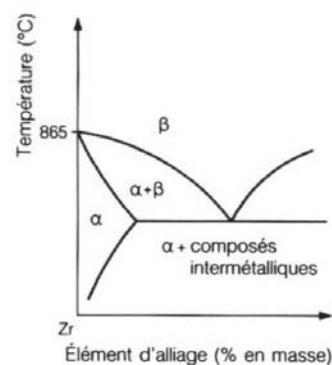
Les éléments d'addition sont généralement classés en deux catégories en fonction de leur effet sur la température de transformation allotropique  $\alpha \leftrightarrow \beta$  :

- les éléments dits  $\alpha$ -gènes stabilisent la phase  $\alpha$  en augmentant la température de transformation (figure I.1). Sn et les éléments interstitiels tels que O, C et N sont des éléments  $\alpha$ -gènes.
- à l'inverse, les éléments dits  $\beta$ -gènes diminuent la température de transformation allotropique (stabilisation de la phase  $\beta$ ) et sont quasiment insolubles dans la phase  $\alpha$ .

La majorité des éléments  $\beta$ -gènes ( $X = \text{Al}, \text{Fe}, \text{H}, \text{Mn}, \text{Ni}, \text{Si}$ ) forme avec Zr une réaction eutectoïde de décomposition de la phase  $\beta$  (figure I.2) :  $\beta \leftrightarrow \alpha + \text{Zr}_m\text{X}_n$ , où  $\text{Zr}_m\text{X}_n$  est un composé intermétallique tel que  $\text{Zr}_3\text{Fe}$  pour le système Zr-Fe. En revanche, dans le système binaire Zr-Nb, la solution solide  $\beta$ -Zr,Nb présente une lacune de miscibilité et une réaction monotectoïde :  $\beta\text{-Zr} \leftrightarrow \alpha\text{-Zr} + \beta\text{-Nb}$ .



**FIGURE I.1** – Schéma du diagramme d'équilibre de phases du système Zr-X où X est un élément d'alliage  $\alpha$ -gène [8].



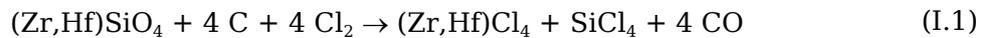
**FIGURE I.2** – Schéma du diagramme d'équilibre de phases du système Zr-X avec une réaction eutectoïde où X est un élément d'alliage  $\beta$ -gène [8].

Les propriétés des produits en alliages de zirconium ne dépendent pas uniquement de la composition chimique de l'alliage, et résultent de leur microstructure métallurgique obtenue à la suite des différents traitements thermomécaniques mis en œuvre au cours de leur élaboration.

### I.1.b Élaboration et mise en forme

La filière d'élaboration du zirconium est constituée de trois étapes principales [9].

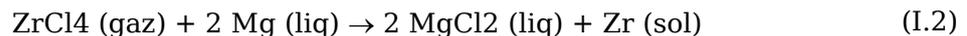
- L'éponge de zirconium est obtenue par réduction du minerai, en opérant tout d'abord une chloration en présence de carbone (ou carbochloration) du zircon (silicate double de Zr et de Hf) suivant la réaction suivante :



Cette chloration est réalisée en lit fluidisé à une température d'environ 1200 °C : le lit fluide est constitué par le mélange zircon-carbone en poudre, le gaz fluidisant étant le chlore lui-même.

Les tétrachlorures de zirconium et de hafnium sont récupérés par condensation. La séparation entre Zr et Hf est très difficile. Cependant, afin d'obtenir du zirconium de qualité nucléaire, il est nécessaire de passer d'une teneur en Hf de 2,5 %m à moins de 50 ppm. Différents procédés sont employés pour réaliser cette séparation. CEZUS a mis au point un procédé continu de séparation de Zr-Hf par distillation extractive des chlorures  $\text{ZrCl}_4$  et  $\text{HfCl}_4$  en bain de sels fondus  $\text{KCl-AlCl}_3$ , à une température de 350 °C et à pression atmosphérique.

Le tétrachlorure de zirconium étant récupéré, le procédé de réduction suivant, le procédé Kroll, consiste à faire réagir ce tétrachlorure en phase gazeuse avec du magnésium liquide selon la réaction :



La séparation incomplète de Zr et Mg nécessite une étape complémentaire de distillation sous vide qui conduit à une éponge poreuse de Zr.

- L'élaboration de lingots de zirconium est réalisée par le procédé de refusion à l'arc sous vide ou procédé VAR (Vacuum Arc Remelting). Un lot composé d'éponge de zirconium, d'éléments d'alliage (pur ou sous forme d'alliages-mères) et de métal recyclé est compacté sous forme de tiers de cylindre denses appelés « compacts ». Ces compacts sont ensuite assemblés en une seule électrode par soudage par faisceau d'électrons ou par plasma. Cette électrode primaire est refondue une première fois pour obtenir un lingot de première fusion. Deux lingots de première fusion sont alors assemblés puis refondus une ou deux fois suivant le degré de pureté souhaité.
- Pour tous les produits finis (ébauches de tubes, cofilés, tôles et barres), la séquence de transformation est similaire. Les lingots sont d'abord forgés à chaud dans le domaine  $\alpha + \beta$  ou  $\beta$ . On pratique ensuite un traitement d'homogénéisation suivi d'une trempe à l'eau pour améliorer la structure et la résistance à la corrosion. Enfin, on effectue des déformations à froid avec des recuits intermédiaires et finaux sous vide dans le domaine  $\alpha$ .

## I.2 Le procédé VAR

### I.2.a Description générale

Le procédé VAR est à l'heure actuelle largement utilisé pour l'élaboration d'alliages métalliques à haute performance : les aciers spéciaux, les superalliages base nickel et les alliages de titane et de zirconium sont couramment élaborés par ce procédé.

Le principe du procédé VAR, illustré par la figure I.3, consiste à refondre sous vide poussé ( $10^{-3}$  à  $10^{-2}$  mbar) une électrode consommable à la nuance afin d'obtenir un lingot secondaire de qualité accrue. Pendant la refusion, un arc électrique est maintenu entre la base de l'électrode (cathode) et le sommet du lingot afin d'assurer la fusion de l'électrode. Les gouttes de métal traversent le plasma d'arc et forment progressivement le lingot qui se solidifie au contact d'une lingotière en cuivre refroidie par eau.

Le lingot est composé du puits liquide, d'une zone pâteuse où se déroulent les phénomènes de solidification et d'une partie solide. Au cours des refusions de zirconium, pour lesquelles la longueur de l'arc électrique est de plusieurs centimètres, l'arc doit être confiné grâce à un champ électromagnétique axial créé par un inducteur externe situé autour de la lingotière. Ce champ est également utilisé pour générer un brassage électromagnétique qui confère au métal liquide un mouvement de rotation et peut améliorer son homogénéité chimique. En inversant périodiquement le sens du courant dans l'inducteur, le brassage peut être alterné.

La production de lingots d'alliages de zirconium de qualité nucléaire inclut conventionnellement trois refusions VAR successives. A chaque refusion, le diamètre du lingot augmente ; la masse du lingot final est généralement de plusieurs tonnes.

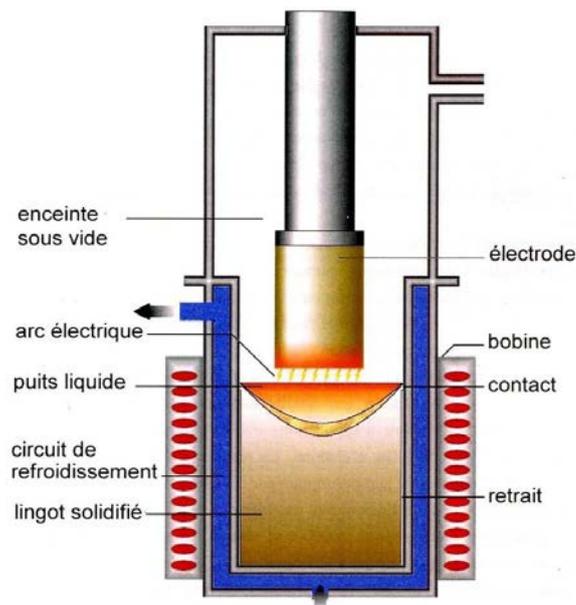


FIGURE I.3 – Schéma du procédé VAR

### I.2.b Modélisation du procédé

Du fait de leur utilisation dans le cœur des réacteurs nucléaires comme matériaux des tubes de gainage de combustible notamment, les alliages de zirconium subissent des sollicitations thermiques, mécaniques et chimiques importantes. Cette application rend donc indispensable l'élaboration de lingots d'excellente qualité.

Par ailleurs, le coût élevé de mise en œuvre du procédé et du matériau lui-même rend difficile la réalisation de refusions tests. Ainsi, la modélisation numérique est un outil essentiel pour pouvoir maîtriser les phénomènes physiques mis en jeu au cours de l'élaboration et, à terme, améliorer la maîtrise du procédé.

La première version d'un modèle numérique du procédé VAR, appelé SOLAR, a été développée il y a plus de quinze ans à l'École des Mines de Nancy [10] et a été appliquée initialement à la simulation de refusions d'alliages de titane et de zirconium.

Il est basé sur la résolution de neuf équations différentielles représentant les différents phénomènes physiques mis en jeu. Il décrit ainsi les forces électromagnétiques, l'écoulement turbulent du fluide, le transfert de chaleur et de solutés. Les différentes équations de transfert sont résolues en régime transitoire par la méthode des volumes finis. La géométrie est axisymétrique, ce qui réduit le problème à deux coordonnées spatiales (radiale et axiale). Le modèle est capable de simuler une double ou triple refusion en utilisant le lingot secondaire hétérogène comme électrode pour la refusion suivante.

Depuis sa création, le modèle a été également utilisé pour simuler les refusions d'aciers et de superalliages. De plus, il a été constamment amélioré ; citons les travaux de P. Chappelle [11], T. Quatravaux [12], H. El Mir [13], A. Soller [14] et G. Ghazal [15].

Cependant, le couplage faible entre les équations de transport de chaleur et de soluté est une limite majeure du modèle pour décrire finement la solidification du lingot. De Felice et al. [16] ont réalisé un premier pas en direction du couplage fort de ces équations en modifiant dans le modèle l'équation de transport de chaleur selon la formulation enthalpique.

D'autres modèles du procédé VAR ont été développés durant les quinze dernières années.

Le modèle mis au point par Yang et al. [17] n'est qu'une approche très simplifiée du procédé car seul le transfert de chaleur est considéré.

Cependant, d'autres modèles sont des alternatives intéressantes au modèle SOLAR.

Le code BAR (Basic Axisymmetric Remelting) a été développé aux Etats-Unis par Speciality Metal Processing Corporation, regroupant notamment SANDIA National Laboratories, ALLVAC et Carpenter Technology. En comparaison avec SOLAR, la turbulence de l'écoulement n'est pas modélisée explicitement mais prise en compte en multipliant la viscosité cinématique par un coefficient constant.

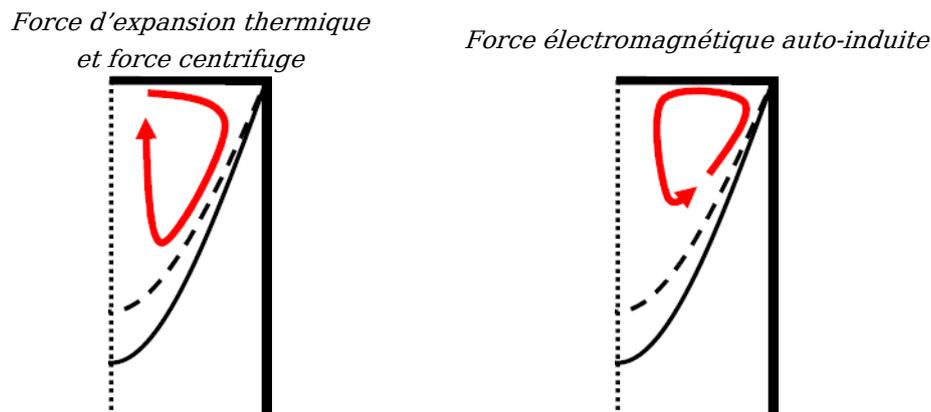
Un second modèle, associé à un micromodèle de solidification basé sur les automates cellulaires, a été développé au London Imperial College dans le but de déterminer la taille et l'orientation des grains lors de la solidification d'un lingot VAR. Ce modèle a en particulier été utilisé pour étudier la formation des Tree-rings pour le superalliage Inconel 718 [18,19]. En outre, il a été appliqué pour simuler une refusion d'alliage de titane Ti-6-4 [20]. Plus récemment, ce modèle a été implémenté dans une modélisation macroscopique du procédé VAR réalisée grâce au logiciel PHYSICA développé à University of Greenwich et capable de traiter des calculs en 3 dimensions [21,22].

L'hydrodynamique du puits liquide a déjà été analysée numériquement dans de nombreuses études.

Le modèle SOLAR a été utilisé pour déterminer l'influence d'un mode de brassage alterné lors de la refusion d'alliages de titane [23,24] et d'aciers [25]. Pour les superalliages base nickel, Schevchenko et Ward [26] ont utilisé ANSYS CFX 5.6 couplé à OPERA 3D pour étudier l'effet d'une distribution d'arc électrique non symétrique sur l'écoulement 3D dans le puits liquide. Par ailleurs, Chapelle et al. [27] ont déterminé l'effet du brassage électromagnétique sur la dynamique de la surface libre du puits liquide durant une refusion d'alliage de zirconium.

D'après ces études, il est bien établi que les principales sources de mouvement dans le puits liquide d'un lingot VAR sont (voir figure I.4) :

- la convection naturelle d'origine thermique qui favorise un écoulement tournant dans le sens des aiguilles d'une montre,
- la force électromagnétique résultant de l'interaction entre le courant de fusion et le champ magnétique auto-induit qui donne naissance à un écoulement tournant dans le sens trigonométrique,
- et la force centrifuge qui résulte du mouvement angulaire qui est causé par l'interaction entre le courant de fusion et le champ magnétique créé par les inducteurs externes ; comme la convection thermique, la force centrifuge génère un écoulement tournant dans le sens des aiguilles d'une montre.



**FIGURE I.4** – Schéma de l'effet des forces d'expansion thermique, centrifuge et électromagnétique auto-induite sur le sens de l'écoulement dans le puits liquide.

## I.3 Les phénomènes responsables de la macroségrégation

### I.3.a La microségrégation

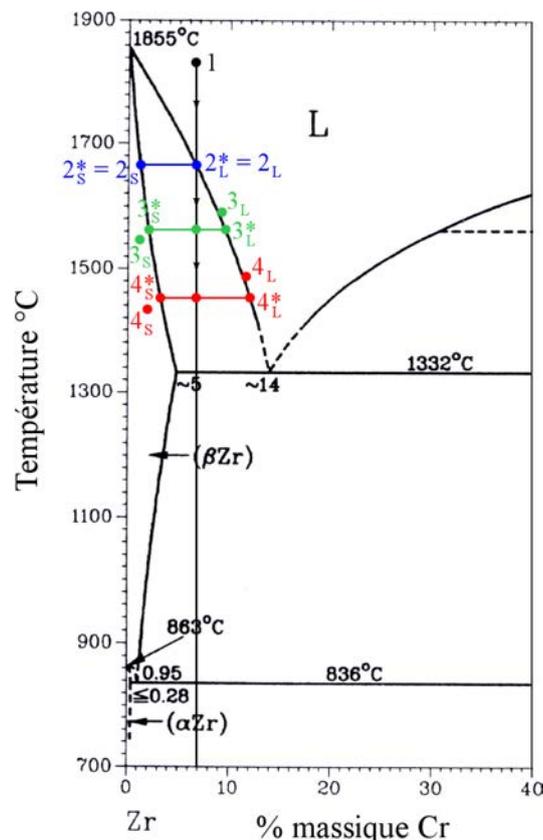
Lors de la solidification d'un alliage, la phase liquide se transforme en une ou plusieurs phases solides. La solubilité des éléments d'alliage n'est pas la même dans les phases liquide et solide. Dans le cas des alliages de zirconium et à l'exception de l'oxygène, la te-

neur en éléments d'alliage de la phase solide primaire est plus faible que celle du liquide. Cela est illustré dans la figure I.5 qui représente la partie riche en Zr du diagramme de phases du système binaire Zr-Cr. Ce diagramme décrit la composition des phases à l'équilibre thermodynamique (indiquée par le symbole \*) en fonction de la température.

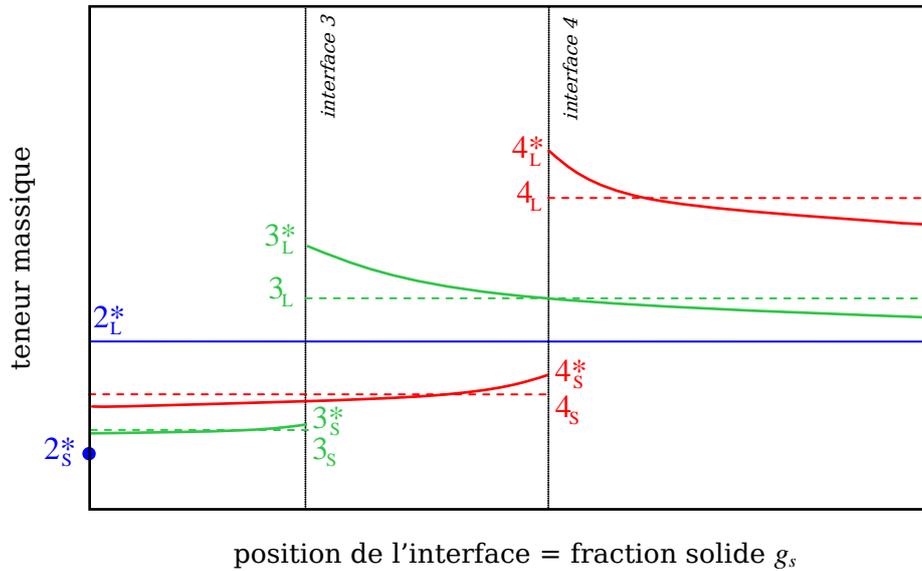
Lorsque l'alliage à la composition  $\omega_1$  commence à se solidifier, la composition du premier solide à se former est  $\omega_{2_s}^*$ . Du fait de la faible teneur en Cr de la phase solide formée, l'excès de soluté est rejeté dans le liquide. Nous pouvons supposer que, pendant la solidification, l'interface solide/liquide est à l'équilibre thermodynamique [28] et, par conséquent, déterminer la composition à l'interface grâce aux diagrammes de phases.

D'après le diagramme, nous pouvons constater que l'enrichissement graduel du liquide à mesure que la température diminue cause l'augmentation de la teneur massique dans les couches de solide qui se forment successivement (voir figure I.6 pour un modèle 1D simplifié). Par conséquent, les teneurs moyennes des phases liquide et solide sont plus faibles que les teneurs d'équilibre à l'interface. De plus, un gradient thermique, bien qu'il soit faible, doit exister à travers le système où se déroule le changement de phase afin de diriger le flux de chaleur nécessaire au changement de phase. Ces deux effets sont illustrés sur la figure I.5 par les points sans astérisque.

Pendant la solidification, la diffusion dans chaque phase tend à homogénéiser la composition, réduisant dans une certaine mesure les gradients de teneur massique (figure I.6).



**FIGURE I.5** – Solidification dans le diagramme d'équilibre de phases du système Zr-Cr (diagramme provenant de la réf. [29]).



**FIGURE I.6** – Évolution de la teneur massique à l'échelle des bras secondaires des dendrites

Le processus de rejet de solutés décrit précédemment a lieu à l'échelle de la plus petite structure du solide en croissance. Dans un alliage, le solide cristallin croît généralement sous la forme de grains dendritiques, composés de deux niveaux de ramification de dendrites. Ainsi, les structures représentatives pour le processus de partage de soluté sont les espacements interdendritiques secondaires.

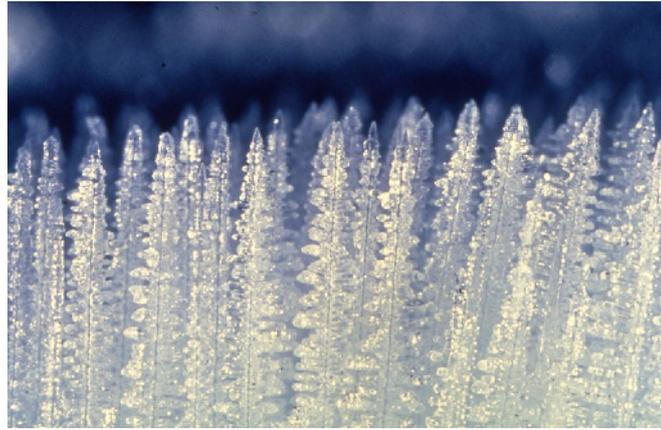
### I.3.b Mouvement relatif des phases solide et liquide

À cause du rejet de soluté dans le liquide à l'échelle des grains, un mouvement macroscopiquement significatif de la phase liquide riche en soluté relativement aux grains appauvris en soluté cause un transport macroscopique du soluté et, par conséquent, une macro-ségrégation dans le matériau solidifié.

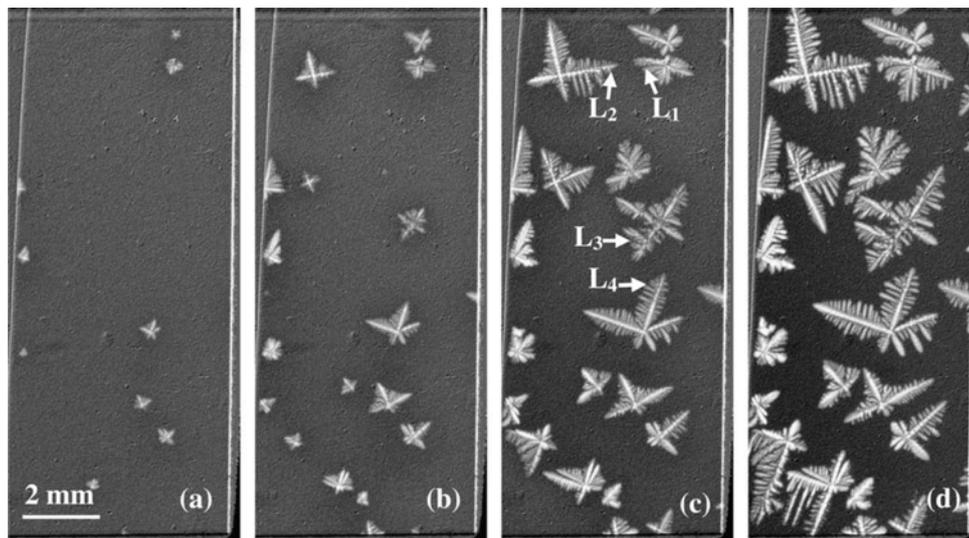
Au cours de la solidification d'un alliage soumis à des gradients de température modérés, on peut s'attendre à ce que la zone de solidification soit relativement grande et que des grains solides coexistent avec le liquide environnant : la zone pâteuse.

Si dans cette zone, les grains croissent ensemble, ils forment une matrice poreuse (figure I.7).

Si les grains n'ont pas coalescé les uns avec les autres, ils peuvent bouger librement sous l'influence de l'écoulement de la phase liquide. Le comportement de ce type de zone pâteuse est similaire à celui d'une suspension de grains. Ces grains peuvent se former à cause de la fragmentation de bras de dendrites provenant de la matrice poreuse ou par germination hétérogène sur des particules d'impuretés dans le liquide en surfusion.



**FIGURE I.7** – Photographie de la zone pâteuse colonnaire lors de la solidification d'une solution de chlorure d'ammonium  $\text{NH}_4\text{Cl}$  (d'après [30]).



**FIGURE I.8** – Radiographies par rayonnement synchrotron X montrant l'évolution en fonction du temps de la croissance de grains équiaxes lors de la solidification de l'alliage Al-10 %m Cu (d'après [31]).

Avec ces deux types de structures possibles, la macroségrégation qui est due au mouvement relatif des phases liquide et solide peut être causée par les phénomènes suivants.

- La **convection forcée** qui peut être due en fonction du procédé au remplissage de la lingotière, au brassage mécanique ou électromagnétique, etc. Pour le procédé VAR, les sources de convection forcée sont le brassage électromagnétique extérieur et le brassage magnétique auto-induit.

- La **convection naturelle** : les gradients de température et de composition dans le liquide donnent naissance à des variations de densité résultant en des forces de volume thermique et solutale qui dirigent la convection naturelle.
- Le **mouvement de grains équiaxes** dans la zone pâteuse bougeant sous l'influence des différences de masse volumique entre le liquide et le solide (flottation ou sédimentation) et des forces de trainée causées par l'écoulement du liquide.
- La **migration du liquide due au retrait**. La différence de densité entre le liquide et le solide peut également engendrer un écoulement. Le solide est généralement plus dense que le liquide et ainsi, le changement de volume lors de la solidification peut aspirer du liquide pour combler le retrait. Ce phénomène est dominant en fin de solidification.
- La **déformation du squelette solide** provoque le mouvement du solide et l'expulsion ou l'aspiration de liquide riche en soluté. Cela peut être causé par des contraintes thermiques ou des forces extérieures comme la compression résultant des rouleaux au cours de la coulée continue.

## I.4 La macrostructure et la macroségrégation dans un lingot VAR

À cause du prix élevé des alliages de titane et de zirconium, le rendement du procédé est important, ce qui implique que la qualité de la peau du lingot est capitale. Les températures de fusion de ces alliages sont élevées et une bonne qualité de la peau du lingot nécessite un apport important de chaleur par le procédé et, par conséquent, une grande vitesse de fusion qui conduit à des puits liquides volumineux.

À diamètre et poids équivalents, les vitesses de fusion des lingots en aciers et en superalliages sont relativement faibles et le volume du puits liquide n'excède pas 10% du volume total [32].

Après avoir rappelé les caractéristiques générales de la structure des lingots de coulée dans un premier paragraphe, cette partie constitue une synthèse bibliographique sur la structure des lingots refondus par le procédé VAR en distinguant les alliages à bas point de fusion (aciers et superalliages) et les alliages de métaux réactifs (titane et zirconium).

### I.4.a Macrostructure générale des lingots de coulée

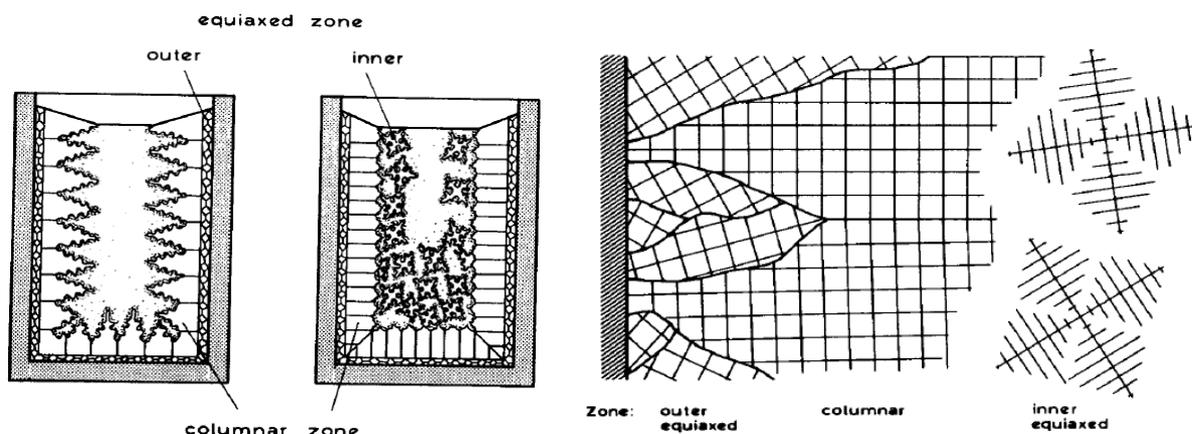
En examinant à l'œil une coupe métallographique de métal brut de coulée, on observe les grains du métal qui définissent la macrostructure du lingot. Lorsqu'un alliage est coulé dans un moule métallique, trois zones de solidification peuvent être généralement distinguées (figure I.9) [33].

À l'interface creuset/métal, la vitesse de refroidissement est maximale car la température de la lingotière est relativement faible. Par conséquent, un grand nombre de petits

grains ayant des orientations cristallographiques aléatoires apparaissent et forment une zone équiaxe appelée zone de peau.

Ces grains deviennent rapidement dendritiques en développant des bras qui croissent suivant des directions cristallographiques préférentielles – directions  $\langle 100 \rangle$  pour les cristallins cubiques, comme le zirconium à haute température. Les grains de la zone de peau qui possèdent une de ces directions parallèle au flux thermique ont une vitesse de croissance supérieure aux autres. Ils dominent donc la morphologie de l'interface solide/liquide, ce qui conduit à la formation de la zone de solidification colonnaire.

Enfin, la troisième zone de solidification visible est la zone équiaxe qui résulte principalement de la croissance de fragments de bras de dendrites dans le liquide en surfusion.



**FIGURE I.9** – Schéma de la macrostructure d'un lingot de coulée en cours de solidification (d'après [28])

L'apparence dendritique de chaque cristal peut être mise en évidence par une attaque métallographique, soit qu'elle révèle directement des hétérogénéités chimiques liées à la croissance dendritique, soit qu'une ou plusieurs autres phases aient précipité dans les espaces interdendritiques.

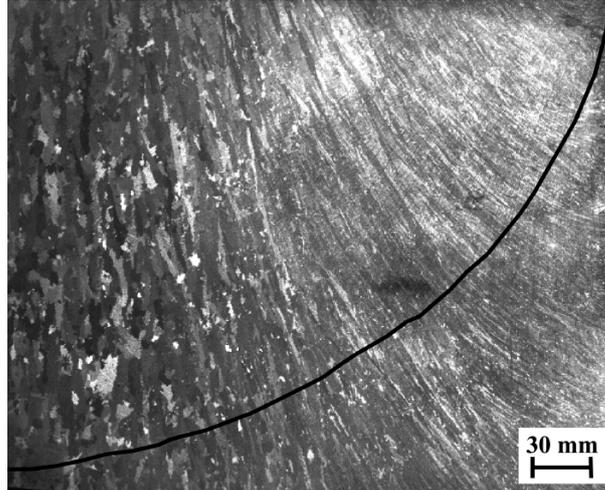
Cependant, pour les alliages de zirconium, la transformation de phase  $\beta \rightarrow \alpha$  subie par la microstructure du lingot au cours de son refroidissement ne permet pas d'observer la structure dendritique par une simple attaque métallographique (cf. chapitre III).

### Superalliages et aciers

Concernant les superalliages, les études de la littérature se concentrent principalement sur les différents défauts de solidification de l'alliage 718 : les « tree-rings » [18], les « white-spots » [14,34] et les « freckles » [35].

Dans leur étude sur la formation des « tree-rings », Xu et al. [18] décrivent la structure globale d'un lingot en Inconel 718 refondu par le procédé VAR à environ  $4 \text{ kg} \cdot \text{min}^{-1}$ . Son diamètre est de 510 mm et sa hauteur de 2 m environ. Aucun brassage électromagnétique externe n'est appliqué.

Ce lingot présente une zone colonnaire en périphérie et une zone de larges grains équiaxes au centre (figure I.10). La Transition Colonnaire Equiaxe (TCE) est située à environ 50 à 100mm de l'axe du lingot.



**FIGURE I.10** – Macrographie de la section longitudinale d'un lingot en Inconel 718 fondu par le procédé VAR (l'axe du lingot est à gauche). Le trait noir correspond à un exemple de la forme du puits liquide déterminé par les « tree-rings », qui correspondent à des cordons de petits grains équiaxes interrompant la continuité de la structure principalement colonnaire

Par analyse EBSD (Electron-Backscatter Diffraction), Xu et al. ont montré que la direction de croissance des grains colonnaires est parallèle au flux thermique et qu'ils ont développé une forte texture  $\langle 100 \rangle$ .

Parallèlement à sa caractérisation expérimentale, ce lingot a été utilisé pour valider le modèle multi-échelle du procédé VAR développé au *London Imperial College* [19].

Afin de valider les développements apportés à SOLAR lors de sa thèse, Quatravaux [12] a comparé les profils de puits liquides finaux expérimentaux et obtenus par le modèle, pour plusieurs lingots en acier refondus par le procédé VAR avec diverses conditions opératoires.

Sur les macrographies réalisées dans ce but, on peut observer que sans brassage électromagnétique externe, la macrostructure est très majoritairement colonnaire. L'application d'un brassage électromagnétique entraîne l'apparition d'une zone équiaxe au centre du lingot.

### **Alliages de titane et de zirconium**

La macrostructure des lingots en alliage de titane (Ti-6Al-4V et Ti-6Al-6V-2Sn) présente trois zones de solidification distinctes : une zone de peau au bord du lingot, une zone co-

lonnaire et une zone équiaxe au centre [20,36,37]. Dans chacune des trois études citées, les lingots ont été refondus avec un brassage électromagnétique alterné et à différentes vitesses de fusion.

Glavicic et al. [36] ont identifié les grains visibles sur la macrographie dans les zones colonnaire et équiaxe comme étant des grains  $\text{ex-}\beta$ , à l'intérieur desquels la phase  $\alpha$  a précipité lorsque la température est passée sous la température de transus  $\beta$ . Ainsi, en se basant sur la relation cristallographique de Burgers et sur les symétries des structures cubique et hexagonale, ils ont déterminé la texture des grains  $\text{ex-}\beta$  à partir de la texture de la phase  $\alpha$  mesurée par EBSD.

L'exploitation des figures de pôle obtenues par EBSD montre que les grains  $\text{ex-}\beta$  des zones colonnaires situées sur le bord et au pied du lingot ont une texture  $\langle 100 \rangle$  parallèle à la direction de croissance des grains. Cette texture était attendue car la croissance des grains ayant une direction  $\langle 100 \rangle$  parallèle au flux thermique est plus rapide pour les métaux à structure cubique comme le titane à haute température.

Les résultats pour la zone équiaxe semblent montrer que les grains  $\text{ex-}\beta$  n'ont pas d'orientation cristallographique préférentielle.

Différentes études menées au centre de recherche de CEZUS décrivent la structure de lingots en alliage de zirconium refondus par le procédé VAR à l'échelle industrielle ou à l'échelle pilote. Un brassage électromagnétique est toujours appliqué au cours des refusions.

La macrographie longitudinale des lingots montre qu'après la zone de peau, la structure de solidification est colonnaire en périphérie et au pied du lingot, et principalement équiaxe au centre. La transition entre ces zones n'est pas marquée nettement.

#### **I.4.b La macroségrégation dans les lingots VAR**

Dans la littérature, les études consacrées à la macroségrégation dans les lingots VAR ne sont pas nombreuses. Elles traitent uniquement des lingots en alliages de titane.

Hayakawa et al. [37] ont caractérisé la macroségrégation dans un lingot en Ti-6Al-6V-2Sn (Ti-6-6-2) élaboré dans un four industriel. Le sommet du lingot est enrichi en Fe, Cu et V alors que par rapport à ces trois éléments, la ségrégation en Al et Sn est inversée. De plus, la macroségrégation longitudinale au niveau de la surface latérale du lingot est relativement faible pour tous les éléments.

Yang et al. [38] ont également déterminé la macroségrégation en Fe dans plusieurs lingotins ( $h \times d = 14 \times 4,5 \text{ cm}^2$ ) en Ti-10V-2Fe-3Al (Ti-10-2-3) élaborés dans un four pilote suivant deux vitesses de fusion et avec et sans brassage électromagnétique. Ils ont ainsi pu montrer qu'une faible vitesse de fusion réduit la macroségrégation. De plus, pour une vitesse de fusion fixée, l'application d'un brassage réduit également la macroségrégation dans le lingotin.

Zagrebelnyy et al. [39] ont quant à eux étudié numériquement la macroségrégation en Fe lors de la refusion VAR de l'alliage Ti-10-2-3 à l'aide du code BAR (cf. §I.2.b), ainsi que l'effet du retournement du lingot au cours d'une triple refusion. Néanmoins, ces résultats

de simulations ne sont pas comparés à des analyses chimiques effectuées sur des lingots réels. Dans le cadre d'études confidentielles, des travaux similaires ont été effectués par l'IJL et Timet en utilisant le modèle SOLAR.

À notre connaissance, les seules études consacrées à la macroségrégation dans les lingots VAR en alliages de zirconium ont été réalisées au centre de recherche de CEZUS.

La dernière étude antérieure au début de cette thèse a été réalisée au cours de mon stage de fin d'étude d'ingénieur. Grâce à une étude bibliographique, ce travail a notamment permis de déterminer des propriétés thermophysiques des alliages de zirconium nécessaires à la modélisation de la solidification. Cette étude a également mis en évidence l'importance d'établir expérimentalement une cartographie précise de la macroségrégation d'un lingot élaboré par une seule refusion.

## I.5 Objectifs du travail de thèse et plan du mémoire

L'objectif de cette thèse est double.

Le premier est de mesurer expérimentalement et de manière précise la composition chimique de lingots en Zircaloy-4 (Zy-4 : Zr-1,3Sn-0,2Fe-0,13O-0,1Cr) et M5<sup>®</sup> (Zr-1Nb-0,14O), et d'évaluer l'influence de différentes conditions opératoires sur la macroségrégation. Dans ce but, deux essais industriels ont été réalisés sur le site de CEZUS à Ugine (Savoie, France).

Parallèlement à ces essais et à leur exploitation expérimentale, le second objectif est de d'améliorer la modélisation de la solidification et de la macroségrégation dans le code SOLAR. Le couplage fort des équations de transport de chaleur et de solutés, la modélisation de la microségrégation en tenant compte de la diffusion restreinte des solutés et la prise en compte du transport de grains équiaxes ont été identifiés comme des axes de développement.

Les deux essais seront ainsi simulés et les résultats de macroségrégation seront discutés en lien avec les analyses chimiques et l'observation de la macrostructure. De plus, nous proposons également d'établir clairement l'influence des convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale sur l'écoulement dans la zone pâteuse et la formation de la macroségrégation.

À la suite de cette introduction, le mémoire est divisé en 6 chapitres.

La description du modèle de solidification d'un lingot VAR développé pour cette étude fait l'objet du *chapitre II*. Dans un premier temps, les équations de transport résolues sont présentées. Ensuite, la modélisation de la microségrégation et le couplage avec les équations de transport sont décrits.

Le *chapitre III* est consacré à la présentation des deux refusions VAR des alliages Zy-4 et M5<sup>®</sup>. Il regroupe les macrographies longitudinales des lingots, les résultats de caractérisation de la microségrégation et les profils de macroségrégation tracés à partir des analyses chimiques réalisées.

Les *chapitres IV* et *V* présentent respectivement les résultats obtenus en simulant les refusions expérimentales des alliages Zircaloy-4 et M5<sup>®</sup>. Les rôles de la convection naturelle

et de la diffusion restreinte des solutés lors de la solidification ont été déterminés. De plus, pour l'alliage M5<sup>®</sup>, l'influence sur la macroségrégation des conditions thermiques à la limite lingot/creuset a été étudiée.

Dans le *chapitre VI*, nous avons cherché à établir pour la refusion de l'alliage Zy-4 l'influence du transport de grains équiaxes sur la macroségrégation. Les modifications apportées aux équations de transport pour tenir compte du mouvement des grains font l'objet d'une première partie, puis les résultats obtenus sont comparés aux mesures expérimentales.

Ce mémoire se termine par une conclusion (*chapitre VII*) qui synthétise les principaux résultats obtenus au cours de cette étude. Nous proposons également des perspectives aux travaux de recherche présentés.

## I.6 Bibliographie

- [1] D. Charquet, Propriétés du zirconium et du hafnium, Techniques de l'ingénieur. COR 360 (1985).
- [2] P. Barberis, Propriétés du zirconium et du hafnium, Techniques de l'ingénieur. M 4 785 (2009).
- [3] J.-P. Mardon, Matériaux des tubes de gainage pour REP, Techniques de l'ingénieur. BN 3 700 (2008).
- [4] J.-P. Mardon, D. Charquet, J. Senevat, Influence of Composition and Fabrication Process on Out-of-Pile and In-Pile Properties of M5 Alloy, Proc. of 20th International Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry. (2000) 505-524.
- [5] A. Nikulina, Zirconium alloys in nuclear power engineering, Metal science and heat treatment. 46 (2004) 458-462.
- [6] A. Nikulina, Zirconium-niobium alloys for core elements of pressurized water reactors, Metal science and heat treatment. 45 (2003) 287-292.
- [7] G. Sabol, ZIRLO<sup>TM</sup> — An Alloy Development Success, Journal of ASTM International. 2 (2005) 129-142.
- [8] D. Charquet, Traitement thermiques du zirconium et du hafnium, Techniques de l'ingénieur. M 1 345 (1985).
- [9] R. Tricot, Zirconium et Hafnium - Métallurgie, Techniques de l'ingénieur. M 2 360 (1994).
- [10] S. Hans, Modélisation des transferts couplés de chaleur, de soluté et de quantité de mouvement lors de la refusion à l'arc sous vide (VAR) - Application aux alliages de titane, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995.
- [11] P. Chapelle, Etude expérimentale et modélisation de l'arc électrique dans le procédé de refusion VAR, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2001.
- [12] T. Quatravaux, Evolution de la modélisation du procédé VAR - Contribution à la description de la dispersion inclusionnaire dans le puits liquide et à la prévention de défauts de solidification, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.

- [13] H.E. Mir, Comportement de l'arc électrique et fusion de l'électrode consommable dans un four de refusion, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2005.
- [14] A. Soller, Refusion à l'arc sous vide du superalliage 718 : modélisation du procédé et étude de la formation des « white spots », Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2006.
- [15] G. Ghazal, Etude de la propreté inclusionnaire dans les lingots VAR - Application aux alliages de titane, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2010.
- [16] V. De Felice, A. Jardy, H. Combeau, Comparison between temperature- and enthalpy-based formulations for the energy transport equation in solidifying multi-component systems, in: TMS Annual Meeting, 2009: p. 97-105.
- [17] Z. Yang, X. Zhao, H. Kou, J. Li, R. Hu, L. Zhou, Numerical simulation of temperature distribution and heat transfer during solidification of titanium alloy ingots in vacuum arc remelting process, Transactions of Nonferrous Metals Society of China. 20 (2010) 1957-1962.
- [18] X. Xu, R. Ward, M. Jacobs, P. Lee, M. McLean, Tree-ring formation during vacuum arc remelting of INCONEL 718: Part I. Experimental investigation, Metallurgical and Materials Transactions A. 33 (2002) 1795-1804.
- [19] X. Xu, W. Zhang, P. Lee, Tree-ring formation during vacuum arc remelting of INCONEL 718: Part II. Mathematical modeling, Metallurgical and Materials Transactions A. 33 (2002) 1805-1815.
- [20] R.C. Atwood, P.D. Lee, R.S. Minisandram, R.M.F. Jones, Multiscale modelling of microstructure formation during vacuum arc remelting of titanium 6-4, Journal of Materials Science. 39 (2004) 7193-7197.
- [21] L. Yuan, G. Djambazov, P.D. Lee, K. Pericleous, Multiscale modeling of the vacuum arc remelting process for the prediction on microstructure formation, International Journal of Modern Physics B. 23 (2009) 1584-1590.
- [22] L. Yuan, P.D. Lee, G. Djambazov, K. Pericleous, Numerical simulation of the effect of fluid flow on solute distribution and dendritic morphology, International Journal of Cast Metals Research, 22. 1 (2009) 204-207.
- [23] A.F. Wilson, A. Jardy, S.P. Fox, A numerical study of the influence of stirring parameters on titanium ingot quality using SOLAR v4.2, Proc. of the Ti-2007 Science and Technology, Eds. Ninomi M., Akiyama S., Ikeda M., Hagiwara M., and Maruyama K, The Japan Institute of Metals. (2007) 869-872.
- [24] V. Venkatesh, A. Wilson, M. Kamal, M. Thomas, D. Lambert, Computational modeling in the primary processing of titanium: A review, JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society. 61 (2009) 45-50.
- [25] A. Jardy, T. Quatravaux, D. Ablitzer, The effect of electromagnetic stirring on the turbulent flow of liquid metal in a vacuum arc remelted ingot, in: Multiphase Phenomena and CFD Modeling and Simulation in Materials Processes, 2004: p. 265-277.
- [26] D.M. Shevchenko, R.M. Ward, Liquid Metal Pool Behavior during the Vacuum Arc Remelting of INCONEL 718, Metall and Materi Trans B. 40 (2008) 263-270.
- [27] P. Chapelle, A. Jardy, J.P. Bellot, M. Minvielle, Effect of electromagnetic stirring on melt pool free surface dynamics during vacuum arc remelting, J Mater Sci. 43 (2008) 5734-5746.

- [28] W. Kurz, D.J. Fisher, *Fundamentals of Solidification*, 4th éd., Enfield Publishing & Distribution Company, 1998.
- [29] T.B. Massalski, *Binary Alloy Phase Diagrams*, 2nd Revised edition, ASM International, 1990.
- [30] M. Hallworth, [http://www2.maths.ox.ac.uk/ociam/research/industry/alloygraphics/nh4cl\\_pic2.jpg](http://www2.maths.ox.ac.uk/ociam/research/industry/alloygraphics/nh4cl_pic2.jpg). (2012).
- [31] A. Bogno, H. Nguyen-Thi, N. Bergeon, N. Mangelinck-Noël, T. Schenk, B. Billia, et al., Application of synchrotron X-ray radiography to the study of dendritic equiaxed microstructure formation in Al-Cu alloys, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 268 (2010) 394-398.
- [32] A. Mitchell, Solidification in remelting processes, *Materials Science and Engineering: A*. 413 (2005) 10-18.
- [33] J.A. Dantzig, M. Rappaz, *Solidification*, EPFL Press, 2009.
- [34] X. Wang, M.D. Barratt, R.M. Ward, M.H. Jacobs, The effect of VAR process parameters on white spot formation in INCONEL 1 718, *Journal of materials science*. 39 (2004) 7169-7174.
- [35] X. Wang, R.M. Ward, M.H. Jacobs, M.D. Barratt, Effect of Variation in Process Parameters on the Formation of Freckle in INCONEL 718 by Vacuum Arc Remelting, *Metall and Mat Trans A*. 39 (2008) 2981-2989.
- [36] M.G. Glavicic, P.A. Kobryn, F. Spadafora, S.L. Semiatin, Texture evolution in vacuum arc remelted ingots of Ti-6Al-4V, *Materials Science and Engineering A*. 346 (2003) 8-18.
- [37] H. Hayakawa, N. Fukada, T. Udagawa, M. Koizumi, H.G. Suzuki, T. Fukuyama, Solidification structure and segregation in cast ingots of titanium alloy produced by vacuum arc consumable electrode method, *ISIJ International*. 31 (1991) 775-784.
- [38] Z. Yang, H. Kou, J. Li, R. Hu, H. Chang, L. Zhou, Macrosegregation Behavior of Ti-10V-2Fe-3Al Alloy During Vacuum Consumable Arc Remelting Process, *J. of Materi Eng and Perform*. 20 (2010) 65-70.
- [39] D. Zagrebelnyy, M.J.M. Krane, Segregation Development in Multiple Melt Vacuum Arc Remelting, *Metall and Materi Trans B*. 40 (2008) 281-288.



## II Description du modèle de solidification d'un lingot VAR

Ce chapitre est dédié à la formulation du modèle de solidification et à la dérivation des équations. L'objectif est d'établir un modèle capable de décrire la solidification d'un alliage multiconstitué au cours du procédé VAR. Le modèle ainsi développé a été intégré dans le code de calcul SOLAR [1,2] qui est dédié à la simulation du procédé.

Le modèle présenté dans cette partie prend en compte un seul régime d'écoulement dans la zone de solidification : le solide forme une matrice rigide et nous considérons uniquement l'écoulement du métal liquide dans un milieu poreux saturé. De plus, nous avons tenu compte de la turbulence de l'écoulement qui est due principalement à l'application d'un brassage électromagnétique au cours de la refusion.

Pour cela, nous avons associé les méthodes de prise de moyenne temporelle (pour modéliser la turbulence) et de prise de moyenne volumique qui établit clairement un lien entre les équations locales et les équations macroscopiques moyennées volumiquement [3].

La prise de moyenne statistique d'ensemble [4–6] semble être une méthode mieux adaptée pour l'obtention des équations décrivant la solidification d'un lingot VAR. Néanmoins, les équations présentées ici sont physiquement vraisemblables.

Les équations de conservation locales, obtenues en utilisant une approche de type RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes) pour modéliser la turbulence, sont présentées dans la première partie. La présentation de la méthode de prise de moyenne volumique ainsi que la dérivation des équations macroscopiques font l'objet de la deuxième partie. Dans une troisième partie, nous décrivons les modèles de microségrégation que nous avons implémentés d'après les réf. [7–9]. La quatrième partie traite de la résolution numérique et la cinquième partie conclut sur les améliorations apportées à la modélisation de la solidification dans le modèle SOLAR.

### II.1 Les équations de conservation locales

#### II.1.a Forme générale des équations de conservation

Pour un fluide incompressible et newtonien de masse volumique  $\rho$ , il est possible d'écrire les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie et de la masse d'un constituant  $i$  sous une forme unifiée [10,11].

On considère l'extensité  $\Psi$  dont la valeur par unité de masse est  $\psi$ . L'équation de conservation (appelée aussi équation de transport) de cette extensité est :

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t}(\rho\psi)}_{\text{accumulation}} + \underbrace{\nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\psi)}_{\text{transport convectif}} = \underbrace{\nabla \cdot (\rho\Gamma\nabla\psi)}_{\text{transport diffusif}} + \underbrace{S_\psi}_{\text{terme source}} \quad (\text{II.1})$$

où  $\mathbf{u}$  est le vecteur vitesse instantanée,  $\Gamma$  est une diffusivité et  $S_\psi$  est un terme source éventuel.

Le tableau II.1 présente explicitement les termes intervenant dans les différentes équations de conservation locales.

**TABLEAU II.1** - Extensité, diffusivité et terme source pour les équations de conservation de la masse totale, de la quantité de mouvement, de l'enthalpie et de la masse d'un constituant  $i$  ( $\mathbf{A}^T$  est la notation utilisée pour la transposée de  $\mathbf{A}$  et  $\mathbf{F}$  représente des forces volumiques éventuelles)

	extensité $\psi$	diffusivité $\Gamma$	terme source $S_\psi$
masse	1	0	0
quantité de mouvement	$\mathbf{u}$	$\nu$	$-\nabla p + \nabla \cdot [\rho\nu(\nabla\mathbf{u})^T] + \rho\mathbf{g} + \mathbf{F}$
énergie	$h$	$\frac{\lambda}{\rho c_p}$	0 (frottements visqueux négligés)
constituant $i$	$\omega^i$	$D^i$	0

Concernant l'équation de conservation de la quantité de mouvement qui est souvent appelée « équation de Navier-Stokes », on considère généralement que la masse volumique n'est variable que dans le terme de pesanteur (approximation de Boussinesq [12]). Cette masse volumique est exprimée en fonction de la température et de la concentration en solutés pour tenir compte de la convection thermosolutale. En renommant cette masse volumique  $\rho^b$ , son expression est :

$$\rho^b = \rho \left[ 1 - \beta_T (T - T_{ref}) - \sum_i \beta_S^i (\omega^i - \omega_{ref}^i) \right] \quad (\text{II.2})$$

où  $\beta_T$  et  $\beta_S^i$  sont respectivement les coefficients d'expansion volumique thermique et solutale :

$$\beta_T = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial T} \Big|_{p, \omega^i} \quad \text{et} \quad \beta_S^i = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial \rho}{\partial \omega^i} \Big|_{p, \omega^{j \neq i}, T} \quad (\text{II.3})$$

### II.1.b Modélisation statistique de la turbulence

Le concept de moyenne d'une grandeur physique a été introduit pour la première fois par Reynolds lors de son étude visant à démontrer l'existence d'un critère de transition entre les régimes laminaire et turbulent pour un écoulement d'eau dans un tube cylindrique [13].

Actuellement, le concept de prise de moyenne temporelle est couramment utilisé en Mécanique des Fluides Numériques (ou MFN) – Computational Fluid Dynamics (ou CFD) en anglais – pour modéliser statistiquement des écoulements turbulents intervenant dans un contexte industriel.

La moyenne temporelle de la grandeur physique  $\psi$  est définie par [14] :

$$\bar{\psi} = \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \psi \, dt \quad (\text{II.4})$$

Ainsi, on peut exprimer  $\psi$  en fonction de sa moyenne temporelle,  $\bar{\psi}$ , et de la fluctuation associée,  $\psi'$ , telle que :

$$\psi' = \psi - \bar{\psi} \quad (\text{II.5})$$

En appliquant cette expression (appelée souvent décomposition de Reynolds) à l'équation (II.1), puis en moyennant temporellement l'équation obtenue, nous obtenons l'équation de conservation de l'extensité moyenne  $\bar{\psi}$  :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \bar{\psi}) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \bar{\psi}) = \nabla \cdot (\rho \Gamma \nabla \bar{\psi}) + \bar{S}_\psi + \nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}' \psi'}) \quad (\text{II.6})$$

Mis à part le remplacement des variables instantanées par les variables moyennes, l'unique différence entre les équations de conservation instantanée et moyennée temporellement est le terme  $\nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}' \psi'})$ . Il provient du terme inertiel et correspond à l'influence de la turbulence sur la conservation de la grandeur moyenne  $\bar{\psi}$ . Il est inconnu a priori et doit être modélisé.

Dans la suite, nous supposons que les variations temporelles à l'échelle microscopique de la masse volumique  $\rho$ , de la viscosité  $\mu$ , de la conductivité thermique  $\lambda$  et du coefficient de diffusion  $D$  sont négligeables, i. e.  $\rho = \bar{\rho}$ ,  $\mu = \bar{\mu}$ ,  $\lambda = \bar{\lambda}$  et  $D = \bar{D}$ . La chaleur latente  $c_p$  est considérée comme constante.

### Conservation de la masse totale et de la quantité de mouvement

L'équation de conservation de la masse totale (aussi appelée équation de continuité) et l'équation de conservation de la quantité de mouvement d'un fluide incompressible dans un écoulement turbulent sont (cf. tableau II.1 et éq. (II.6)):

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}}) = 0 \quad (\text{II.7})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \bar{\mathbf{u}}) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \bar{\mathbf{u}}) = -\nabla \bar{p} + \nabla \cdot \bar{\boldsymbol{\tau}} + \bar{\rho}^b \mathbf{g} + \nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}' \mathbf{u}'}) \quad (\text{II.8})$$

$\bar{\boldsymbol{\tau}}$  est le tenseur moyen des contraintes visqueuses et, pour un fluide newtonien et incompressible, est égal à :

$$\bar{\boldsymbol{\tau}} = 2\mu \bar{\mathbf{s}} \quad (\text{II.9})$$

où  $\mu$  est la viscosité dynamique du fluide ( $\mu = \rho \nu$ ) et  $\bar{\mathbf{s}}$  est le tenseur des taux de déformation moyen :

$$\bar{\mathbf{s}} = \frac{1}{2} [\nabla \bar{\mathbf{u}} + (\nabla \bar{\mathbf{u}})^T] \quad (\text{II.10})$$

Le terme  $\nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}'\mathbf{u}'})$  est couramment appelé « tenseur des contraintes de Reynolds » ou « tenseur de Reynolds ». Le système d'équation composé de (II.7) et (II.8) n'est pas fermé, i. e. le nombre de variables est supérieur au nombre d'équations. Pour fermer ce système, il est donc nécessaire d'écrire des équations supplémentaires en modélisant le tenseur de Reynolds.

L'approche utilisée couramment pour modéliser le tenseur de Reynolds, et donc la turbulence, a été formulée initialement par Boussinesq. Dans cette approche, le tenseur de Reynolds est assimilé à un tenseur de contraintes dues à la turbulence appelées contraintes de viscosité turbulente. Par analogie avec le tenseur des contraintes visqueuses, les contraintes de viscosité turbulente sont proportionnelles aux gradients de vitesses moyennes et, pour un fluide incompressible, le tenseur de Reynolds est posé égal à [15] :

$$-\rho \overline{\mathbf{u}'\mathbf{u}'} = \mu_t 2\bar{\mathbf{s}} - \frac{2}{3} \rho k \mathbf{I} \quad (\text{II.11})$$

où  $\mu_t$  est la viscosité dynamique turbulente,  $k$  l'énergie cinétique turbulente et  $\mathbf{I}$  le tenseur unité.

Contrairement à la viscosité dynamique, la viscosité turbulente n'est pas une propriété du fluide mais dépend fortement de l'état de turbulence ;  $\mu_t$  peut varier significativement d'un point à l'autre de l'écoulement et il faut donc déterminer maintenant sa distribution.

Le terme  $-2/3 \rho k \mathbf{I}$  assure que la somme des contraintes normales turbulentes soit positive et égale à deux fois l'énergie cinétique turbulente  $k$  :

$$k = \frac{\overline{\mathbf{u}'\mathbf{u}'}}{2} \quad (\text{II.12})$$

Les contraintes normales turbulentes agissent comme des forces de pression ; c'est pourquoi, le terme  $-2/3 \rho k \mathbf{I}$  constitue une pression. Ainsi, quand la relation (II.11) est utilisée pour modéliser le tenseur de Reynolds dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement (II.8), ce terme peut être inclus dans le terme de gradient de pression. La pression statique est alors remplacée comme variable par la pression effective :

$$\bar{p}^* = \bar{p} + \frac{2}{3} \rho k \quad (\text{II.13})$$

Par conséquent, l'apparition de  $k$  dans l'équation (II.11) ne nécessite pas la détermination de  $k$  ; c'est la distribution de viscosité turbulente  $\mu_t$ , uniquement qui doit être déterminée.

Finalement, l'équation (II.8) devient :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \bar{\mathbf{u}}) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}}\bar{\mathbf{u}}) = -\nabla \bar{p}^* + \nabla \cdot [(\mu + \mu_t) 2\bar{\mathbf{s}}] + \bar{\rho}^b \mathbf{g} \quad (\text{II.14})$$

### Conservation de la chaleur

Si on néglige les termes de frottements visqueux, l'équation de conservation de l'enthalpie d'un fluide incompressible dans un écoulement turbulent est (cf. tableau II.1 et éq. (II.6)) :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \bar{h}) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}}\bar{h}) = \nabla \cdot (\rho \alpha \nabla \bar{h}) + \nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}'h'}) \quad (\text{II.15})$$

D'après l'hypothèse de Boussinesq, le dernier terme de l'équation (II.15) est modélisé par [15] :

$$-\rho \overline{\mathbf{u}'h'} = \frac{\mu_t}{\rho Pr_t} \nabla \bar{h} = \alpha_t \nabla \bar{h} \quad (\text{II.16})$$

où  $Pr_t$  est le nombre de Prandtl turbulent et  $\alpha_t$  est la diffusivité thermique turbulente.

Comme  $d\bar{h} = c_p d\bar{T}$  pour un milieu monophasique, on peut reformuler l'équation (II.15) suivant :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \bar{h}) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \bar{h}) = \nabla \cdot [(\lambda + \lambda_t) \nabla \bar{T}] \quad (\text{II.17})$$

où  $\lambda_t$  est la conductivité thermique turbulente :

$$\lambda_t = \rho c_p \alpha_t \quad (\text{II.18})$$

### Conservation de la masse d'un constituant

En l'absence de réaction chimique, l'équation de conservation de la masse d'un constituant  $i$  dans un écoulement turbulent est (cf. tableau II.1 et éq. (II.6)) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \bar{\omega}^i) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \bar{\omega}^i) = \nabla \cdot (\rho D^i \nabla \bar{\omega}^i) + \nabla \cdot (-\rho \overline{\mathbf{u}'\omega'^i}) \quad (\text{II.19})$$

Par analogie avec l'équation de conservation de l'énergie, le dernier terme de l'équation (II.19) est modélisé par [15] :

$$-\rho \overline{\mathbf{u}'\omega'^i} = \frac{\mu_t}{\rho Sc_t} \nabla \bar{\omega}^i = D_t \nabla \bar{\omega}^i \quad (\text{II.20})$$

où  $Sc_t$  est le nombre de Schmidt turbulent et  $D_t$  la diffusivité turbulente.

Ainsi, l'équation (II.19) devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho \bar{\omega}^i) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \bar{\omega}^i) = \nabla \cdot [(\rho D^i + D_t) \nabla \bar{\omega}^i] \quad (\text{II.21})$$

#### II.1.c Modèles de turbulence

De nombreux modèles de fermeture ont été développés en adoptant une approche de type RANS (Reynolds Averaged Navier-Stokes). Ils font intervenir zéro, une ou deux équations de transport pour déterminer les grandeurs turbulentes.

Le modèle le plus simple, à zéro équation de transport, suppose que la viscosité turbulente est uniforme dans tout l'écoulement, la valeur de cette constante étant déterminée à partir de résultats expérimentaux.

Un autre modèle qui ne fait pas intervenir d'équation de transport est le modèle de longueur de mélange de Prandtl. Il est applicable au voisinage de parois où le gradient trans-

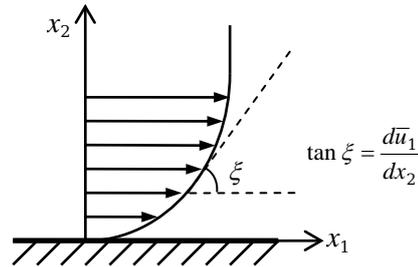
versal de la composante longitudinale de la vitesse est prépondérant. On pose alors (figure II.1) :

$$\mu_t = \rho l^2 \frac{d\bar{u}_1}{dx_2} \quad (\text{II.22})$$

L'expression de la longueur de mélange  $l$  est donnée par une loi de paroi. Par exemple, cette loi peut être du type proportionnel [16] :

$$l = \kappa \cdot x_2 \quad (\text{II.23})$$

où  $\kappa$  est la constante de von Karman égale à 0,41.



**FIGURE II.1** – Écoulement d'un fluide au voisinage d'une paroi : représentation du gradient transversal de la composante longitudinale de la vitesse.

Le modèle de Prandtl-Kolmogorov ou modèle  $k-l$  est un modèle à une équation de transport. L'hypothèse de base de ce modèle est le lien entre la viscosité turbulente, l'énergie cinétique turbulente et la longueur de mélange  $l$ . Elle se traduit par la relation suivante :

$$\mu_t = c_{\mu} \rho l \sqrt{k} \quad (\text{II.24})$$

La longueur  $l$  caractéristique est donnée par une loi du même type que (II.23) alors que  $k$  est définie par une équation de transport obtenue en moyennant la différence entre l'équation de l'énergie cinétique totale et l'équation de l'énergie cinétique du mouvement moyen.

L'une des formulations les plus générales est :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho k) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} k) = \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_k} \right) \nabla k \right] + P_k + G_k^T + G_k^S - \rho \varepsilon \quad (\text{II.25})$$

où  $\varepsilon$  est appelé le taux de dissipation de l'énergie cinétique turbulente.

L'expression de  $\varepsilon$  est :

$$\varepsilon = \frac{\mu}{\rho} \overline{\frac{\partial u'_i}{\partial x_j} \frac{\partial u'_j}{\partial x_i}} \quad (\text{II.26})$$

Il est généralement modélisé par :

$$\varepsilon = c_D \frac{k^{3/2}}{l} \quad (\text{II.27})$$

où  $c_D$  est la constante de dissipation.

Le terme  $P_k$  de l'équation (II.25) est causé par l'interaction entre les contraintes de Reynolds et le gradient de vitesses moyennes. Son expression est :

$$P_k = -\rho \overline{u'_j u'_j} \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} \quad (\text{II.28})$$

Les termes  $G_k^T$  et  $G_k^S$  permettent de prendre en compte respectivement les effets des forces d'expansion thermique et solutale. En particulier, une stratification stable réduit la viscosité turbulente  $\mu_t$ , la conductivité thermique turbulente  $\lambda_t$  et la diffusivité turbulente  $D_t$ . Les expressions de  $G_k^T$  et  $G_k^S$  sont :

$$G_k^T = -\rho \beta_T \overline{\mathbf{g} \mathbf{u}' T'} = \beta_T \mathbf{g} \frac{\mu_t}{Pr_t} \cdot \nabla \bar{T} \quad (\text{II.29})$$

$$G_k^S = -\rho \mathbf{g} \sum_i \beta_s^i \overline{\mathbf{u}' \omega'^i} = \mathbf{g} \cdot \sum_i \beta_s^i \frac{\mu_t}{Sc_t} \nabla \bar{\omega}^i \quad (\text{II.30})$$

Dans ce modèle, trois constantes ont été introduites :  $c_{\mu}$ ,  $c_D$  et  $\sigma_k$  ; on utilise couramment les valeurs suivantes [16] :

$$c_{\mu} = 1,13 ; c_D = 0,08 ; \sigma_k = 1 \quad (\text{II.31})$$

Parmi les modèles à deux équations de transport, le modèle  $k$ - $\varepsilon$  est couramment utilisé pour la simulation des écoulements industriels. Dans ce modèle, la longueur de mélange  $l$  ainsi que la loi de paroi sont remplacées par une équation de transport relative au taux de dissipation  $\varepsilon$ .

La viscosité turbulente est alors exprimée en fonction de  $k$  et de  $\varepsilon$  par élimination de  $l$  entre les équations (II.24) et (II.27), soit :

$$\mu_t = c_{\mu} \rho \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (\text{II.32})$$

L'équation de transport de  $k$  est analogue à la précédente (II.25) et l'équation de transport de  $\varepsilon$  s'écrit [15] :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \varepsilon) + \nabla \cdot (\rho \bar{\mathbf{u}} \varepsilon) = \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_t}{\sigma_{\varepsilon}} \right) \nabla \varepsilon \right] + \frac{\varepsilon}{k} \left[ c_1 P_k + c_1 c_3 (G_k^T + G_k^S) - c_2 \rho \varepsilon \right] \quad (\text{II.33})$$

où  $\sigma_{\varepsilon}$ ,  $c_1$ ,  $c_2$  et  $c_3$  sont de nouvelles constantes.

Les constantes du modèle  $k$ - $\varepsilon$  préconisées par Launder et Spalding sont [17] :

$$c_{\mu} = 0,09 \quad c_1 = 1,44 \quad c_2 = 1,92 \quad \sigma_k = 1,0 \quad \sigma_{\varepsilon} = 1,3 \quad (\text{II.34})$$

La « constante »  $c_3$  détermine le degré d'influence des forces de volume sur le taux de dissipation  $\varepsilon$ . Cette « constante » n'est pas spécifiée mais calculée d'après la relation [18] :

$$c_3 = \tanh\left(\frac{\bar{u}_z}{\sqrt{\bar{u}_r^2 + \bar{u}_\theta^2}}\right) \quad (\text{II.35})$$

où  $u_z$ ,  $u_r$  et  $u_\theta$  sont les composantes de la vitesse dans un repère cylindrique ( $r\theta z$ ),  $\mathbf{g}$  étant parallèle à l'axe  $z$ .

Les nombres de Prandtl et de Schmidt turbulents sont supposés constants et leurs valeurs sont généralement [19] :

$$Pr_t = 0,85 \quad Sc_t = 0,7 \quad (\text{II.36})$$

## II.2 Dérivation des équations de conservation modélisant la solidification d'un alliage

### II.2.a La prise de moyenne volumique

La méthode de prise de moyenne volumique consiste à intégrer sur un volume élémentaire représentatif (VER) les équations gouvernant le problème à l'échelle microscopique afin d'obtenir un système d'équations à l'échelle macroscopique. Cette méthode est souvent utilisée pour modéliser les mécanismes de changement de phase qui ont un caractère multi-échelles.

Ce processus permet d'obtenir les équations d'évolution des grandeurs macroscopiques mais fait également apparaître des termes qui sont fonction des quantités microscopiques. Ces termes doivent être modélisés afin de fermer le problème à l'échelle macroscopique. La difficulté principale de cette approche réside dans cette étape de modélisation.

La méthode de prises de moyenne volumique présentée ici est extraite de [20]. Par ailleurs, le principe de double décomposition d'une grandeur en sa moyenne temporelle et sa moyenne volumique est extrait des références [21,22].

On considère un VER de volume  $V_0$  constitué d'une partie liquide et d'une partie solide (cf. figure II.2). Soit  $\psi$  une grandeur physique par unité de volume définie sur la phase  $k$ . Sa moyenne définie sur le VER est notée  $\langle \psi \rangle$  et est égale à :

$$\langle \psi \rangle = \frac{1}{V_0} \int_{V^k} \psi \gamma^k dV \quad (\text{II.37})$$

où  $\gamma^k$  est la fonction de phase, i. e. :

$$\gamma^k = \begin{cases} 1 & \text{dans la phase } k \\ 0 & \text{ailleurs} \end{cases} \quad (\text{II.38})$$

On définit la moyenne intrinsèque de phase  $\langle \psi \rangle^k$  telle que :

$$\langle \psi \rangle^k = \frac{1}{V_k} \int_{V_k} \psi dV \quad (\text{II.39})$$

où  $V_k$  est le volume occupé par la phase  $k$  dans le volume  $V_0$ .

D'après ces définitions, on a la relation :

$$\langle \psi \rangle = g_k \langle \psi \rangle^k \quad (\text{II.40})$$

où  $g_k$  est la fraction volumique de phase  $k$  dans le VER :

$$g_k = \frac{V_k}{V_0} \quad (\text{II.41})$$

Dans le VER, les valeurs de  $\psi$  varient localement dans la phase  $k$ . On définit la déviation de  $\psi$  par rapport à la moyenne intrinsèque de phase  $\langle \psi \rangle^k$  par :

$$\psi'' = \psi - \langle \psi \rangle^k \quad (\text{II.42})$$

Les lois qui régissent les phénomènes à l'échelle microscopique sont généralement décrites mathématiquement par des équations aux dérivées partielles. Lorsqu'on cherche à établir les lois de conservation à l'échelle macroscopique par des prises de moyenne sur les équations microscopiques, on est conduit à utiliser des relations entre les dérivées des grandeurs macroscopiques et celles des grandeurs microscopiques correspondantes.

Pour une fonction  $\psi$  continûment différentiable sur la phase  $k$ , mais discontinue à l'interface entre les deux phases, les opérateurs de dérivation s'écrivent alors en valeur moyenne [20] :

$$\langle \nabla \psi \rangle = \nabla (g_k \langle \psi \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_k \psi \, dS \quad (\text{II.43})$$

$$\langle \nabla \cdot \psi \rangle = \nabla \cdot (g_k \langle \psi \rangle^k) + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_k \cdot \psi \, dS \quad (\text{II.44})$$

$$\left\langle \frac{\partial \psi}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial}{\partial t} (g_k \langle \psi \rangle^k) - \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_k \cdot \mathbf{u}_i \psi \, dS \quad (\text{II.45})$$

où  $A_i$  est l'aire interfaciale,  $\mathbf{u}_i$  la vitesse de déplacement de l'interface et  $\mathbf{n}_k$  est le vecteur normal à l'interface, dirigé vers l'extérieur de la phase  $k$ .

Dans la suite, nous négligeons les variations temporelles de la vitesse de déplacement de l'interface liquide-solide, i. e.  $\mathbf{u}_i = \bar{\mathbf{u}}_i$ .

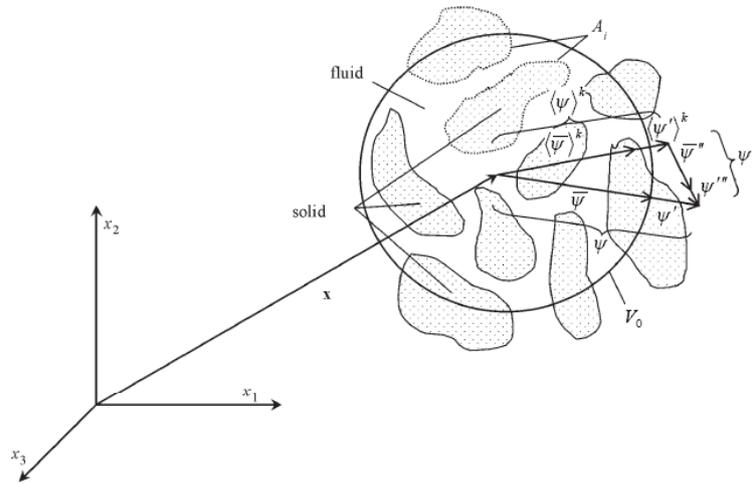


FIGURE II.2 – Représentation d'un VER (d'après [21]).

### Propriétés commutatives avec la prise de moyenne temporelle

D'après les définitions de la moyenne temporelle (II.4) et de la moyenne volumique (II.37), on peut conclure que la moyenne temporelle de la grandeur  $\psi$  moyennée dans le VER est donnée par [21] :

$$\overline{\langle \psi \rangle} = \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \left[ \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \psi \gamma^k dV \right] dt \quad (\text{II.46})$$

La moyenne dans le VER de la moyenne temporelle de  $\psi$  est :

$$\langle \overline{\psi} \rangle = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \left[ \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \psi dt \right] \gamma^k dV \quad (\text{II.47})$$

Comme le VER est défini de telle manière qu'il soit indépendant du temps, et si l'intervalle de temps  $\Delta t$  choisi pour effectuer la moyenne temporelle est le même pour tous les VER, la prise de moyenne volumique et la prise de moyenne temporelle commutent car les domaines d'intégration sont indépendants. Ainsi, on en déduit que :

$$\overline{\langle \psi \rangle} = \langle \overline{\psi} \rangle \quad \text{et} \quad \overline{\langle \psi \rangle^k} = \langle \overline{\psi} \rangle^k \quad (\text{II.48})$$

### Double décomposition – fluctuations spatiales et temporelles

La figure II.2 montre que pour un point situé à une certaine position  $x$ , entouré par un volume  $V_0$ , un VER peut être défini. De plus, pour ce point, une moyenne temporelle qui dépend uniquement de  $\Delta t$  peut être calculée d'après (II.4).

Finalement, d'après les définitions (II.5) et (II.39), on a :

$$\langle \psi \rangle^k = \frac{1}{V_k} \int_{V_k} \psi^k dV = \frac{1}{V_k} \int_{V_k} (\overline{\psi} + \psi')^k dV = \langle \overline{\psi} \rangle^k + \langle \psi' \rangle^k \quad (\text{II.49})$$

et, en combinant les équations (II.4) et (II.42) :

$$\overline{\psi} = \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} \psi dt = \frac{1}{\Delta t} \int_t^{t+\Delta t} (\langle \psi \rangle^k + \psi'') dt = \langle \overline{\psi} \rangle^k + \overline{\psi''} \quad (\text{II.50})$$

De plus, la moyenne spatiale  $\langle \psi \rangle^k$  peut aussi être développée selon :

$$\langle \psi \rangle^k = \overline{\langle \psi \rangle^k} + \langle \psi \rangle^{k'} \quad (\text{II.51})$$

En utilisant le fait que les moyennes commutent, la comparaison des relations (II.49) et (II.51) valide que :

$$\langle \psi' \rangle^k = \langle \psi \rangle^{k'} \quad (\text{II.52})$$

L'équation (II.52) signifie que *la moyenne spatiale dans le VER de la fluctuation temporelle est égale à la fluctuation temporelle de la moyenne spatiale.*

De manière similaire, on a :

$$\overline{\psi} = \langle \overline{\psi} \rangle^k + \overline{\psi}'' \quad (\text{II.53})$$

et, par conséquent, en comparant (II.50) et (II.53) :

$$\overline{\psi}'' = \overline{\psi}'' \quad (\text{II.54})$$

c'est-à-dire que *la fluctuation spatiale de la moyenne temporelle est égal à la moyenne temporelle de la fluctuation spatiale.*

En prenant maintenant la moyenne temporelle de la fluctuation temporelle écrite sous cette forme :

$$\psi' = \langle \psi' \rangle^k + \psi'' = \langle \psi' \rangle^k + \psi'' \quad (\text{II.55})$$

on obtient  $\overline{\psi''} = 0$ .

De même, en prenant la moyenne spatiale de la fluctuation spatiale écrite sous cette forme :

$$\psi'' = \overline{\psi''} + \psi''' = \overline{\psi''} + \psi''' \quad (\text{II.56})$$

on obtient  $\langle \psi''' \rangle = 0$ .

Pour la dérivation des équations de conservation macroscopique, nous faisons l'hypothèse que les variations volumiques de la masse volumique  $\rho_k$ , de la viscosité  $\mu_k$ , de la conductivité thermique  $\lambda_k$  et des coefficients de diffusion  $D_k^i$  à l'échelle microscopique sont négligeables, i. e.  $\rho_k'' = 0$ ,  $\lambda_k'' = 0$  et  $D_k^{i''} = 0$ . Comme nous avons déjà supposé que les variations temporelles de ces propriétés sont négligeables (cf. §II.1.b), nous avons :

$$\rho = \langle \overline{\rho}_k \rangle^k \quad \mu = \langle \overline{\mu}_k \rangle^k \quad \lambda = \langle \overline{\lambda}_k \rangle^k \quad D = \langle \overline{D}_k \rangle^k \quad (\text{II.57})$$

Rappelons que la chaleur spécifique  $c_p$  est considérée comme constante et identique pour les phases liquide et solide.

## II.2.b Conservation de la masse totale

Afin d'obtenir l'équation de conservation de la masse dans la phase  $k$ , nous effectuons la moyenne volumique de chaque terme de l'équation locale de conservation de la masse (II.7). En utilisant les relations (II.43), (II.44) et (II.45), on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_k g_k) + \nabla \cdot (\rho_k g_k \langle \overline{\mathbf{u}}_k \rangle^k) = \Gamma_k \quad (\text{II.58})$$

où :

$$\Gamma_k = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_k \cdot (\overline{\mathbf{u}}_i - \overline{\mathbf{u}}_k) \rho_k \, dS \quad (\text{II.59})$$

Le membre de droite de l'équation (II.58),  $\Gamma_k$ , correspond au flux de matière de phase  $k$  à travers l'interface. Il est dû à la différence entre la vitesse de l'interface et la vitesse de la phase  $k$  à l'interface.

L'équation de conservation de la masse totale est obtenue en sommant les équations de continuité pour les phases liquide et solide.

En tenant compte du bilan de matière à l'interface,

$$\Gamma_l + \Gamma_s = 0 \quad (\text{II.60})$$

et comme la vitesse de la phase solide est supposée nulle ( $\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0$ ), on obtient :

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) = 0 \quad (\text{II.61})$$

où  $\rho_m$  est la masse volumique de mélange :

$$\rho_m = g_l \rho_l + g_s \rho_s \quad (\text{II.62})$$

### II.2.c Conservation de la quantité de mouvement

Rappelons que la phase solide est fixe. Ainsi, l'équation de conservation macroscopique de la quantité de mouvement dans la phase solide est :

$$\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0 \quad (\text{II.63})$$

L'équation de conservation macroscopique de la quantité de mouvement dans la phase liquide est obtenue en réalisant la prise de moyenne volumique sur chaque terme de l'équation (II.14).

*Prise de moyenne volumique du terme d'accumulation et du terme convectif*

La prise de moyenne sur le VER du terme de gauche de l'équation (II.14) donne :

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \bar{\mathbf{u}}_l) \right\rangle + \langle \nabla \cdot (\rho_l \bar{\mathbf{u}}_l \bar{\mathbf{u}}_l) \rangle &= \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l \bar{\mathbf{u}}_l (\bar{\mathbf{u}}_l - \mathbf{u}_i) dS \\ &+ \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \left\langle \bar{\mathbf{u}}_l'' \bar{\mathbf{u}}_l'' \right\rangle^l \right) \end{aligned} \quad (\text{II.64})$$

Dans la suite, nous négligeons les deux derniers termes comme Bousquet-Melou et al. dans la référence [23].

*Prise de moyenne volumique du terme de pression*

$$\langle -\nabla \bar{p} \rangle = -\nabla \left( g_l \langle \bar{p} \rangle^l \right) - \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{p} \cdot \mathbf{dS} \quad (\text{II.65})$$

Nous avons simplifié l'équation (II.65) en adoptant la méthode et les hypothèses présentées par Bousquet-Melou et al. dans la référence [23]. Ainsi, nous avons :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{p} \cdot \mathbf{dS} = -\nabla g_l \langle \bar{p} \rangle^l + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{p} \cdot \mathbf{dS}'' \quad (\text{II.66})$$

et en substituant la relation (II.66) dans (II.65), on obtient finalement que :

$$\langle -\nabla \bar{p} \rangle = -g_l \nabla \langle \bar{p} \rangle^l - \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{p} \cdot \mathbf{dS}'' \quad (\text{II.67})$$

*Prise de moyenne volumique des termes visqueux*

D'après l'expression du tenseur des taux de déformation pour un fluide newtonien et un écoulement incompressible – éq. (II.10), nous avons :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot [\mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle &= \nabla \cdot [\mu_l 2\langle \bar{\mathbf{s}}_l \rangle] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l \mathbf{dS} \\ &= \nabla \cdot \left[ \mu_l \langle \nabla \bar{\mathbf{u}}_l + (\nabla \bar{\mathbf{u}}_l)^T \rangle \right] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l \mathbf{dS} \\ &= \nabla \cdot \left\{ \mu_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\} \\ &\quad + \nabla \cdot \left\{ \frac{\mu_l}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l + \bar{\mathbf{u}}_l \mathbf{n}_l \mathbf{dS} \right\} + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l \mathbf{dS} \end{aligned} \quad (\text{II.68})$$

Comme pour le terme de pression, nous avons obtenu la relation (II.69) d'après la référence [23] :

$$\frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l + \bar{\mathbf{u}}_l \mathbf{n}_l \mathbf{dS} \approx -\nabla g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l - \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \nabla g_l + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l'' + \bar{\mathbf{u}}_l'' \mathbf{n}_l \mathbf{dS} \quad (\text{II.69})$$

Ainsi :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot [\mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle &= \nabla \cdot \left\{ \mu_l g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\} \\ &\quad + \nabla \cdot \left[ \frac{\mu_l}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l'' + \bar{\mathbf{u}}_l'' \mathbf{n}_l \mathbf{dS} \right] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l \mathbf{dS} \end{aligned} \quad (\text{II.70})$$

Pour exprimer la moyenne volumique du terme de viscosité turbulente, nous avons considéré comme Pedras et de Lemos [21] que :

$$\langle \nabla \cdot [\mu_t 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle = \nabla \cdot [\mu_{tp} 2\langle \bar{\mathbf{s}}_l \rangle] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\mu_t 2\bar{\mathbf{s}}_l) dS \quad (\text{II.71})$$

où  $\mu_{tp}$  est la viscosité turbulente à l'échelle macroscopique et :

$$\mu_{tp} \langle \bar{\mathbf{s}}_l \rangle = \langle \mu_t \bar{\mathbf{s}}_l \rangle \quad (\text{II.72})$$

Ainsi, en suivant la même démarche que précédemment, nous obtenons la relation suivante pour le terme de viscosité turbulente :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot [\mu_t 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle &= \nabla \cdot [\mu_{tp} 2\langle \bar{\mathbf{s}}_l \rangle] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\mu_t 2\bar{\mathbf{s}}_l) dS \\ &= \nabla \cdot \left\{ \mu_{tp} g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\} \\ &\quad + \nabla \cdot \left[ \frac{\mu_{tp}}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l'' + \bar{\mathbf{u}}_l'' \mathbf{n}_l dS \right] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \mu_{tp} 2\bar{\mathbf{s}}_l dS \end{aligned} \quad (\text{II.73})$$

Finalement, la prise de moyenne des deux termes visqueux donne :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot [\mu_l 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle + \langle \nabla \cdot [\mu_t 2\bar{\mathbf{s}}_l] \rangle &= \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_{tp}) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\} \\ &\quad + \nabla \cdot \left[ \frac{(\mu_l + \mu_{tp})}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{\mathbf{u}}_l'' + \bar{\mathbf{u}}_l'' \mathbf{n}_l dS \right] + \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\mu_l + \mu_t) 2\bar{\mathbf{s}}_l dS \end{aligned} \quad (\text{II.74})$$

L'avant dernier terme du membre de droite de l'équation (II.74), qui correspond en l'absence de turbulence aux second et troisième termes de correction de Brinkman, est supposé avoir peu d'influence par rapport aux autres termes ; il est par conséquent négligé [23].

#### *Prise de moyenne du terme de gravité et des forces volumiques électromagnétiques*

$$\langle \bar{\rho}_l^b \mathbf{g} + \mathbf{F}_{el} \rangle = g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l \mathbf{g} + g_l \langle \bar{\mathbf{F}}_{el} \rangle^l \quad (\text{II.75})$$

La moyenne volumique intrinsèque de la masse volumique  $\rho_l^b$  est égale à [24,25] :

$$\langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l = \rho_l g_l \left[ 1 - \beta_{Tp} \left( \langle \bar{T} \rangle^l - T_{ref} \right) - \sum_i \beta_{Sp}^i \left( \langle \bar{\omega}_i \rangle^l - \omega_{ref}^i \right) \right] \mathbf{g} \quad (\text{II.76})$$

où  $\beta_{Tp}$  et  $\beta_{Sp}^i$  sont respectivement les coefficients d'expansion volumique thermique et solutal à l'échelle macroscopique.

Finalement, à partir des relations (II.67), (II.74), (II.75) et (II.76), on obtient l'équation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase liquide suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \\ = -g_l \nabla \langle \bar{p} \rangle^l + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\} + g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l \mathbf{g} + g_l \langle \bar{\mathbf{F}}_{el} \rangle^l + \mathbf{M}_l^\tau \end{aligned} \quad (\text{II.77})$$

où :

$$\mathbf{M}_l^\tau = \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \left( -\bar{p} \cdot \mathbf{n} + (\mu_l + \mu_t) 2\bar{\mathbf{s}}_l \right) dS \quad (\text{II.78})$$

Ce terme  $\mathbf{M}_l^\tau$  doit à présent être modélisé.

Un nombre de Reynolds en milieu poreux est classiquement défini par :

$$Re_p = \frac{\rho u d}{\mu} \quad (\text{II.79})$$

où  $u$  est la vitesse du fluide,  $d$  le diamètre du pore et  $\mu$  la viscosité dynamique du fluide.

Dans la littérature, plusieurs régimes d'écoulement sont distingués en fonction de la valeur de  $Re_p$  [21] : le régime de Darcy ou d'écoulement rampant ( $Re_p < 1$ ) ; le régime de Forchheimer ( $1 \sim 10 < Re_p < 150$ ) ; le régime post-Forchheimer ( $150 < Re_p < 300$ ) et le régime complètement turbulent ( $Re_p > 300$ ).

Dans notre cas, le diamètre du pore qui est une longueur caractéristique de l'écoulement correspond à un espacement interdendritique secondaire (Secondary Dendrite Arm Spacing – SDAS). Pour un alliage de zirconium,  $\rho_l = 6,21 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\mu_l = 4,59 \cdot 10^{-3} \text{ kg.m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ , et en maximisant la valeur du SDAS à 1 mm, un nombre de Reynolds  $Re_p$  égal à 1 correspond à une vitesse dans la zone pâteuse de  $0,74 \text{ cm.s}^{-1}$ . Pour les fractions liquides importantes, des vitesses de cet ordre de grandeur peuvent être atteintes lors de la refusion VAR (cf. chapitres IV et V).

C'est pourquoi, nous avons décidé de représenter  $\mathbf{M}_l^\tau$  par un modèle de Darcy-Forchheimer plutôt que par le modèle de Darcy qui est employé généralement pour la modélisation de la solidification sans turbulence :

$$\mathbf{M}_l^\tau = - \left( \frac{g_l^2 \mu}{K} + g_l^3 \frac{\rho F |\langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l|}{K^{1/2}} \right) \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \quad (\text{II.80})$$

où  $K$  est la perméabilité du milieu et  $F$  le coefficient de Forchheimer.

L'équation de Kozeny-Carman est utilisée pour modéliser la perméabilité de la zone colonnaire :

$$K = \frac{\lambda_{DAS}^2}{\pi^2 k_K \tau^2} \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2} = K_0 \frac{g_l^3}{(1-g_l)^2} \quad (\text{II.81})$$

où  $\lambda_{DAS}$  est l'espacement interdendritique secondaire,  $k_K$  est la constante de Kozeny et  $\tau$  est la tortuosité.  $k_K$  et  $\tau$  dépendent de la morphologie du milieu poreux. Bien qu'elles ne soient pas totalement adéquates, les valeurs pour un empilement compact de sphères sont couramment utilisées, i. e.  $k_K = 5$  et  $\tau = 6/\pi$ .

De plus, l'expression de  $F$  est prise égale à [26] :

$$F = 0,13 g_l^{-3/2} \quad (\text{II.82})$$

Finalement, nous obtenons l'équation de conservation de la quantité de mouvement suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \\ = -g_l \nabla \bar{p} + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + {}^T (\nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \right] \right\} + g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l \mathbf{g} + g_l \bar{\mathbf{F}}_{el} \\ - \left( \frac{g_l^2 \mu}{K} + g_l^3 \frac{\rho F |\langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l|}{K^{1/2}} \right) \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (\text{II.83})$$

### II.2.d Conservation de l'énergie

Le membre de gauche de l'équation locale (II.17) est moyenné pour la phase liquide :

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \bar{h}_l) \right\rangle + \langle \nabla \cdot (\rho_l \bar{\mathbf{u}}_l \bar{h}_l) \rangle = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{h}_l \rangle^l) \\ + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \bar{h}_l \rangle^l) + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l \bar{h}_l (\bar{\mathbf{u}}_l - \mathbf{u}_l) dS \end{aligned} \quad (\text{II.84})$$

Dans la suite, nous négligeons le terme dispersif, i. e. l'avant dernier terme de l'équation (II.84).

Le terme diffusif est moyenné pour la phase liquide :

$$\begin{aligned} \langle \nabla \cdot [(\lambda_l + \lambda_p) \nabla \bar{T}_l] \rangle = \nabla \cdot [(\lambda_l + \lambda_p) \nabla (g_l \langle \bar{T}_l \rangle^l)] + \nabla \cdot \left[ (\lambda_l + \lambda_p) \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{T}_l dS \right] \\ + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\lambda_l + \lambda_p) \nabla \bar{T}_l dS \end{aligned} \quad (\text{II.85})$$

En supposant que la température ne varie pas sur l'interface ( $\bar{T}_l^n = 0$ ), on a d'après Bousquet-Melou et al. [23] :

$$(\lambda_l + \lambda_p) \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \bar{T}_l dS = -(\lambda_l + \lambda_p) \nabla g_l \langle \bar{T}_l \rangle^l \quad (\text{II.86})$$

et donc :

$$\langle \nabla \cdot [(\lambda_l + \lambda_p) \nabla \bar{T}_l] \rangle = \nabla \cdot [(\lambda_l + \lambda_p) g_l \nabla \langle \bar{T}_l \rangle^l] + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\lambda_l + \lambda_p) \nabla \bar{T}_l dS \quad (\text{II.87})$$

Finalement, l'équation de conservation de l'énergie dans la phase liquide est :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{h}_l \rangle^l \right) = \nabla \cdot \left[ (\lambda_l + \lambda_t) g_l \nabla \langle \bar{T}_l \rangle^l \right] + Q_l^\Gamma + Q_l^j \quad (\text{II.88})$$

où :

$$Q_l^\Gamma = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l \bar{h}_l (\bar{\mathbf{u}}_l - \mathbf{u}_i) dS \quad (\text{II.89})$$

$$Q_l^j = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot (\lambda_l + \lambda_{tp}) \nabla \bar{T}_l dS \quad (\text{II.90})$$

De même, comme  $\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0$ , nous avons pour la phase solide :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_s g_s \langle \bar{h}_s \rangle^s \right) = \nabla \cdot \left[ \lambda_s g_s \nabla \langle \bar{T}_s \rangle^s \right] + Q_s^\Gamma + Q_s^j \quad (\text{II.91})$$

où :

$$Q_s^\Gamma = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_s \cdot \rho_s \bar{h}_s (\bar{\mathbf{u}}_s - \mathbf{u}_i) dS \quad (\text{II.92})$$

$$Q_s^j = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_s \cdot \lambda_s \nabla \bar{T}_s dS \quad (\text{II.93})$$

Nous supposons que l'équilibre thermique local est atteint dans le VER, i. e.  $\langle \bar{T}_l \rangle^l = \langle \bar{T}_s \rangle^s = \bar{T}$  (cf. §II.3). Ainsi, il n'est pas nécessaire de modéliser séparément le transport de chaleur dans les deux phases. Nous simplifions la formulation du bilan d'énergie en additionnant ensemble les deux équations et en utilisant le bilan d'énergie à l'interface :

$$Q_s^\Gamma + Q_s^j + Q_l^\Gamma + Q_l^j = 0 \quad (\text{II.94})$$

De plus, nous considérons que la conductivité du liquide et du solide sont identiques. Ainsi, l'équation macroscopique de conservation de l'énergie devient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l + \rho_s g_s \langle \bar{h}_s \rangle^s \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{h}_l \rangle^l \right) = \nabla \cdot \left[ (\lambda + g_l \lambda_t) \nabla \bar{T} \right] \quad (\text{II.95})$$

### II.2.e Conservation de la masse d'un constituant $i$

De manière similaire à l'équation de conservation de l'énergie, nous obtenons dans la phase liquide, l'équation de conservation de la masse d'un soluté  $i$  suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \omega_i^l \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \omega_i^l \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ (D_l + D_p) g_l \nabla \langle \omega_i^l \rangle^l \right] \\ + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l \bar{\omega}_l^i (\bar{\mathbf{u}}_l - \mathbf{u}_i) dS + \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l (D_l^i + D_p) \nabla \bar{\omega}_l^i dS \\ + (D_l^i + D_p) \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \omega_l^{i''} dS \end{aligned} \quad (\text{II.96})$$

Le dernier terme de l'équation (II.96) est négligé et on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right) = \nabla \cdot \left[ (D_l + D_p) g_l \nabla \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right] + J_l^{i,\Gamma} + J_l^{i,j} \quad (\text{II.97})$$

où :

$$J_l^{i,\Gamma} = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l \bar{\omega}_l^i (\bar{\mathbf{u}}_l - \bar{\mathbf{u}}_i) dS \quad (\text{II.98})$$

$$J_l^{i,j} = \frac{1}{V_0} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \rho_l (D_l^i + D_p) \nabla \bar{\omega}_l^i dS \quad (\text{II.99})$$

Dans la phase solide, nous négligeons la diffusion à l'échelle macroscopique. En revanche, à l'échelle microscopique, elle peut être prise en compte dans le modèle de micro-ségrégation (cf. §II.3.b).

Ainsi, comme  $\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0$ , l'équation de conservation d'un soluté  $i$  dans la phase solide est :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_s g_s \langle \bar{\omega}_s^i \rangle^s \right) = J_s^{i,\Gamma} + J_s^{i,j} \quad (\text{II.100})$$

### II.2.f Conservation de la densité de grains

La densité de grains, notée  $N$ , est une donnée du modèle de micro-ségrégation employé pour tenir compte de la diffusion restreinte des solutés au cours de la solidification (cf. §II.3.b).

Elle correspond au nombre de grains par unité de volume. Un modèle de germination instantanée prend en compte l'apparition des grains : un nombre prédéfini de germes par unité de volume  $N_0$  apparaît lorsque l'enthalpie devient inférieure à l'enthalpie de liquidus  $h_{liq}$  (cf. éq. (II.122)) et qu'aucun germe n'est présent à l'emplacement considéré.

Ainsi, nous avons [8] :

$$\dot{N} = \begin{cases} N_0 & \text{si } h_m < h_{liq} \text{ et } \int_0^t \dot{N} dt = 0 \\ N_0 & \text{si } h_m < h_{liq} \text{ et } N = 0 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{II.101})$$

De plus, nous supposons que les germes sont des sphères de diamètre  $d_0$  et que leur titre massique en élément  $i$  est égal à  $k_p^i \langle \bar{\omega}_i \rangle^l$ .

Comme  $\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0$ , l'équation de conservation de la population de grains est [8] :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \dot{N} \quad (\text{II.102})$$

### II.2.g Modèle $k$ - $\varepsilon$ macroscopique

Dans les équations de conservation moyennées dans la phase liquide, nous avons défini des diffusivités turbulentes macroscopiques : la viscosité turbulente  $\mu_{tp}$ , la conductivité turbulente  $\lambda_{tp}$  et le coefficient de diffusion turbulent  $D_{tp}$ . Il est nécessaire de déterminer leur distribution afin de fermer le système d'équations.

Nous avons utilisé un modèle de turbulence macroscopique à deux équations de transport [21]. La viscosité  $\mu_{tp}$  est alors exprimée en fonction de  $\langle k \rangle^l$  et de  $\langle \varepsilon \rangle^l$  selon :

$$\mu_{tp} = \rho_{ref} c_\mu \frac{\langle k \rangle^{l2}}{\langle \varepsilon \rangle^l} \quad (\text{II.103})$$

où  $c_\mu$  est une constante.

La conductivité thermique  $\lambda_{tp}$  et le coefficient de diffusion  $D_{tp}$  sont calculés à partir de  $\mu_{tp}$  selon :

$$\lambda_{tp} = \frac{c_p \mu_{tp}}{Pr_{tp}} \text{ et } D_{tp} = \frac{\mu_{tp}}{\rho_{ref} Sc_{tp}} \quad (\text{II.104})$$

où  $Pr_{tp}$  et  $Sc_{tp}$  sont respectivement les nombres de Prandtl et de Schmidt turbulents à l'échelle macroscopique.

En appliquant une technique similaire à celle utilisée pour l'énergie et la masse de soluté, nous avons effectué la moyenne volumique de l'équation de conservation locale de l'énergie cinétique turbulente  $k$  (II.25).

En négligeant tous les termes interfaciaux, on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle k \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle k \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_{tp}}{\sigma_k} \right) g_l \nabla \langle k \rangle^l \right] + \langle P_k \rangle + \langle G_k^T \rangle + \langle G_k^S \rangle - \rho g_l \langle \varepsilon \rangle^l - \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l k'' \rangle^l \right) \end{aligned} \quad (\text{II.105})$$

*Prise de moyenne volumique des termes sources*

Le terme  $P_k$  est moyenné volumiquement :

$$\begin{aligned} \langle P_k \rangle &= -\rho_l g_l \left\langle \overline{u'_{l,j} u'_{l,j}} \frac{\partial \bar{u}_{l,i}}{\partial x_j} \right\rangle^l \\ &= -\rho_l g_l \left[ \left\langle \overline{u'_{l,j} u'_{l,j}} \right\rangle^l \left\langle \frac{\partial \bar{u}_{l,i}}{\partial x_j} \right\rangle^l + \left\langle \left( \overline{u'_{l,j} u'_{l,j}} \right)'' \left( \frac{\partial \bar{u}_{l,i}}{\partial x_j} \right)'' \right\rangle^l \right] \end{aligned} \quad (\text{II.106})$$

Les moyennes sur le VER des termes source dus à la convection thermosolutale sont modélisées en fonction des grandeurs moyennes et des nombres adimensionnels macroscopique  $Pr_p$  et  $Sc_p$  [24,25] :

$$\langle G_k^T \rangle = -\rho_l \mathbf{g} \langle \beta_T \overline{\mathbf{u}' T'} \rangle = \beta_{Tp} g_l \frac{\mu_p}{Pr_p} \mathbf{g} \cdot \nabla \langle \bar{T} \rangle^l \quad (\text{II.107})$$

$$\langle G_k^S \rangle = -\rho_l \mathbf{g} \left\langle \sum_i \beta_s^i \overline{\mathbf{u}' \omega^i} \right\rangle = \sum_i \beta_{sp}^i \frac{\mu_p}{Sc_p} \mathbf{g} \cdot \nabla \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \quad (\text{II.108})$$

Finalement, l'équation (II.105) devient:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle k \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle k \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_p}{\sigma_k} \right) g_l \nabla \langle k \rangle^l \right] + P_{kp} + G_{kp}^T + G_{kp}^S + G_{kp} - \rho_l g_l \langle \varepsilon \rangle^l \end{aligned} \quad (\text{II.109})$$

où :

$$P_{kp} = -\rho_l g_l \left\langle \overline{u'_j u'_j} \right\rangle^l \left\langle \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} \right\rangle^l = -\rho_l g_l \langle \overline{u'_j u'_j} \rangle^l \frac{\partial}{\partial x_j} \left( g_l \langle \bar{u}_i \rangle^l \right) \quad (\text{II.110})$$

$$G_{kp}^T = \beta_{Tp} g_l \frac{\mu_p}{Pr_p} \mathbf{g} \cdot \nabla \bar{T} \quad (\text{II.111})$$

$$G_{kp}^S = \sum_i \beta_{sp}^i \frac{\mu_p}{Sc_p} \mathbf{g} \cdot \nabla \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \quad (\text{II.112})$$

$$G_{kp} = \underbrace{-\nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l'' k'' \rangle^l \right)}_I - \underbrace{\rho_l g_l \left\langle \left( \overline{u'_j u'_j} \right)'' \left( \frac{\partial \bar{u}_i}{\partial x_j} \right)'' \right\rangle^l}_II \quad (\text{II.113})$$

$P_{kp}$  est le terme de production dû au champ de vitesse macroscopique et est connu grâce à la relation suivante qui a été utilisée implicitement pour modéliser le tenseur macroscopique des contraintes de Reynolds [21] :

$$-\rho \langle \overline{\mathbf{u}' \mathbf{u}'} \rangle^l = \mu_p 2 \langle \bar{s} \rangle - \frac{2}{3} \rho_l \langle k \rangle^l \mathbf{I} \quad (\text{II.114})$$

À ce stade, le modèle  $k$ - $\varepsilon$  est encore ouvert car il reste à définir un modèle de fermeture pour le terme de production  $G_{kp}$ . Les termes I et II de  $G_{kp}$  représentent respectivement un transport et une production supplémentaires d'énergie cinétique turbulente causés par la présence de la phase solide dans le VER.

Dans la littérature concernant la solidification ou les écoulements incompressibles dans un milieu poreux, trois méthodes principales de fermeture ont été développées. Les modèles de fermeture employés sont résumés dans le tableau II.2.

Antohe et Lage [27] pour les milieux poreux, ainsi que Hans [1] et Prescott et Incropera [28,29] en solidification, ont obtenu un modèle de fermeture similaire. L'expression du terme  $G_{kp}$  est proportionnel à  $-1/K$ . Ainsi, l'énergie cinétique turbulente de la phase liquide est dissipée par le milieu poreux.

En revanche, Nakayama et Kuwahara [30] ainsi que Pedras et de Lemos [21] ont défini des expressions positives pour  $G_{kp}$  car leur objectif était de modéliser la turbulence à l'échelle du pore.

**TABLEAU II.2** – Modèles de fermeture pour  $G_{kp}$  issus de la littérature

<b>Solidification</b>		<i>références</i>
$G_{kp} = -\frac{2\mu g_l^2}{K} \langle k \rangle^l$	où $K = \frac{\lambda_{DAS}^2}{\pi^2 k_K \tau^2} \frac{g_l^3}{(1-g_l')^2}$	Hans [1] Prescott et Incropera [28,29]
<b>Milieu poreux saturé</b> (porosité $\phi$ )		<i>références</i>
$G_{kp} = -\frac{2\mu\phi^2}{K} \langle k \rangle^l$		Antohe et Lage [27]
$G_{kp} = \varepsilon_\infty$ $\frac{\langle \varepsilon \rangle^l}{\langle k \rangle^l} G_{kp} = \frac{\varepsilon_\infty^2}{k_\infty}$	où $\begin{cases} k_\infty = 3,7(1-\phi)\phi^{3/2}  \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l ^2 \\ \varepsilon_\infty = 39\phi^2(1-\phi)^{5/2} \frac{1}{D}  \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l ^3 \end{cases}$	Nakayama et Kuwahara [30]
$G_{kp} = \frac{c_K \rho_l g_l^2  \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l }{\sqrt{K}} \langle k \rangle^l$	où $\begin{cases} K = \frac{\phi^3 D^2}{144(1-\phi)^2} \\ c_K = 0,28 \end{cases}$	Pedras et de Lemos [21]

Notre but n'est pas d'étudier la turbulence créée par les grains présents dans la zone pâteuse. Il s'agit de tenir compte de l'influence de la turbulence sur les phénomènes de transport dans le puits liquide.

Nous avons donc choisi de modéliser  $G_{kp}$  par :

$$G_{kp} = -\frac{2\mu g_l^2}{K} \langle k \rangle^l \quad (\text{II.115})$$

et de conserver ainsi le terme utilisé dans SOLAR depuis la thèse de Hans [1].

Par ailleurs, l'équation de conservation de  $\langle \varepsilon \rangle^l$  est [21] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \varepsilon \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{u}_j \rangle^l \langle \varepsilon \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_p}{\sigma_\varepsilon} \right) g_l \nabla \langle \varepsilon \rangle^l \right] + \frac{\langle \varepsilon \rangle^l}{\langle k \rangle^l} \left[ c_1 P_{kp} + c_1 c_3 (G_{kp}^T + G_{kp}^S) + c_2 G_{kp} - c_2 \rho_l g_l \langle \varepsilon \rangle^l \right] \end{aligned} \quad (\text{II.116})$$

Comme Pedras et de Lemos, les constantes du modèle macroscopique  $k$ - $\varepsilon$  sont prises égales à celles du modèle microscopique – équations (II.34), (II.35) et (II.36).

Pour une discussion plus détaillée de la modélisation macroscopique de la turbulence dans les milieux poreux, le lecteur pourra se reporter aux références [22,31,32].

## II.2.h Conditions aux limites

Nous n'avons pas apporté de modifications aux conditions aux limites utilisées dans la version 4 du modèle SOLAR, utilisé depuis plus de quinze ans à l'IJL pour simuler le procédé de refusion à l'arc sous vide.

Sur l'axe du lingot, une condition de symétrie est appliquée. Concernant le refroidissement entre le lingot et le creuset, les conditions appliquées sont données par Chapelle et al. dans [33]. Elles sont exprimées par une condition de Fourier et les coefficients de transfert correspondant tiennent compte de la résistance de contact métal/creuset et du rayonnement dans l'espace annulaire créé par le retrait du lingot. La distribution de température dans le creuset en cuivre est calculée par la méthode des volumes finis en considérant la conduction radiale et axiale de manière transitoire. Par ailleurs, le calcul du transfert de chaleur entre le creuset et l'eau de refroidissement prend en considération le débit d'eau, ainsi que les mécanismes d'ébullition nucléée si nécessaire. Les autres conditions aux limites sont données par Hans dans [1] et Quatravaux dans [34]. Notons simplement que, concernant la modélisation de la turbulence, des fonctions de parois sont utilisées afin de tenir compte de la sous-couche limite laminaire à proximité du creuset.

## II.2.i Résumé des équations de conservation et principe du couplage avec les modèles de microségrégation

Le tableau II.3 regroupe toutes les équations de conservation établies pour modéliser la solidification d'un alliage métallique au cours de la refusion VAR.

Afin de résoudre ces équations, nous avons introduit d'après Založnik et Combeau [8] un schéma de « splitting », où dans une première étape, l'étape de transport (représentée dans la suite par l'exposant  $tr$ ), les équations de transport sont intégrées globalement sur

tout le domaine de calcul en négligeant la germination et les termes de croissance. Ensuite, dans une seconde étape, l'*étape de croissance* (représentée dans la suite par l'exposant  $gr$ ), les contributions dues à la germination et à la croissance des grains sont intégrés localement grâce aux modèles de microségrégation (cf. §0), initialisés par les solutions de l'étape de transport.

Cela signifie que pour intégrer l'équation :

$$\frac{\partial \psi}{\partial t} = A\psi + B\psi \quad (\text{II.117})$$

où les opérateurs  $A$  et  $B$  représentent l'advection et la croissance respectivement, nous utilisons le schéma de « splitting » suivant :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \psi^{tr}}{\partial t} &= A\psi^{tr}, & \psi^{tr}(t_0) &= \psi_0 & \text{sur } [t_0, t_0 + \Delta t] \\ \frac{\partial \psi^{gr}}{\partial t} &= B\psi^{gr}, & \psi^{gr}(t_0) &= \psi^{tr}(t_0 + \Delta t) & \text{sur } [t_0, t_0 + \Delta t] \end{aligned} \quad (\text{II.118})$$

La valeur finale de l'intégration est donnée ensuite par  $\psi^{gr}(t_0 + \Delta t)$ .

Pour une discussion détaillée sur la justification de ce schéma de « splitting », le lecteur se reportera aux références [8,9].

**TABLEAU II.3** – Les équations de conservation macroscopiques établies pour modéliser la solidification d'un lingot VAR

### Masse totale

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) = 0 \quad (\text{II.61})$$

### Quantité de mouvement

$$\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0 \quad (\text{II.63})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \\ = -g_l \nabla \langle \bar{p}_l \rangle^l + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + {}^T (\nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \right] \right\} + g_l \langle \bar{\rho}_l \rangle^l \mathbf{g} + g_l \langle \mathbf{F}_{el} \rangle^l \\ - \left( \frac{g_l^2 \mu}{K} + g_l^3 \frac{\rho F |\langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l|}{K^{1/2}} \right) \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (\text{II.83})$$

### Énergie

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l + \rho_s g_s \langle \bar{h}_s \rangle^s) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{h}_l \rangle^l) = \nabla \cdot [(\lambda + g_l \lambda_l) \nabla \bar{T}] \quad (\text{II.95})$$

**TABLEAU II.3** – (suite)**Masse d'un constituant  $i$** 

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \omega_l^i \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \omega_l^i \rangle^l \right) = \nabla \cdot \left[ (D_l + D_p) g_l \nabla \langle \omega_l^i \rangle^l \right] + J_l^\Gamma + J_l^j \quad (\text{II.97})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_s g_s \langle \omega_s^i \rangle^s \right) = J_s^\Gamma + J_s^j \quad (\text{II.100})$$

**Densité de grains**

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \dot{N}^\phi \quad (\text{II.102})$$

**Modèle  $k$ - $\varepsilon$** 

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle k \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle k \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_p}{\sigma_k} \right) g_l \nabla \langle k \rangle^l \right] + P_{kp} + G_{kp}^T + G_{kp}^S - \frac{2\mu g_l^2}{K} \langle k \rangle^l - \rho g_l \langle \varepsilon \rangle^l \end{aligned} \quad (\text{II.109})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l g_l \langle \varepsilon \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \varepsilon \rangle^l \right) = \\ \nabla \cdot \left[ \left( \mu + \frac{\mu_p}{\sigma_\varepsilon} \right) g_l \nabla \langle \varepsilon \rangle^l \right] + \frac{\langle \varepsilon \rangle^l}{\langle k \rangle^l} \left[ c_1 P_{kp} + c_1 c_3 (G_{kp}^T + G_{kp}^S) - c_2 \frac{2\mu g_l^2}{K} \langle k \rangle^l - c_2 \rho_l g_l \langle \varepsilon \rangle^l \right] \end{aligned} \quad (\text{II.116})$$

$$c_\mu = 0,09 \quad c_1 = 1,44 \quad c_2 = 1,92 \quad c_3 = \tanh \left( \frac{\bar{u}_z}{\sqrt{\bar{u}_r^2 + \bar{u}_\theta^2}} \right) \quad \sigma_k = 1,0 \quad \sigma_\varepsilon = 1,3 \quad (\text{II.34})$$

$$Pr_t = 0,85 \quad Sc_t = 0,7 \quad (\text{II.35})$$

$$(\text{II.36})$$

**II.3 Modélisation de la microségrégation**

Au cours de l'étape de croissance (cf. §II.2.i), les fractions liquide et solide, les compositions des phases liquide et solide et la température sont déterminées soit en appliquant la règle des bras de levier (§II.3.a), soit grâce à un modèle cinétique de croissance des grains qui tient compte de la diffusion restreinte des solutés (§II.3.b) [8].

La croissance des grains est contrôlée par la diffusion des solutés et, par conséquent, nous pouvons supposer l'équilibre thermodynamique atteint à l'interface. De plus, du fait de la valeur élevée du nombre de Lewis ( $Le = \lambda / (\rho_c p D)$ ) pour les métaux, nous supposons l'équilibre thermique à l'échelle du VER :

$$\langle \bar{T}_l \rangle^l = \langle \bar{T}_s \rangle^s = \bar{T} \quad (\text{II.119})$$

Les compositions à l'interface sont liées à la température par un diagramme de phase multiconstitué simplifié où la température de liquidus est décrite par une dépendance linéaire avec les titres massiques en éléments d'alliage, les pentes de liquidus  $m_L^i$  et les coefficients de partage  $k_p^i$  étant supposés constants.

Une température de fin de solidification  $T_{sol0}$  est prédéfinie : quand cette température est atteinte et qu'il reste du liquide, la solidification est modélisée comme un point eutectique multiconstitué.

De plus, la température et la fraction solide dans le VER sont liées à l'enthalpie de mélange par la définition  $\bar{h}_m = g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l + g_s \langle \bar{h}_s \rangle^s$  et par des relations simplifiées d'état thermodynamique où la dépendance de l'enthalpie par rapport à la composition est négligée :

$$h_s = c_p T \quad h_l = c_p T + L_f \quad (\text{II.120})$$

En utilisant ces relations thermodynamiques, nous exprimons le lien entre le transfert de chaleur et le changement de phase par :

$$h_m = c_p T + (1 - g_s) L_f \quad (\text{II.121})$$

où l'enthalpie  $h_m$  est déterminée par l'équation de conservation de l'énergie (II.95).

### II.3.a Bras de levier

L'utilisation de la règle du bras de levier pour calculer les compositions des phases liquide et solide suppose que la diffusion dans les deux phases est infiniment rapide. Le modèle emploie une méthode classique basée sur l'enthalpie de mélange et l'emploi d'un modèle de germination est alors inutile [9].

Nous avons distingué quatre cas en fonction de la valeur de  $h_m$  par rapport à  $h_{liq}$ ,  $h_{sol}$  et  $h_{liq0}$  :

$$h_{liq} = c_p \left( T_m + \sum_i m_L^i [\bar{\omega}_m^i]^r \right) + L_f \quad (\text{II.122})$$

$$h_{sol} = c_p \left( T_m + \sum_i \frac{m_L^i}{k_p^i} [\bar{\omega}_m^i]^r \right) \quad (\text{II.123})$$

$$h_{liq0} = c_p T_{sol0} + (1 - [g_s]^r) L_f \quad (\text{II.124})$$

- Cas 1 :  $h_m > h_{liq}$

L'alliage est totalement liquide et on a :

$$[g_s]^{gr} = 0 \quad \text{et} \quad \bar{T} = \frac{[\bar{h}_m]^r - L_f}{c_p} \quad (\text{II.125})$$

- Cas 2 :  $h_{liq} \geq h_m$  et  $h_{sol} > h_{liq0}$

Il s'agit de la solidification primaire. La fraction solide, la température locale, et les compositions des phases liquide et solide sont calculées à partir de l'enthalpie de mélange  $\bar{h}_m$  et de la composition de mélange  $[\bar{\omega}_m^i]^{gr}$ . En notant  $n_{sol}$  le nombre de solutés, nous résolvons un système composé de  $n_{sol} + 2$  équations :

- la relation (II.119) :

$$\bar{h}_m = c_p \bar{T} + (1 - [g_s]^{gr}) L_f \quad (II.126)$$

- la règle des bras de levier pour les  $n_{sol}$  solutés :

$$[\omega_l^i]^{gr} = \frac{[\omega_m^i]^{gr}}{1 + (k_p^i - 1)[g_s]^{gr}} \quad (II.127)$$

- et une équation supplémentaire décrivant la pente de liquidus linéarisée :

$$\bar{T} = T_m + \sum_i m_L^i \left[ \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right]^{gr} \quad (II.128)$$

où  $T_m$  est la température de fusion de la base de l'alliage pure.

En substituant les variables dans les équations (II.126) et (II.127), une équation du type  $F(g_s) = 0$  est obtenue :

$$L_f [g_s]^{gr} - c_p \sum_i \frac{m_L^i \bar{\omega}_m^i}{1 + (k_p^i - 1)[g_s]^{gr}} + \bar{h}_m - c_p T_m - L_f = 0 \quad (II.129)$$

Cette équation est résolue par la méthode de la sécante [35].

La composition de la phase liquide est alors calculée à partir de l'équation (II.127) et la température grâce à la relation (II.128).

La composition de la phase solide est déterminée par :

$$\left[ \langle \bar{\omega}_s^i \rangle^s \right]^{gr} = k_p^i \left[ \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right]^{gr} \quad (II.130)$$

- Cas 3 :  $h_{liq0} \geq h_m > h_{sol}$

Dans ce cas, nous considérons que la solidification est quasi eutectique. De plus, nous connaissons a priori la température de fin de solidification  $T_{sol0}$  et calculons par conséquent la fraction solide directement depuis :

$$[g_s]^{gr} = 1 - \frac{\bar{h}_m - c_p T_{sol0}}{L_f} \quad (II.131)$$

Comme dans le cas précédent, les compositions sont calculées par les relations (II.127) et (II.130).

- Cas 4 :  $h_m < h_{sol}$

L'alliage est totalement solide et on a :

$$[g_s]^{gr} = 1 \text{ et } T = \frac{h_m}{c_p} \quad (\text{II.132})$$

### II.3.b Modèle cinétique de croissance

Le modèle cinétique décrit dans cette partie provient des références [8,9].

A la différence de la règle des bras de levier, ce modèle tient de la diffusion restreinte de chaque soluté dans les phases liquide et solide. Quatre cas sont distingués en fonction de l'enthalpie de mélange et de la densité de germes  $N$ . De plus, nous définissons :

$$h_{sol0} = c_p T_{sol0} \quad (\text{II.133})$$

- Cas 1 :  $N = 0$  et  $h_m > h_{liq0}$

Comme précédemment, l'alliage est totalement liquide et on a :

$$[g_s]^{gr} = 0 \text{ et } T = \frac{\bar{h}_m - L_f}{c_p} \quad (\text{II.134})$$

- Cas 2 :  $N > 0$  et  $h_m > h_{liq0}$

Il s'agit de la solidification primaire où nous tenons compte de la diffusion restreinte des solutés dans les phases liquide et solide.

D'après le schéma de « splitting » que nous avons défini – éq. (II.118), nous devons intégrer :

$$\frac{\partial}{\partial t} [g_s]^{gr} = \frac{\Gamma_s}{\rho_{ref}} \quad (\text{II.135})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ [g_s]^{gr} \left[ \langle \omega_s^i \rangle^s \right]^{gr} \right\} = \frac{1}{\rho_{ref}} (J_s^{i,j} + J_s^{i,\Gamma}) \quad (\text{II.136})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left\{ [g_l]^{gr} \left[ \langle \omega_l^i \rangle^l \right]^{gr} \right\} = \frac{1}{\rho_{ref}} (J_l^{i,j} + J_l^{i,\Gamma}) \quad (\text{II.137})$$

sur  $[t_0, t_0 + \Delta t]$ , où les valeurs initiales sont les solutions de l'étape de transport.

Le transfert de soluté à l'interface causé par le changement de phase est [8] :

$$J_k^{i,\Gamma} = \omega_k^{i*} \Gamma_k \quad (\text{II.138})$$

où  $\omega_k^{i*}$  est la concentration à l'interface solide-liquide.

La diffusion des solutés à l'interface du grain est modélisée par un modèle simplifié qui estime le flux de diffusion à l'interface en se basant sur la différence de concentration à l'interface  $\omega_k^{i*}$  et la concentration moyenne, et une longueur de diffusion  $\delta_k^i$ . Le flux de diffusion dans la phase  $k$  est [8] :

$$J_k^{i,j} = \frac{S_v \rho_{ref} D_k^i}{\delta_k^i} \left( \omega_k^{i*} - \left[ \langle \bar{\omega}_k^i \rangle^k \right]^{gr} \right) \quad (\text{II.139})$$

où  $S_v$  est la densité d'aire interfaciale ( $S_v = A_i/V_0$ ).

Elle est modélisée par l'expression suivante [7] :

$$S_v = \begin{cases} \pi d_g^2 N & g_s < g_s^{contact} \\ \pi d_g^2 N \left( \frac{g_s}{g_s^{contact}} \right)^{1/3} \left( \frac{1-g_s}{1-g_s^{contact}} \right)^{\frac{1-g_s^c}{g_s^c}} & g_s \geq g_s^{contact} \end{cases} \quad (\text{II.140})$$

où  $g_s^{contact}$  est une donnée du modèle. Avant que les grains entrent en contact ( $g_s < g_s^{contact}$ ), la densité d'aire interfaciale est égale à l'expression valable pour des sphères car nous avons supposé que les grains sont globulaires. Pour  $g_s \geq g_s^{contact}$ , le coefficient ajouté permet de tenir compte de la diminution de  $S_v$  à cause de la réunion des interfaces solide/liquide dans le VER.

D'après la référence [7], les longueurs de diffusion sont estimées à l'aide d'une corrélation qui tient compte de la convection.

$$\delta_l^i = \min \left[ \frac{d_g}{2} \left( \frac{1}{1-(1-g_l)^{1/3}} + \frac{(Sc^i)^{1/3} Re^a}{3g_l} \right)^{-1}, \frac{d_g}{2} \right] \quad (\text{II.141})$$

$$\delta_s^i = \frac{d_g}{10} \quad (\text{II.142})$$

où :

$$Sc^i = \frac{\mu_l}{\rho D_l^i} \quad \text{et} \quad a = \frac{2Re^{0,28} + 4,65}{3(Re^{0,28} + 4,65)} \quad (\text{II.143})$$

Les expressions précédentes employées pour le calcul de  $J_k^{i,j}$  et  $J_k^{i,\Gamma}$  nécessitent encore les flux de changement de phase ( $\Gamma_l$  et  $\Gamma_s$ ), les compositions à l'interface ( $\omega_l^{i*}$  et  $\omega_s^{i*}$ ) et la température locale. Ces quantités sont déterminées par la cinétique de croissance des grains.

Un bilan de masse dans le VER donne :

$$\Gamma_s = -\Gamma_l \quad (\text{II.144})$$

Le transport de soluté à l'interface du grain qui contrôle la croissance des grains est décrit par le bilan de soluté suivant :

$$J_s^{i,\Gamma} + J_s^{i,j} + J_l^{i,\Gamma} + J_l^{i,j} = 0 \quad (\text{II.145})$$

En utilisant les expressions définies pour les flux  $J_k^{i,j}$  (II.138) et  $J_k^{i,\Gamma}$  (II.139), le bilan de masse à l'interface (II.144) ainsi que l'équilibre à l'interface :

$$\omega_s^{i*} = k_p^i \omega_l^{i*} \quad (\text{II.146})$$

nous pouvons développer le bilan de soluté à l'interface solide-liquide de l'équation (II.145) en :

$$(k_p^i - 1) \omega_l^{i*} \frac{\Gamma_s}{\rho_{ref}} + \omega_l^{i*} \left( \frac{S_v D_l^i}{\delta_l^i} + k_p^i \frac{S_v D_s^i}{\delta_s^i} \right) = \frac{S_v D_l^i}{\delta_l^i} \left[ \langle \omega_l^i \rangle^l \right]^{gr} + \frac{S_v D_s^i}{\delta_s^i} \left[ \langle \omega_s^i \rangle^s \right]^{gr} \quad (\text{II.147})$$

Pour un micro pas de temps  $\delta t$ , nous reformulons le lien entre le transfert de chaleur et la croissance des grains selon :

$$h_m - h_m^0 = c_p \left( T_f + \sum_i m_L^i \omega_l^{i*} - T^0 \right) - ([g_s]^r - g_s^0) L_f - \frac{\Gamma_s}{\rho_{ref}} L_f \delta t \quad (\text{II.148})$$

Finalement, nous pouvons maintenant déterminer  $\Gamma_s$  et  $\omega_l^{i*}$  en résolvant le système composé des  $n_{sol} + 1$  équations non-linéaires (II.147) et (II.148) :

$$\begin{cases} A^i \Gamma_s \omega_l^{i*} + B \omega_l^{i*} = D^i & i = 1, \dots, n \\ E \Gamma_s + \sum_{i=1}^n F^i \omega_l^{i*} = G \end{cases} \quad (\text{II.149})$$

où :

$$\begin{aligned} A^i &= \frac{k_p^i - 1}{\rho} & B^i &= \left( \frac{S_v D_l^i}{\delta_l^i} - k_p^i \frac{S_v D_s^i}{\delta_s^i} \right) & D^i &= [\omega_l^i]^{gr} \frac{S_v D_l^i}{\delta_l^i} - [\omega_s^i]^{gr} \frac{S_v D_s^i}{\delta_s^i} \\ E &= -\frac{L_f \delta t}{\rho} & F^i &= c_p m_L^i & G &= h_m - h_m^0 - c_p (T_f - T^0) + ([g_s]^r - g_s^0) L_f \end{aligned} \quad (\text{II.150})$$

Ce système non-linéaire est résolu par un solveur linéaire et une procédure itérative simple. La détermination du couple  $(\omega_l^{i*}, \Gamma_s)$  met également en jeu une procédure itérative. Le lecteur peut se reporter à [8] pour connaître dans le détail la procédure de résolution utilisée.

- Cas 3 :  $h_{sol0} < h_m < h_{liq0}$

Ce cas correspond à la fin de la solidification : le chemin de solidification est « coupé » à une température prédéfinie  $T_{sol0}$  et, à partir de cette température, le reste de la solidification a lieu à température constante comme une croissance quasi-eutectique.

La diffusion est négligée et, par conséquent, le bilan à l'interface se réduit à  $J_s^{i,\Gamma} = -J_l^{i,\Gamma}$ . La fraction solide est calculée directement à partir de :

$$[g_s]^{gr} = 1 - \frac{h_m - c_p T_{sol0}}{L_f} \quad \Gamma_s = \rho \frac{[g_s]^{gr} - [g_s]^r}{\delta t} \quad (\text{II.151})$$

- Cas 4 :  $h_m < h_{sol0}$

L'alliage est totalement solide et on a :

$$[g_s]^{gr} = 1 \text{ et } T = \frac{h_m}{c_p} \quad (\text{II.152})$$

## II.4 Résolution numérique

La méthode de résolution numérique utilisée est la méthode des volumes finis [10]. De par la symétrie cylindrique, les calculs sont effectués sur une demi-coupe du lingot avec un maillage orthogonal. Un affinement du maillage peut être appliqué aux nœuds les plus proches de la surface libre et de la paroi latérale ; il consiste à appliquer une raison géométrique donnée sur la distance entre les nœuds des volumes de contrôle.

Les équations sont résolues de manière implicite et la résolution du couplage entre les champs de vitesse et de pression est réalisée par l'algorithme SIMPLEC en utilisant un maillage décalé pour la vitesse.

Le modèle simule la croissance continue du lingot durant toute la refusion en utilisant la technique de scission-croissance du maillage mise au point par Quatravaux [34,36].

Comme nous l'avons présenté dans §II.2.i, le schéma de « splitting » développé par Založnik et al. [8,9] est employé pour coupler les termes d'advection et les termes de nucléation et de croissance. Comme nous utilisons la méthode des volumes finis, les termes de croissance et/ou de nucléation sont intégrés dans chaque volume de contrôle.

## II.5 Conclusion

Un modèle décrivant la solidification d'un lingot VAR a été développé. Par rapport à la modélisation initiale de la solidification dans SOLAR, différents points ont été améliorés :

- Les équations de conservation ont été reformulées selon la méthode de prise de moyenne volumique. Initialement, les équations résolues dans SOLAR correspondaient à celles obtenues par l'approche de type « loi de mélange » [1]. Les deux approches aboutissent à des équations de conservation similaires. Cependant, la méthode de prise de moyenne volumique a l'avantage de suivre un mécanisme formel qui montre l'obtention des différents termes des équations macroscopiques à partir des équations microscopiques. De plus, la technique de prise de moyenne est mieux appropriée pour coupler la simulation des phénomènes de transport à l'échelle macroscopique et la simulation des phénomènes physiques à l'échelle microscopique liés à la solidification [37].
- Les transports d'énergie et de masse de solutés sont maintenant couplés fortement par l'utilisation du schéma de « splitting » de Založnik et al. [8,9]. Initialement, ces deux équations étaient liées par un chemin de solidification unique [1] : une relation du type  $T = F(g_l)$  était appliquée pour la totalité du lingot, quelle que soient les teneurs moyennes locales en solutés.

- Enfin, la modélisation de la microségrégation a été perfectionnée en adoptant le modèle décrit dans [7,8]. Ainsi, le modèle peut tenir compte de la diffusion restreinte des solutés au cours de la solidification et mettre en évidence son influence sur la macroségrégation.

## II.6 Bibliographie

- [1] S. Hans, Modélisation des transferts couplés de chaleur, de soluté et de quantité de mouvement lors de la refusion à l'arc sous vide (VAR) - Application aux alliages de titane, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995.
- [2] A. Jardy, D. Ablitzer, Solar: Numerical software to optimize vacuum arc remelting operations, *Rare Metal Mat. Eng.* 35 (2006) 119-122.
- [3] B. Goyeau, P. Bousquet-Melou, D. Gobin, M. Quintard, F. Fichot, Macroscopic modeling of columnar dendritic solidification, *Computational & Applied Mathematics.* 23 (2004) 381-400.
- [4] D.A. Drew, S.L. Passman, *Theory of Multicomponent Fluids*, Springer, 1999.
- [5] A.I. Ciobanas, Y. Fautrelle, Ensemble averaged multiphase Eulerian model for columnar/equiaxed solidification of a binary alloy: I. The mathematical model, *Journal of Physics D: Applied Physics.* 40 (2007) 3733-3762.
- [6] A.I. Ciobanas, Y. Fautrelle, Ensemble averaged multi-phase Eulerian model for columnar/equiaxed solidification of a binary alloy: II. Simulation of the columnar-to-equiaxed transition (CET), *Journal of Physics D: Applied Physics.* 40 (2007) 4310-4336.
- [7] J. Ni, C. Beckermann, Modeling of Globulitic Alloy Solidification with Convection, *Journal of Materials Processing & Manufacturing Science.* 2 (1993) 217-231.
- [8] M. Zaloznik, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part I - Model and solution scheme, *Computational Materials Science.* 48 (2010) 1-10.
- [9] M. Zaloznik, A. Kumar, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part II - Application of the model, *Computational Materials Science.* 48 (2010) 11-21.
- [10] S.V. Patankar, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Taylor & Francis Inc, 1980.
- [11] D.M. Stefanescu, *Science and Engineering of Casting Solidification*, 2nd ed., Springer, 2010.
- [12] R.K. Zeytounian, Joseph Boussinesq and his approximation: a contemporary view, *Comptes Rendus Mecanique.* 331 (2003) 575-586.
- [13] O. Reynolds, On the Dynamical Theory of Incompressible Viscous Fluids and the Determination of the Criterion, *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences.* 186 (1895) 123-164.
- [14] D.C. Wilcox, *Turbulence Modeling for CFD*, D C W Industries, 2006.
- [15] W. Rodi, *Turbulence Models and Their Application in Hydraulics: A State-of-the-Art Review*, Rev Ed, Taylor & Francis, 1993.

- [16] A. Lallemand, *Ecoulement des fluides - Dynamique des fluides réels*, Techniques de l'ingénieur. BE 8 157 (s. d.).
- [17] B.E. Launder, D.B. Spalding, The numerical computation of turbulent flows, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*. 3 (1974) 269-289.
- [18] R. Henkes, F.F. Van Der Vlugt, C.J. Hoogendoorn, Natural-convection flow in a square cavity calculated with low-Reynolds-number turbulence models, *International journal of heat and mass transfer*. 34 (1991) 377-388.
- [19] *Fluent 6.3 user's guide*, 2006.
- [20] S. Whitaker, *The method of volume averaging*, Springer, 1999.
- [21] M.H.J. Pedras, M.J.S. de Lemos, Macroscopic turbulence modeling for incompressible flow through undeformable porous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 44 (2001) 1081-1093.
- [22] M.J.S. de Lemos, *Turbulence in Porous Media: Modeling And Applications*, Elsevier Science Ltd, 2006.
- [23] P. Bousquet-Melou, B. Goyeau, M. Quintard, F. Fichot, D. Gobin, Average momentum equation for interdendritic flow in a solidifying columnar mushy zone, *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 45 (2002) 3651-3665.
- [24] M.J.S. de Lemos, L.A. Tofaneli, Modeling of double-diffusive turbulent natural convection in porous media, *International Journal of Heat and Mass Transfer*. 47 (2004) 4233-4241.
- [25] L.A. Tofaneli, M.J.S. de Lemos, Double-diffusive turbulent natural convection in a porous square cavity with opposing temperature and concentration gradients, *International Communications in Heat and Mass Transfer*. 36 (2009) 991-995.
- [26] C. Beckermann, R. Viskanta, Double-diffusive convection during dendritic solidification of a binary mixture, *PCH. Physicochemical hydrodynamics*. 10 (1988) 195-213.
- [27] B.V. Antohe, J.L. Lage, A general two-equation macroscopic turbulence model for incompressible flow in porous media, *International journal of heat and mass transfer*. 40 (1997) 3013-3024.
- [28] P.J. Prescott, F.P. Incropera, Effect of turbulence on solidification of a binary metal alloy with electromagnetic stirring, *Journal of Heat Transfer*. 117 (1995) 716-724.
- [29] P.J. Prescott, F.P. Incropera, Convection heat and mass transfer in alloy solidification, *Advances in heat transfer*. 28 (1996) 231-338.
- [30] A. Nakayama, F. Kuwahara, Macroscopic turbulence model for flow in a porous medium, *Journal of Fluids Engineering, Transactions of the ASME*. 121 (1999) 427-433.
- [31] J.L. Lage, M.J.. de Lemos, D.A. Nield, Modelling turbulence in porous media, in: *Transport Phenomena in Porous Media II*, Pergamon, 2002.
- [32] D.A. Nield, Some pitfalls in the modelling of convective flows in porous media, *Transport in porous media*. 43 (2001) 597-601.
- [33] P. Chapelle, R.M. Ward, A. Jardy, V. Weber, J.P. Bellot, M. Minvielle, Lateral Boundary Conditions for Heat Transfer and Electrical Current Flow during Vacuum Arc Remelting of a Zirconium Alloy, *Metall and Materi Trans B*. 40 (2008) 254-262.
- [34] T. Quatravaux, *Evolution de la modélisation du procédé VAR - Contribution à la description de la dispersion inclusionnaire dans le puits liquide et à la prévention de défauts de solidification*, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.

- 
- [35] R.L. Burden, J.D. Faires, Numerical Analysis, Cengage Learning, 2010.
- [36] T. Quatravaux, S. Ryberon, S. Hans, A. Jardy, B. Lusson, P.E. Richy, et al., Transient VAR ingot growth modelling: application to specialty steels, *Journal of materials science*. 39 (2004) 7183–7191.
- [37] J. Ni, F.P. Incropera, Extension of the continuum model for transport phenomena occurring during metal alloy solidification–I. The conservation equations, *International journal of heat and mass transfer*. 38 (1995) 1271–1284.



### III Refusions VAR expérimentales des alliages de zirconium M5<sup>®</sup> et Zircaloy-4

Pour cette étude, deux essais industriels de refusion à l'arc sous vide d'alliages de zirconium ont été réalisés sur le site de CEZUS à UGINE. Le premier essai a porté sur la refusion d'une électrode d'environ 2,6 tonnes en alliage M5<sup>®</sup> (Zr-1Nb-0,14O). Pour le second essai, une électrode de mêmes dimensions en Zircaloy-4 (Zr-1,3Sn-0,2Fe-0,13O-0,1Cr) a été refondue.

Contrairement aux électrodes primaires utilisées habituellement en production, les compacts formant les électrodes refondues pour ces essais étaient uniquement composés de copeaux métalliques d'une seule nuance d'alliage (figure III.1). Ces électrodes (figure III.2) ont été spécialement assemblées afin d'utiliser une électrode la plus homogène possible, le but étant de s'assurer que les variations de composition dans le lingot n'étaient pas la conséquence de différences de composition dans l'électrode. Leur tenue mécanique au cours des refusions a été bonne et les deux essais se sont déroulés sans incident.



**FIGURE III.1** – Un exemple de compact composé uniquement de copeaux métalliques d'alliage M5<sup>®</sup>.



**FIGURE III.2** – Électrode de l'essai M5<sup>®</sup> après l'étape de soudage par bombardement électronique.

Les consignes de fusion que nous avons définies spécifiquement pour ces essais étaient non standards. Elles sont présentées dans la première partie de ce chapitre.

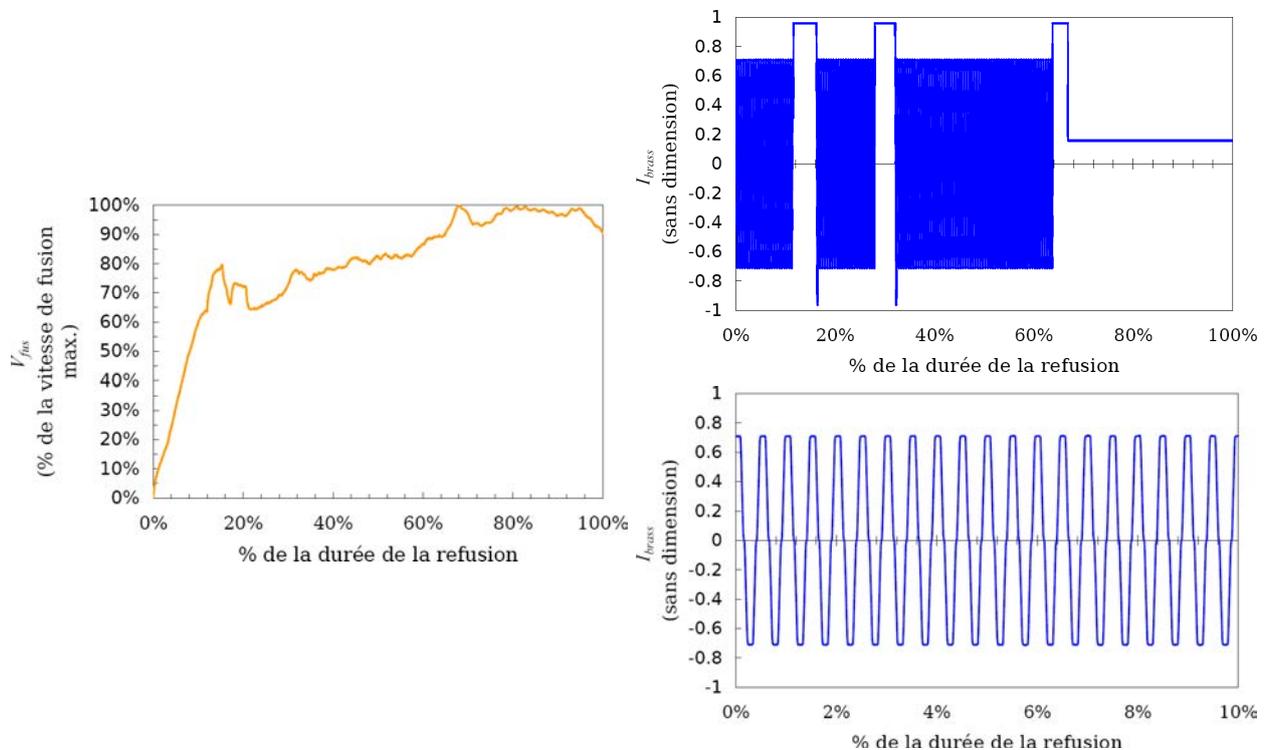
La seconde partie est consacrée à la description des plans de découpe et de prélèvement. Pour les deux lingots, une tentative de caractérisation de la microségrégation induite par la solidification a été menée. La méthode employée est décrite dans la troisième partie.

Enfin, la quatrième partie rassemble les résultats obtenus pour les deux lingots en termes de structure, micro et macroségrégation.

## III.1 Conditions opératoires

### III.1.a Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4

Pour des raisons de confidentialité, l'ensemble des conditions opératoires n'est pas donné dans ce mémoire. Néanmoins, les enregistrements de la vitesse de fusion et du courant de brassage électromagnétique sont représentés de manière adimensionnée dans la figure III.3.



**FIGURE III.3** – Enregistrement de la vitesse de fusion (à gauche) et du courant de brassage (en haut à droite) au cours de la refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4. Un agrandissement du brassage alterné est représenté en bas à droite.

La vitesse de fusion a été relativement constante tout au long de la refusion. Deux modes de brassage ont été appliqués successivement. La première moitié de la coulée a été effectuée en imposant un brassage alterné, i. e. le sens de brassage est inversé à chaque demi-période. Son intensité, i. e. la valeur de l'induction magnétique créée par les inducteurs externes, était relativement forte. La seconde moitié du lingot s'est solidifiée alors qu'un brassage unidirectionnel était utilisé. Son intensité était relativement faible : elle était 4,5 fois inférieure à celle du brassage alterné.

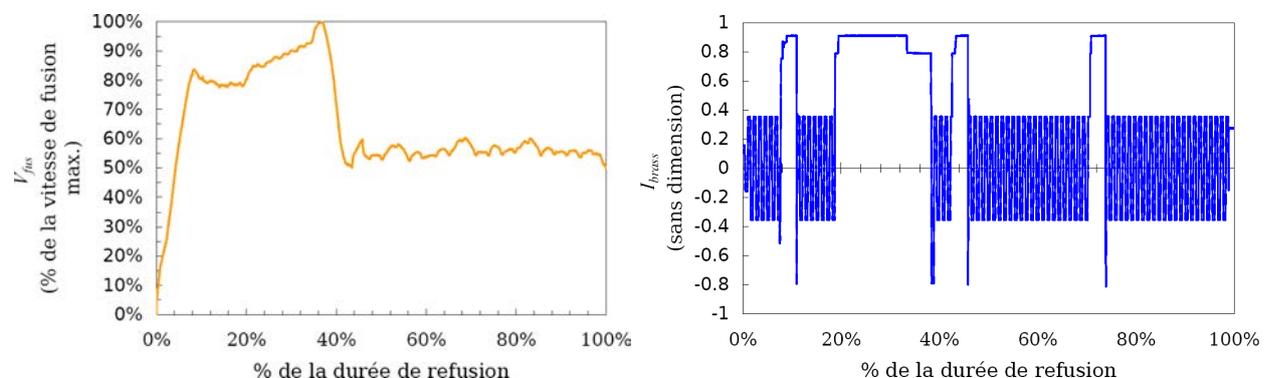
Au cours de la refusion, un brassage unidirectionnel de forte intensité a été appliqué momentanément à trois reprises dans le but de marquer le puits liquide en modifiant localement la structure du lingot.

### III.1.b Refusion expérimentale de l'alliage M5®

Comme pour la refusion de l'alliage Zy-4, les enregistrements de la vitesse de fusion et du courant de brassage sont représentés de manière adimensionnée dans la figure III.4.

La refusion de l'alliage M5® a été effectuée selon deux vitesses de fusions successives. La vitesse de la première moitié était approximativement 1,5 fois supérieure à celle de la seconde. Le brassage électromagnétique imposé était alterné. Par rapport au brassage alterné appliqué lors de la refusion de l'alliage Zy-4 (§III.1.a), son intensité est deux fois inférieure et sa période est trois fois plus longue.

Comme pour l'alliage Zy-4, un brassage unidirectionnel de forte intensité a été appliqué à quatre reprises dans le but de marquer le puits liquide. L'intensité du brassage appliqué durant ces périodes était environ 2,5 fois supérieure à celle appliquée durant le reste de la refusion. Le deuxième marquage a duré beaucoup plus longtemps que les autres. Par conséquent, une masse relativement importante du lingot s'est solidifiée alors qu'un brassage électromagnétique unidirectionnel était appliqué.



**FIGURE III.4** – Enregistrement de la vitesse de fusion (à gauche) et du courant de brassage (à droite) au cours de la refusion expérimentale de l'alliage M5®.

## III.2 Plan de prélèvement

Après avoir repéré une hauteur, les lingots ont été sectionnés radialement. Le schéma de la figure III.5 représente les sections réalisées sur le lingot M5®.

14 plaques d'environ 15 mm d'épaisseur ont été prélevées :

- Les plaques EP2, QP1, MP1, M1, MT1, QT1 et ET1 ont été utilisées pour réaliser des études métallographiques
- Les plaques EP1, QP2, MP2, M2, MT2, QT2 et ET2 ont permis d'effectuer des analyses chimiques.

La découpe du lingot en Zy-4 a été identique, à l'exception des plaques QP1 et QP2 qui n'ont pas été prélevées.

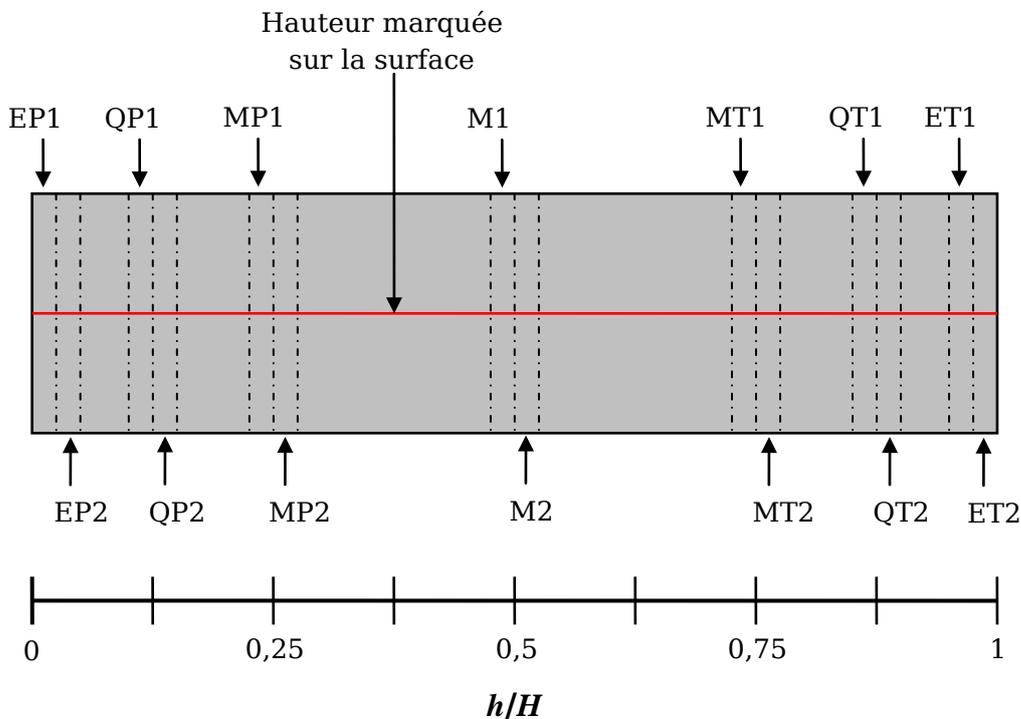
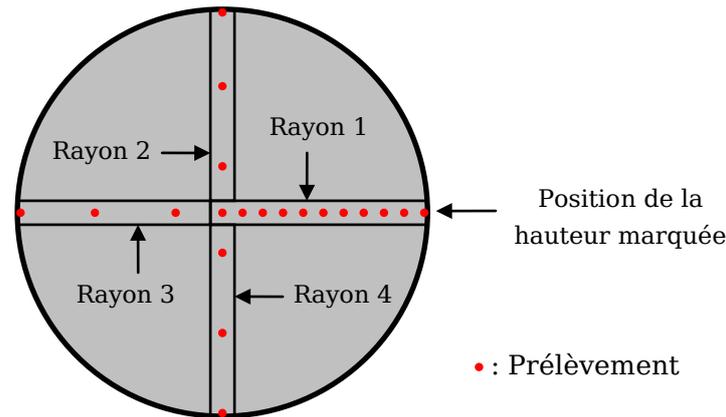


FIGURE III.5 – Plan de découpe du lingot M5®.

Pour chaque plaque destinée à la réalisation d'analyses chimiques, 20 prélèvements d'environ 80 mm<sup>3</sup> ont été effectués suivant deux lignes diamétralement opposées, le premier diamètre étant repéré grâce la hauteur marquée sur la surface du lingot. La position des prélèvements est représentée dans la figure III.6. Les éléments d'alliage métalliques (Sn, Nb, Fe, Cr) ont été dosés par spectroscopie par torche plasma et la composition en O a été mesurée par spectroscopie d'absorption infrarouge.

Par ailleurs, les parties restantes du lingot ont été coupées dans le sens de la longueur en suivant la hauteur repérée sur la surface. L'une des faces de découpe a été polie et a subi une attaque métallographique afin de révéler la structure du lingot et les marquages de puits liquide.



**FIGURE III.6** – Position des prélèvements sur les plaques EP1, QP2, MP2, M2, MT2, QT2 et ET2 pour la réalisation des analyses chimiques.

### III.3 Caractérisation de la microségrégation

Il est bien établi que la caractérisation expérimentale de la microségrégation peut permettre d'obtenir des informations importantes sur la redistribution de solutés au cours de la solidification (les coefficients de partage par exemple). De plus, des tailles de structures de solidification peuvent être évaluées.

Pour les alliages de zirconium, la problématique réside dans le fait que la ségrégation de solidification est affectée par la transformation de phase à l'état solide  $\beta \rightarrow \alpha$  qui a lieu au cours du refroidissement. Cette transformation conduit à la formation d'aiguilles  $\alpha$  (cf. §III.4.b) et entraîne une redistribution des solutés à l'échelle de la dizaine de  $\mu\text{m}$ , la taille des aiguilles variant notamment en fonction de la vitesse de refroidissement.

Dans le cadre de son stage de fin d'étude au centre de recherche de CEZUS, Bouffier a cherché à caractériser la microségrégation des lingots VAR obtenus par les deux refusions présentées précédemment. Cette étude s'est basée sur les travaux de Zollinger [1-3] qui a étudié, en utilisant la microsonde de Castaing en mode défocalisé, la microségrégation due à la solidification pour des alliages de base TiAl.

Comme pour les alliages de zirconium, une transformation allotropique a lieu lors du refroidissement des alliages de base TiAl. La défocalisation de la microsonde consiste à employer des tailles de sonde non-standard (5, 10 et 20  $\mu\text{m}$ ) dans le but de moyenniser la composition à l'échelle de la microstructure et de s'affranchir ainsi de l'effet de la transformation à l'état solide sur la ségrégation finale.

Pour les deux alliages M5<sup>®</sup> et Zy-4, la zone analysée a été prélevée sur la plaque ET1 (sommet du lingot) au niveau du centre du lingot. Son orientation est perpendiculaire aux grains colonnaires du dernier puits liquide (cf. §III.4.a) afin d'essayer de caractériser la microségrégation perpendiculairement à la direction de croissance des bras primaires de dendrites. La microsonde de Castaing utilisée est le modèle JXA 8100/8200 de la marque JOEL. Les points d'analyses ont été effectués à intervalles réguliers le long de lignes et de grilles.

Pour l'alliage Zy-4, une surface de 0,75 x 0,75 mm<sup>2</sup> a été analysée suivant une grille composée de 50 x 50 points de mesure (soit un pas de mesure de 15 µm) avec des tailles de sonde de 2 et 10 µm. De plus, trois séries de mesures ont été réalisées suivant une ligne de 1,31 mm : la première avec une taille de sonde de 2 µm et un intervalle de 2 µm (soit 655 points de mesure), la seconde avec une taille de sonde de 5 µm et un intervalle de 5 µm (soit 262 points de mesure) et la troisième avec une taille de sonde de 10 µm et un intervalle de 10 µm (soit 131 points de mesure).

Pour l'alliage M5<sup>®</sup>, une surface de 1,1 x 1,1 mm<sup>2</sup> a été analysée suivant une grille composée de 75 x 75 points de mesure (soit un pas de mesure de 15 µm) avec des tailles de sonde de 2 et 5 µm. De plus, deux séries de mesures ont été réalisées suivant une ligne de 1 mm : l'une avec une taille de sonde de 2 µm et un intervalle de 2 µm (soit 500 points de mesure) et l'autre avec une taille de sonde de 5 µm et un intervalle de 5 µm (soit 200 points de mesure).

## III.4 Résultats

### III.4.a Macrostructure

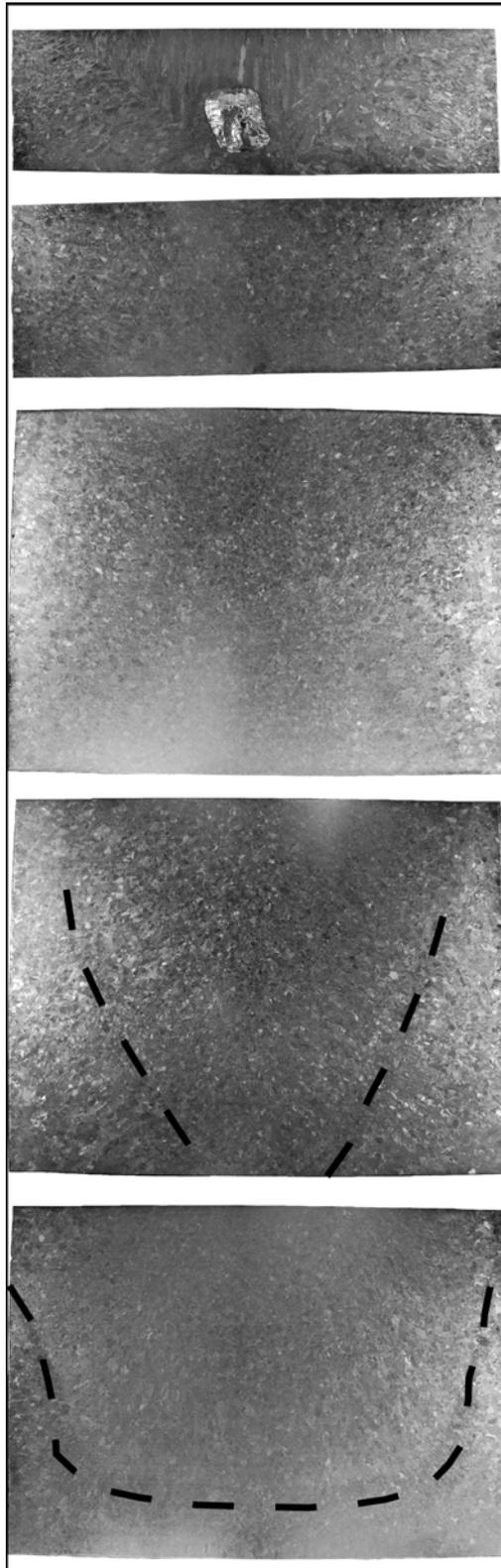
Les macrographies longitudinales des lingots Zy-4 et M5<sup>®</sup> sont représentées dans les figures III.7 et III.8 respectivement.

Les lingots sont majoritairement composés de grains de quelques centimètres orientés aléatoirement qui peuvent être assimilés à des grains équiaxes. Néanmoins, au pied et à la périphérie des lingots, les grains semblent être légèrement plus gros et plus spécifiquement orientés suivant le gradient thermique : ils peuvent être assimilés à des grains colonnaires. Pour les deux lingots, la position de la transition colonnaire équiaxe n'a pas pu être déterminée précisément.

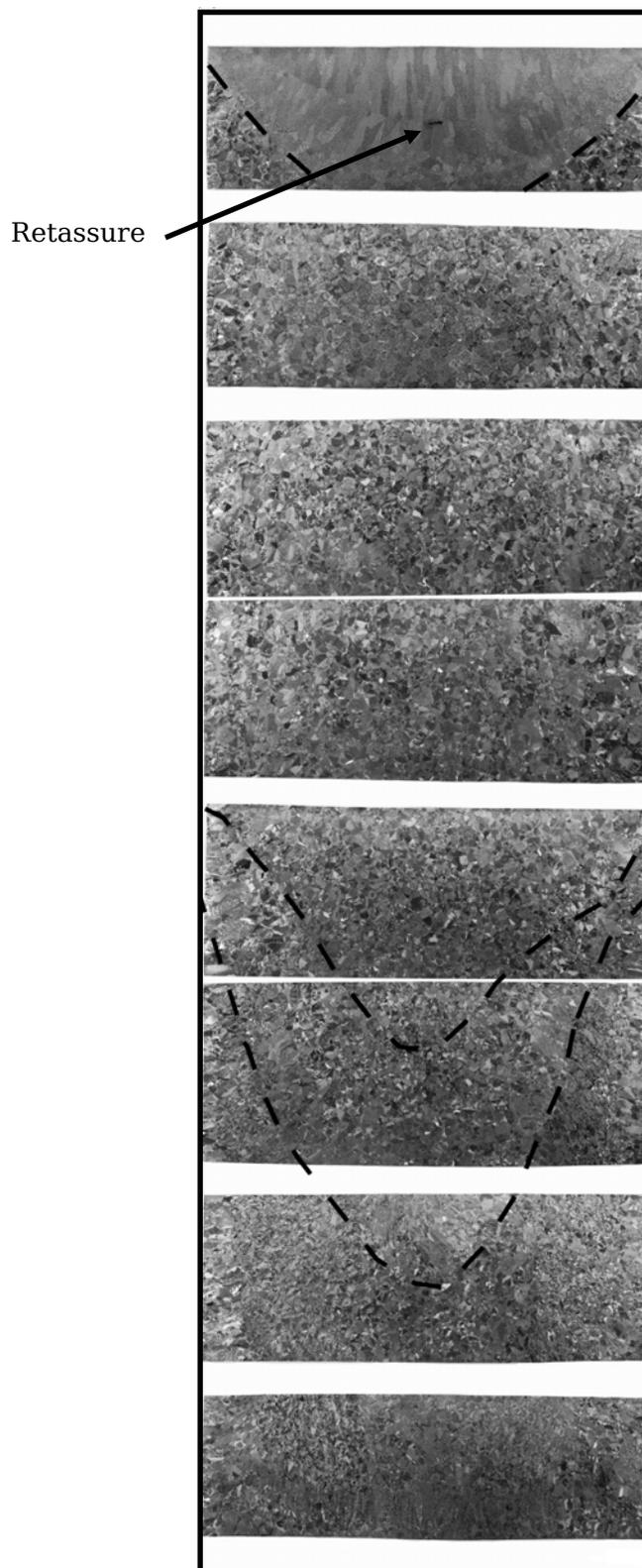
Au sommet, des grains colonnaires sont clairement visibles pour les deux alliages. Ils proviennent de la solidification du dernier puits liquide depuis la surface libre, juste après la coupure de l'arc électrique. On peut également observer la retassure sur les deux macrographies.

Les grains mentionnés précédemment font référence à ce qui est appelé couramment « grains ex- $\beta$  ». La phase  $\beta$  est la phase solide de cristallographie cubique centrée qui se forme lors de la solidification (cf. chapitre I, §I.1.a). Chaque grain ex- $\beta$  est constitué majoritairement d'aiguilles de phase  $\alpha$  qui se sont formées lorsque la température est passée sous la température de transus  $\beta$  lors du refroidissement du lingot. Pour l'alliage Zy-4, des composés intermétalliques formés par les éléments  $\beta$ -gènes ont vraisemblablement précipité entre ces aiguilles  $\alpha$ . Pour le M5<sup>®</sup>, les espaces inter-aiguilles sont probablement constitués de phase  $\beta$ -Zr hors équilibre et de composés intermétalliques Zr(Nb,Fe)<sub>2</sub>.

Cette microstructure aciculaire complique la localisation des joints des grains ex- $\beta$ . De plus, à cause de la taille relativement importante des grains ex- $\beta$  visibles sur la macrographie et de la différence entre les températures de solidus et de transus  $\beta$  (environ 900 °C), on peut s'interroger sur l'évolution de la structure au cours du refroidissement dans le domaine  $\beta$ . À notre connaissance, aucune étude précise portant sur ce sujet n'a été réalisée.



**FIGURE III.7** – Macrographie longitudinale du lingot Zircaloy-4. - - : Profils expérimentaux du puits liquide.



**FIGURE III.8** – Macrographie longitudinale du lingot M5<sup>®</sup>. - - : Profils expérimentaux du puits liquide.

Rappelons que l'application momentanée d'un brassage unidirectionnel de forte intensité a été utilisée pour marquer le puits liquide. Cette méthode diffère de la technique employée généralement qui consiste à placer dans l'électrode des inserts métalliques afin de réaliser un marquage chimique. Cependant, elle aurait induit une « pollution » du lingot secondaire ce qui n'était pas acceptable industriellement.

À l'exception du dernier puits liquide, seul deux changements dans la structure du lingot M5<sup>®</sup> peuvent être reliés à des profils de puits liquide parmi les quatre tentatives de marquage (cf. figure III.4). Ils correspondent respectivement à la fin du second marquage et au troisième marquage. Pour le lingot Zy-4, les deuxième et troisième marquages sont visibles sur la macrographie. Notons que pour cet essai nous n'observons pas le dernier puits liquide.

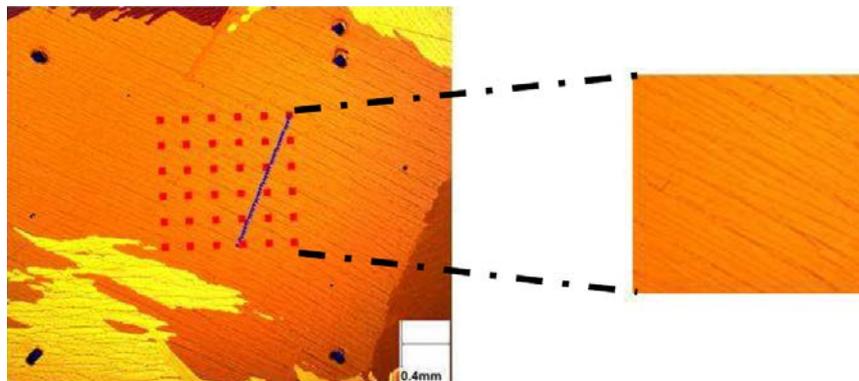
Pour chaque essai, le premier marquage n'est pas visible car l'à-coup de brassage a eu lieu au début de la refusion alors que la quantité de métal était faible.

Le marquage du puits par l'application d'un brassage unidirectionnel de forte intensité a donné des résultats relativement concluants pour l'alliage Zy-4 alors qu'ils sont plus contrastés pour le M5<sup>®</sup>. Comme nous le verrons dans la suite (chapitres IV et V), l'intervalle de solidification de l'alliage M5<sup>®</sup> est faible (~10 °C) par rapport à celui de l'alliage Zy-4 (~100 °C). Les changements momentanés des conditions opératoires ont affecté une zone du lingot plus fine pour le M5<sup>®</sup> que pour le Zy-4 et ainsi, une modification de la morphologie des structures de solidification est plus difficilement identifiable pour le M5<sup>®</sup> que pour le Zy-4.

### III.4.b Microségrégation

#### Alliage Zircaloy-4

La figure III.9 représente l'observation au microscope optique en lumière polarisée de l'échantillon prélevé au sommet du lingot (plaque ET1 – cf. §III.3). Une cartographie chimique de la zone identifiée par les points rouges a été réalisée avec la microsonde de Castaing en mode défocalisé (taille de sonde de 10µm).

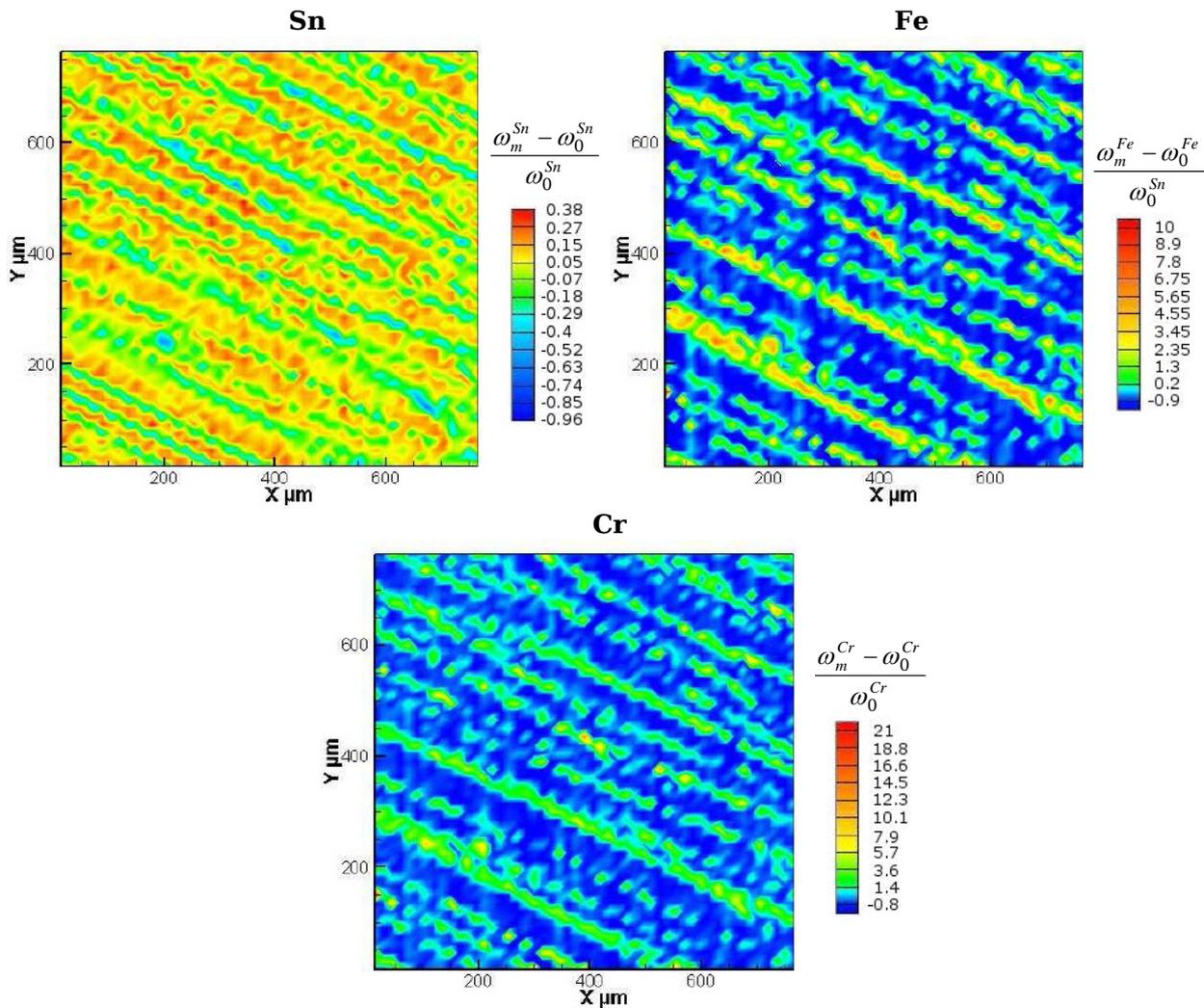


**FIGURE III.9** – Micrographie de l'échantillon prélevé au sommet du lingot (plaque ET1) (observation au microscope optique en lumière polarisée). La zone identifiée par les points rouges permet de localiser la position de la grille d'analyse et le trait bleu représente la ligne d'analyse.

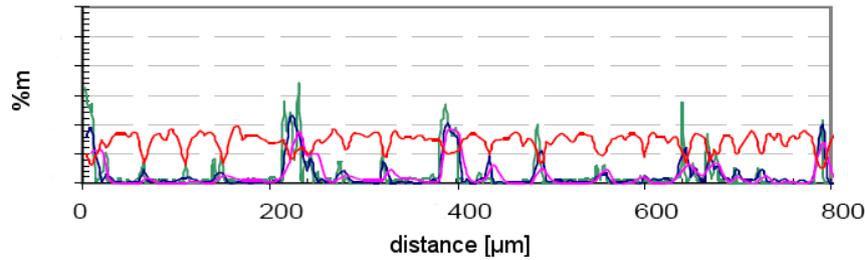
Les résultats obtenus pour Sn, Fe et Cr sont présentés dans les figures III.10.

Nous constatons que l'échelle de microségrégation est de l'ordre de quelques dizaines de microns, ce qui correspond à la taille des aiguilles  $\alpha$  visibles sur la micrographie (figure III.9) et non pas à celle de structures dendritiques qui sont généralement de l'ordre de la centaine de microns. La transformation à l'état solide semble bien effacer toute trace de la microségrégation induite par la solidification. La teneur en Sn qui est un élément  $\alpha$ -gène est maximale à l'intérieur des aiguilles  $\alpha$  alors que Fe et Cr, qui sont des éléments  $\beta$ -gènes ont été rejetés aux joints des aiguilles.

A priori, la défocalisation de la sonde ne permet pas de moyennner la microségrégation afin de mesurer la ségrégation due à la solidification. Néanmoins, les mesures réalisées le long d'une ligne pour différentes tailles de sonde semblent montrer les teneurs en Fe et en Cr sont plus importantes tous les 200  $\mu\text{m}$  environ (figure III.11). Cette distance pourrait correspondre à l'espacement des bras primaires des dendrites.



**FIGURE III.10** – Cartographies chimiques en Sn, Fe et Cr de la zone du lingot Zy-4 analysée par la microsonde de Castaing (taille de sonde : 10  $\mu\text{m}$ ).

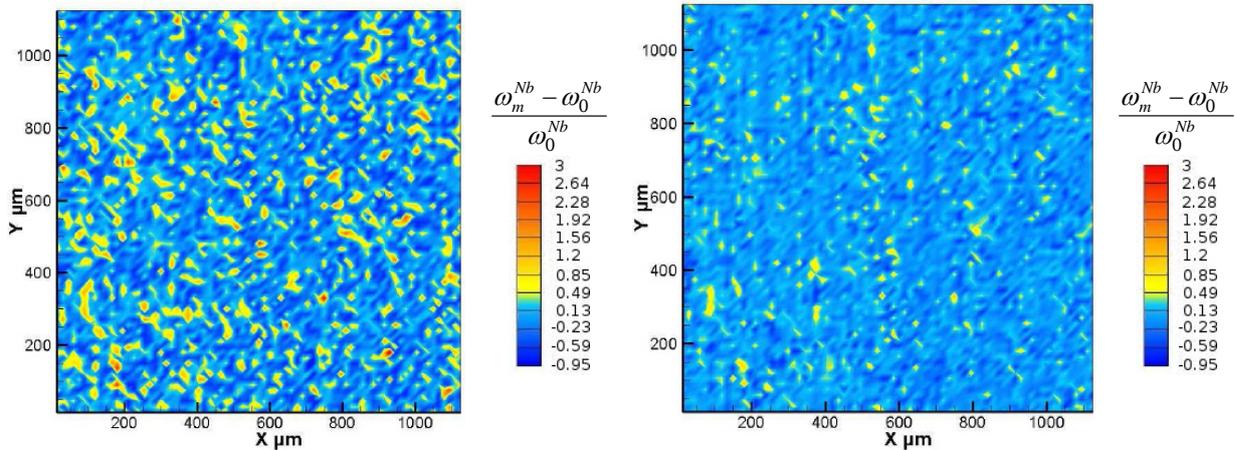


**FIGURE III.11** – Évolution du titre massique en Sn – — taille de sonde de 5 microns – en et Fe – taille de sonde de 2 (—), 5 (—) et 10 (—) microns – suivant la ligne analysée par la microsonde de Castaing.

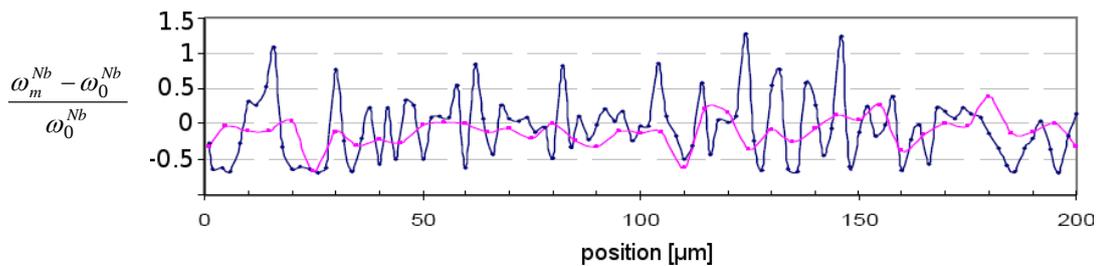
**Alliage M5®**

La figure III.12 représente les cartographies chimiques de l'échantillon du lingot M5® analysé par la microsonde de Castaing suivant la grille définie dans le paragraphe III.3.

Nous constatons que l'échelle de microségrégation est de l'ordre de quelques microns, ce qui correspond à la taille des aiguilles  $\alpha$  et non pas à celle de structures dendritiques qui sont généralement de l'ordre de la centaine de microns. Malgré la défocalisation, la microségrégation mesurée a été causée par la transformation  $\beta \rightarrow \alpha$  comme pour l'alliage Zy-4.



**FIGURE III.12** – Cartographies chimiques en Nb (%m) de la zone du lingot M5® analysée par la microsonde de Castaing avec une taille de sonde de 2 µm (à gauche) et de 5 µm (à droite).



**FIGURE III.13** – Évolution du titre massique en Nb suivant la ligne analysée par la microsonde de Castaing avec une taille de sonde de 2 (—) et de 5 (—) microns.

### III.4.c Macroségrégation

A partir des résultats des analyses chimiques des différents prélèvements (cf. §III.2), des profils de macroségrégation sont tracés en représentant la ségrégation relative en éléments d'alliage calculée par le rapport suivant :

$$\frac{\omega_m^i - \omega_0^i}{\omega_0^i} \quad (\text{III.1})$$

où  $\omega_m^i$  est la teneur massique mesurée expérimentalement et  $\omega_0^i$  est la teneur massique moyenne dans le lingot.

La teneur massique moyenne dans le lingot a été déterminée en faisant la moyenne pondérée de toutes les mesures expérimentales. La pondération a été calculée en réalisant un rapport de surfaces. Si on considère la  $i^{\text{ème}}$  mesure suivant le rayon 1 et en notant  $r(i)$  le rayon associé à cette mesure, le coefficient de pondération calculé,  $p(i)$ , est égale à :

$$\begin{aligned} p(i) &= \frac{1}{R^2} \left\{ \left[ \frac{r(i+1) + r(i)}{2} \right]^2 - \left[ \frac{r(i) + r(i-1)}{2} \right]^2 \right\} \\ &= \frac{1}{4R^2} [r(i+1)^2 - r(i-1)^2 + 2r(i)(r(i+1) - r(i-1))] \end{aligned} \quad (\text{III.2})$$

où  $R$  est le rayon total du lingot. De plus, nous avons considéré que les mesures réalisées à un même rayon  $r(i)$  ont le même poids quel que soit leur localisation dans la section.

Par ailleurs, pour chaque mesure et chaque soluté, une incertitude de mesure, noté  $\pm m^i$ , a été calculée par la méthode suivante. Premièrement, le laboratoire de CEZUS qui a effectué les analyses chimiques nous a transmis l'écart-type,  $\sigma_{\text{échantillon}}^i$ , et la moyenne,  $\bar{\omega}_{\text{échantillon}}^i$ , d'environ 60 mesures, réparties au cours de l'année 2008, de la composition chimique d'un même échantillon d'alliages M5<sup>®</sup> et Zy-4. À partir de cet écart-type et de cette moyenne, nous avons calculé l'incertitude de mesure suivant :

$$m^i = \frac{2\sigma_{\text{échantillon}}^i}{\bar{\omega}_{\text{échantillon}}^i} \cdot \omega_m^i \quad (\text{III.3})$$

Les barres d'erreur reportées sur les profils de ségrégation représentent deux incertitudes de mesure adimensionnées en divisant  $\pm m^i$  par la teneur de l'électrode  $\omega_0^i$ .

#### Alliage Zircaloy-4

Pour Sn, Fe, Cr et O, la figure III.14 représente les profils longitudinaux de macroségrégation moyennés radialement : la hauteur réduite du lingot  $h/H$  est représentée en fonction de la ségrégation moyenne qui est calculée à partir de la moyenne pondérée par la relation (III.2) de toutes les analyses chimiques d'une section.

Cette figure montre que la ségrégation en Sn, Fe et Cr est négative au pied du lingot, nulle à mi-hauteur et positive dans la partie supérieure. La ségrégation en O est opposée aux trois précédentes. En effet, d'après les diagrammes d'équilibre de phases binaires, le coefficient de partage de O,  $k_p^O$ , est supérieur à 1 et  $k_p^{Sn}$ ,  $k_p^{Fe}$  et  $k_p^{Cr}$  sont inférieurs à 1 [4].

Les intensités de ségrégation en Fe, O et Cr sont similaires alors que celle pour Sn est significativement plus faible.

Les figures III.15, III.16, III.18 et III.17 représentent, pour chaque section, les profils radiaux de macroségrégation en Sn, Fe, O et Cr respectivement. La ségrégation est tracée en fonction du rapport  $r/R$ , du centre ( $r/R = 0$ ) au bord du lingot ( $r/R = 1$ ).

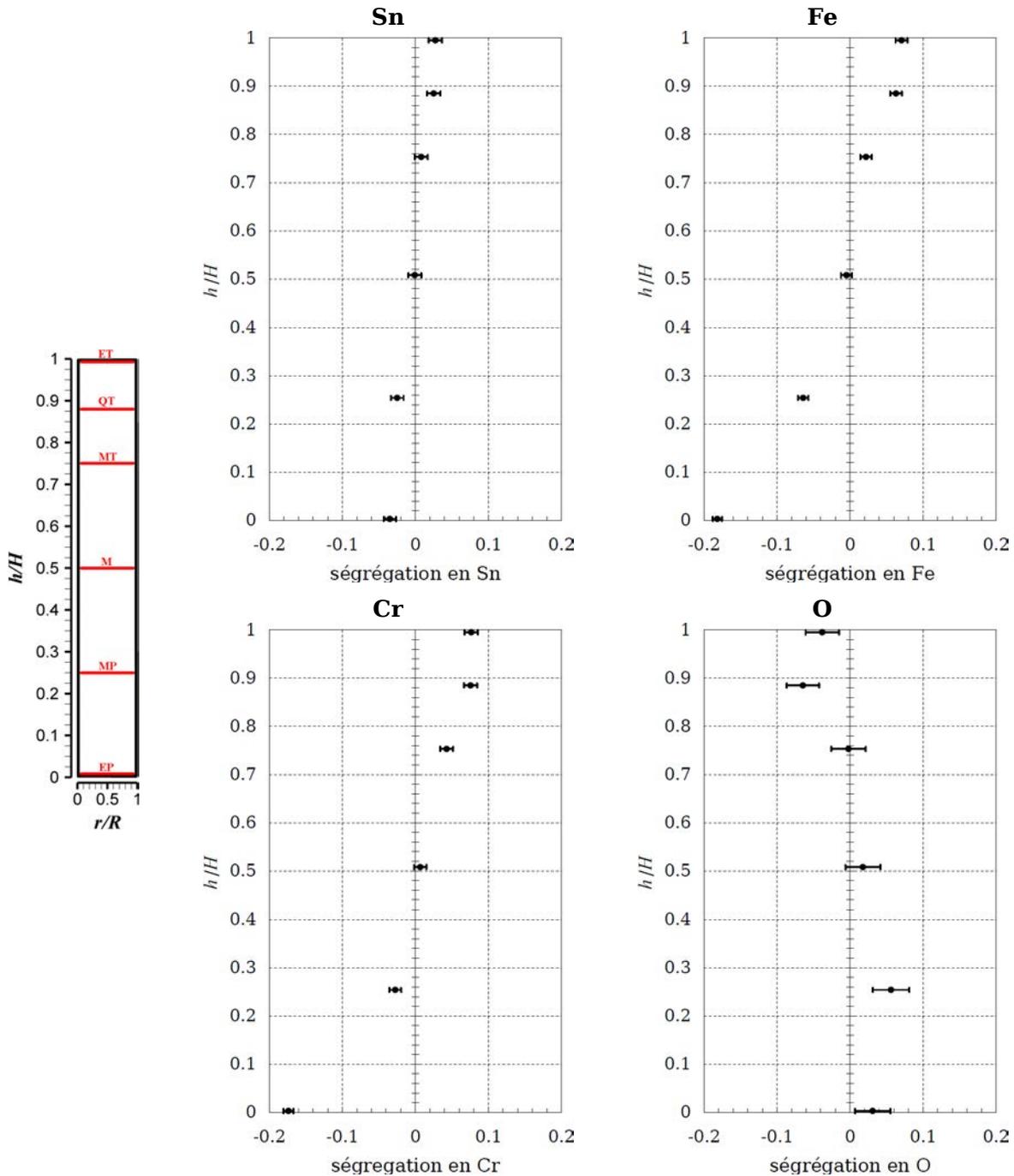
Le profil à  $h/H = 0,25$  obtenu pour la plaque MP est représentatif de la macroségrégation causée par le brassage alterné. Le centre du lingot est enrichi en Sn, Fe et Cr et la ségrégation de la partie externe est négative. Pour O, on constate une ségrégation neutre au centre et positive dans la zone externe du lingot.

Les plaques situées à  $h/H = 0,5$  et  $h/H = 0,75$  (plaques M et MT) se sont solidifiées lors de l'application du brassage unidirectionnel. Cependant, les profils de macroségrégation diffèrent.

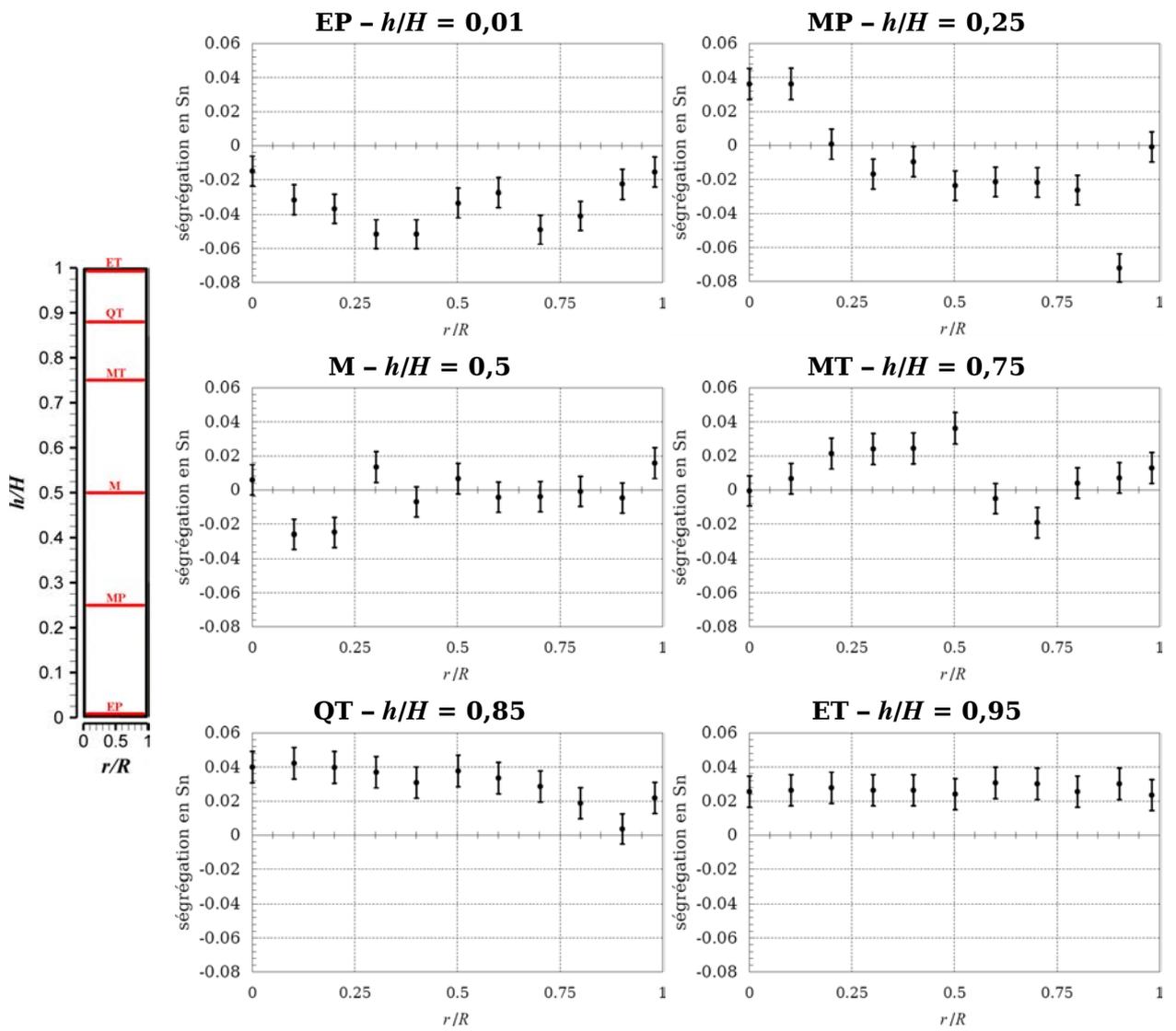
La zone centrale du lingot située à  $h/H = 0,5$  (plaque M) est appauvrie en Sn, Fe et Cr. La ségrégation de la partie extérieure est nulle. Le profil à  $h/H = 0,75$  (plaque MT) montre une augmentation du titre massique en Sn, Fe et Cr dans la zone centrale du lingot jusqu'à  $r/R = 0,5$ . La diminution de la teneur en O est moins marquée.

Ces différences, situées principalement dans la zone centrale, laissent penser que la variation des conditions opératoires lors de la solidification à  $h/H = 0,5$  (marquage du puits et transition entre le brassage alterné et le brassage unidirectionnel) a joué sur la macroségrégation.

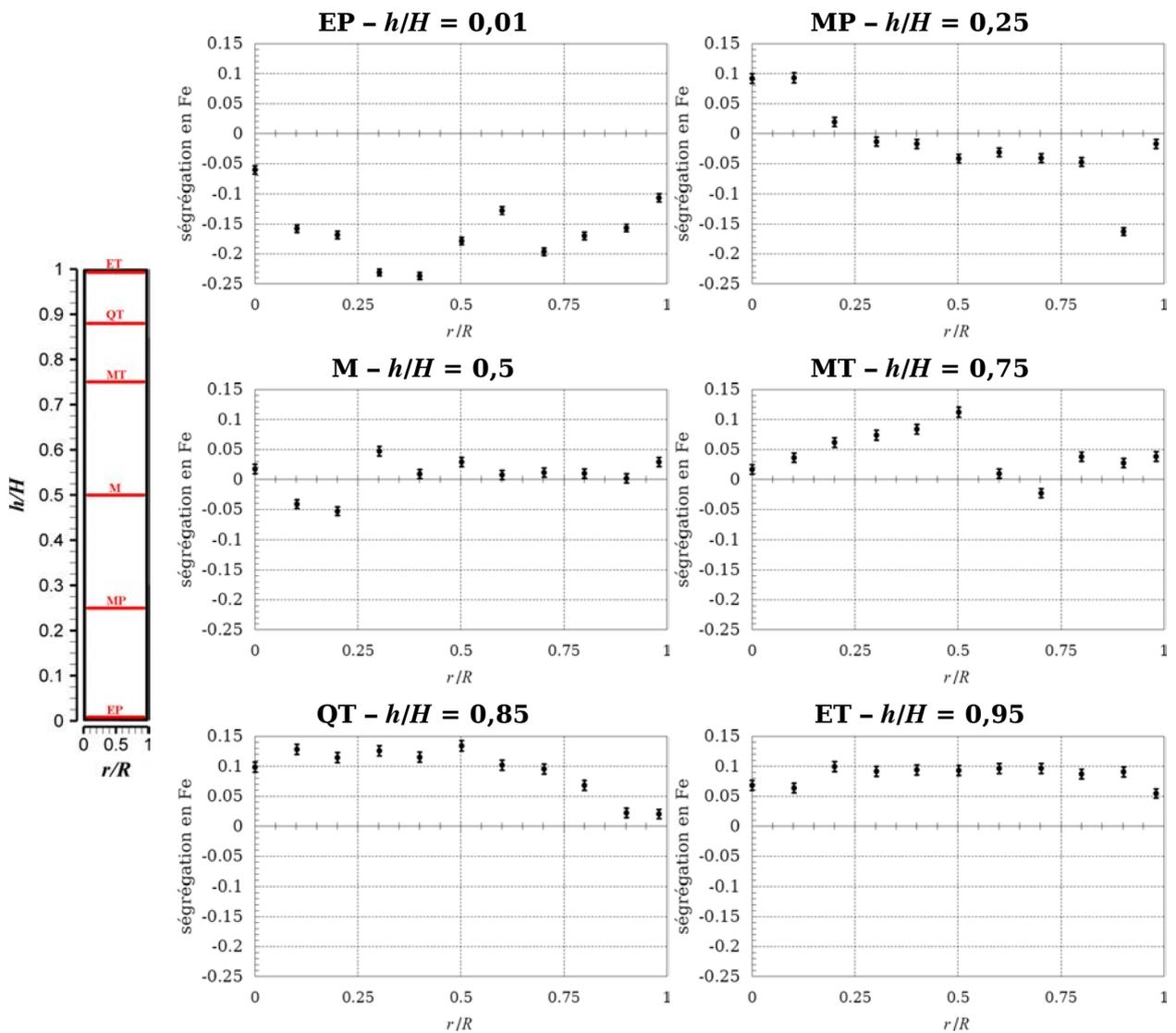
Le profil à  $h/H = 0,85$  (plaque QT) coupe probablement le dernier puits liquide. L'extérieur de la plaque s'est solidifié au cours de la refusion (brassage unidirectionnel) alors que la solidification de la partie centrale a eu lieu après la coupure de l'arc électrique et sans brassage électromagnétique. Ainsi, on constate un titre massique relativement constant jusqu'à  $r/R = 0,5$  puis une diminution de la teneur en Sn, Fe et Cr (une augmentation de la teneur en O) jusqu'au bord du lingot.



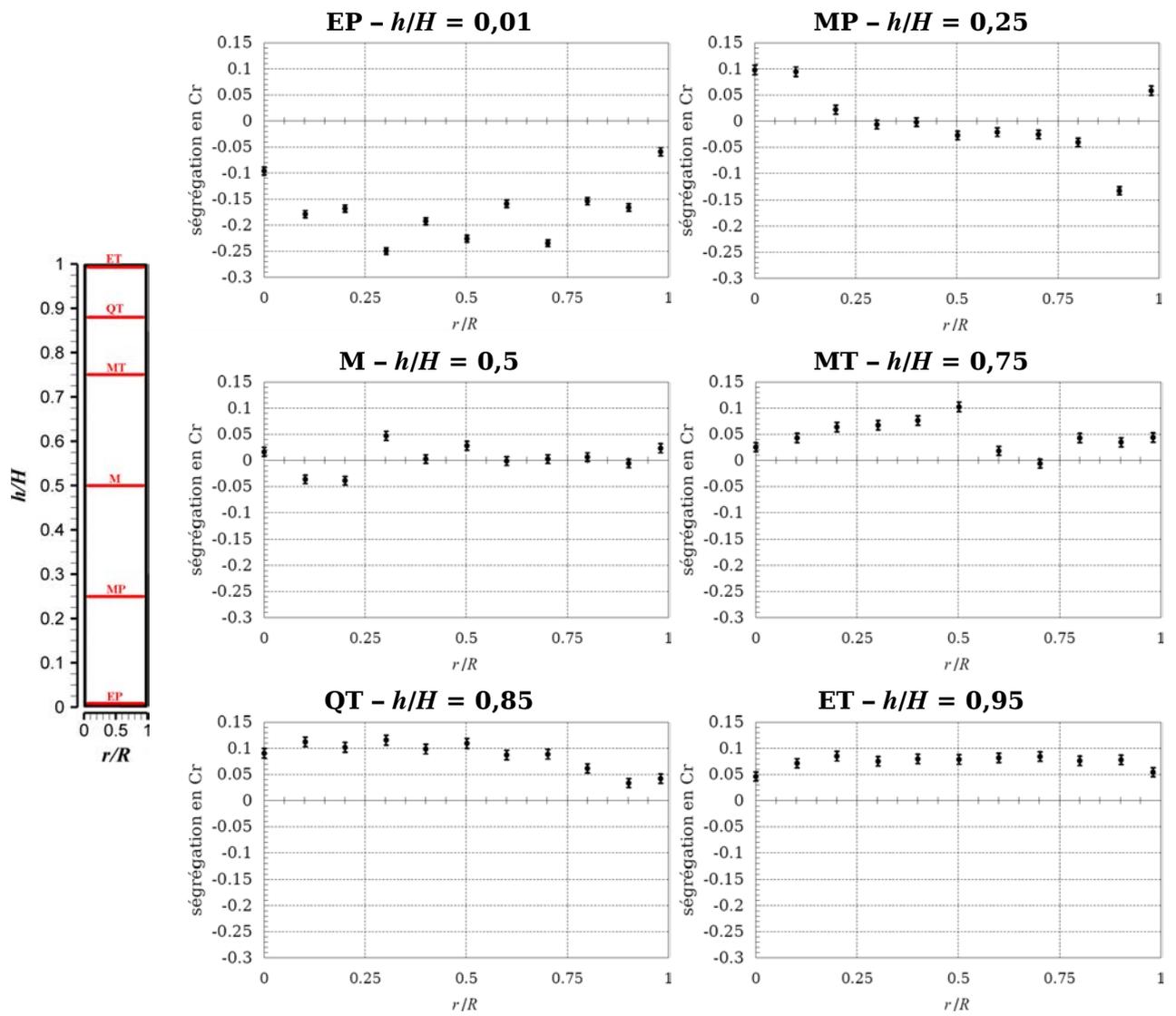
**FIGURE III.14** – Refusion expérimentale de l’alliage Zircaloy-4 : profils longitudinaux de macroségrégation moyennés radialement en Sn, Fe, Cr et O.



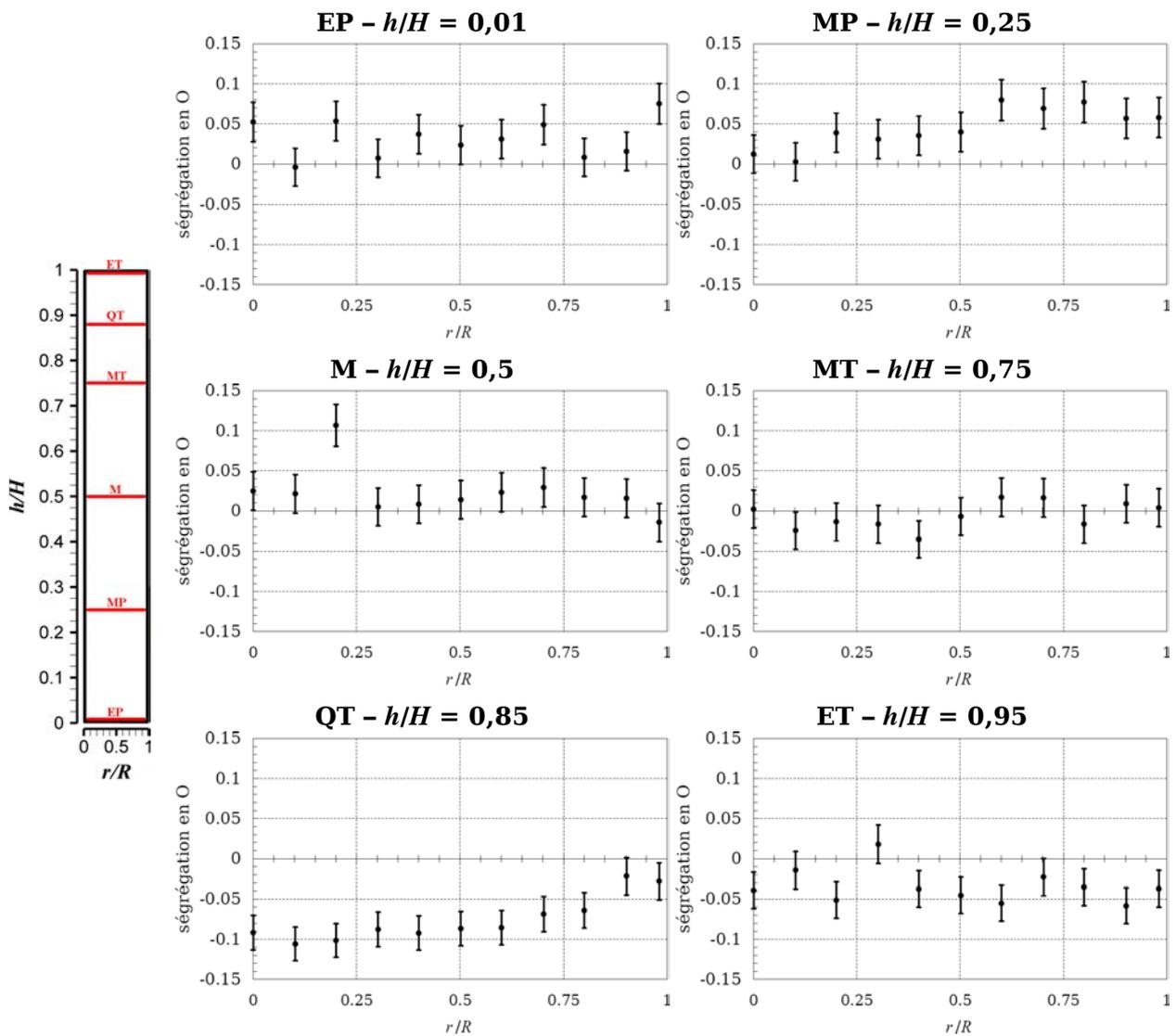
**FIGURE III.15** – Refusion expérimentale de l’alliage Zircaloy-4 : profils radiaux de macro-ségrégation en Sn.



**FIGURE III.16** – Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4 : profils radiaux de macro-ségrégation en Fe.



**FIGURE III.17** – Refusion expérimentale de l’alliage Zircaloy-4 : profils radiaux de macro-ségrégation en Cr.



**FIGURE III.18** – Refusion expérimentale de l’alliage Zircaloy-4 : profils radiaux de macro-ségrégation en O.

## Alliage M5®

Nous précisons que les macroségrégations en Nb, O et Fe ont été étudiées ; la teneur en Fe dans l'alliage M5® est contrôlée bien qu'elle ne figure pas dans la composition nominale.

Pour Nb, O et Fe, la figure III.19 représente les profils longitudinaux moyennés de macroségrégation. Ils sont obtenus en calculant la moyenne pondérée des mesures expérimentales sur une section.

Ces profils montrent une ségrégation négative en Nb et Fe au pied du lingot et une ségrégation positive à mi-hauteur. A l'inverse, la ségrégation en O est positive puis négative. Pour  $0,75 < h/H < 0,9$ , la ségrégation est quasiment nulle. On retrouve une ségrégation positive en Nb et Fe au sommet du lingot. Pour l'oxygène, la ségrégation obtenue pour cette section n'est pas représentée car les teneurs mesurées en oxygène sont très élevées comparativement au reste du lingot. Elles sont dues à l'oxydation sur quelques millimètres de la peau du lingot lors du refroidissement à l'air qui suit le démoulage, alors que la température du lingot est encore de plusieurs centaines de degrés Celsius.

L'intensité de macroségrégation est significativement différente pour chaque élément d'alliage : Nb ségrège peu rapport à O et Fe et Fe est l'élément le plus ségrégeant.

Les figures III.20, III.21 et III.22 représentent, pour chaque section, les profils radiaux de macroségrégation en Nb, O et Fe respectivement. La ségrégation est tracée en fonction du rapport  $r/R$ , du centre ( $r/R = 0$ ) au bord du lingot ( $r/R = 1$ ).

Les conditions opératoires appliquées lors de la solidification varient en fonction des profils.

Le profil à  $h/H = 0,13$  (plaque QP) correspond à la vitesse de fusion élevée et au brassage électromagnétique unidirectionnel. La partie centrale du lingot est enrichie en Nb et Fe et appauvrie en O. Les teneurs en Nb et Fe diminuent suivant le rayon alors que la teneur en O augmente. Sur le bord du lingot, on observe une brusque augmentation de la teneur en Nb et en Fe et une diminution de la teneur en O.

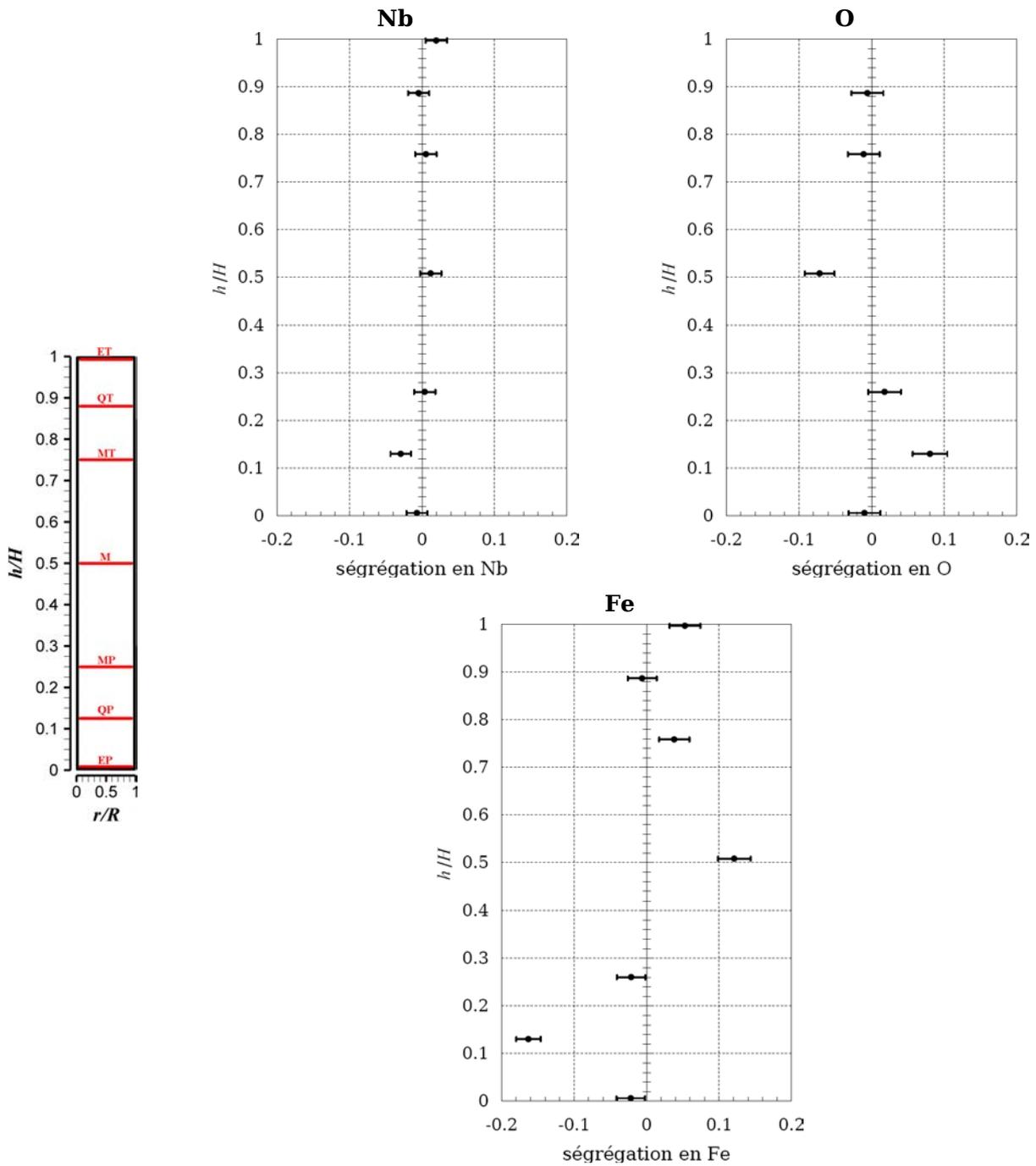
Les profils de macroségrégation mesurés à  $h/H = 0,26$  (plaque MP) sont composés de deux paliers. D'après la macrographie longitudinale du lingot (figure III.8), la plaque MP coupe le marquage du puits qui correspond à la fin du second marquage. On en déduit que la partie centrale du lingot s'est solidifiée alors que la vitesse de fusion était faible et le brassage alterné, alors que la zone externe s'est solidifiée avec une vitesse de fusion élevée et un brassage électromagnétique fort.

Les plaques M, MT et QT sont situées dans la moitié supérieure du lingot qui s'est solidifié alors que la vitesse de fusion était faible et le brassage électromagnétique était alterné. La ségrégation radiale est relativement faible par rapport aux profils situés dans la moitié inférieure du lingot (QP et MP).

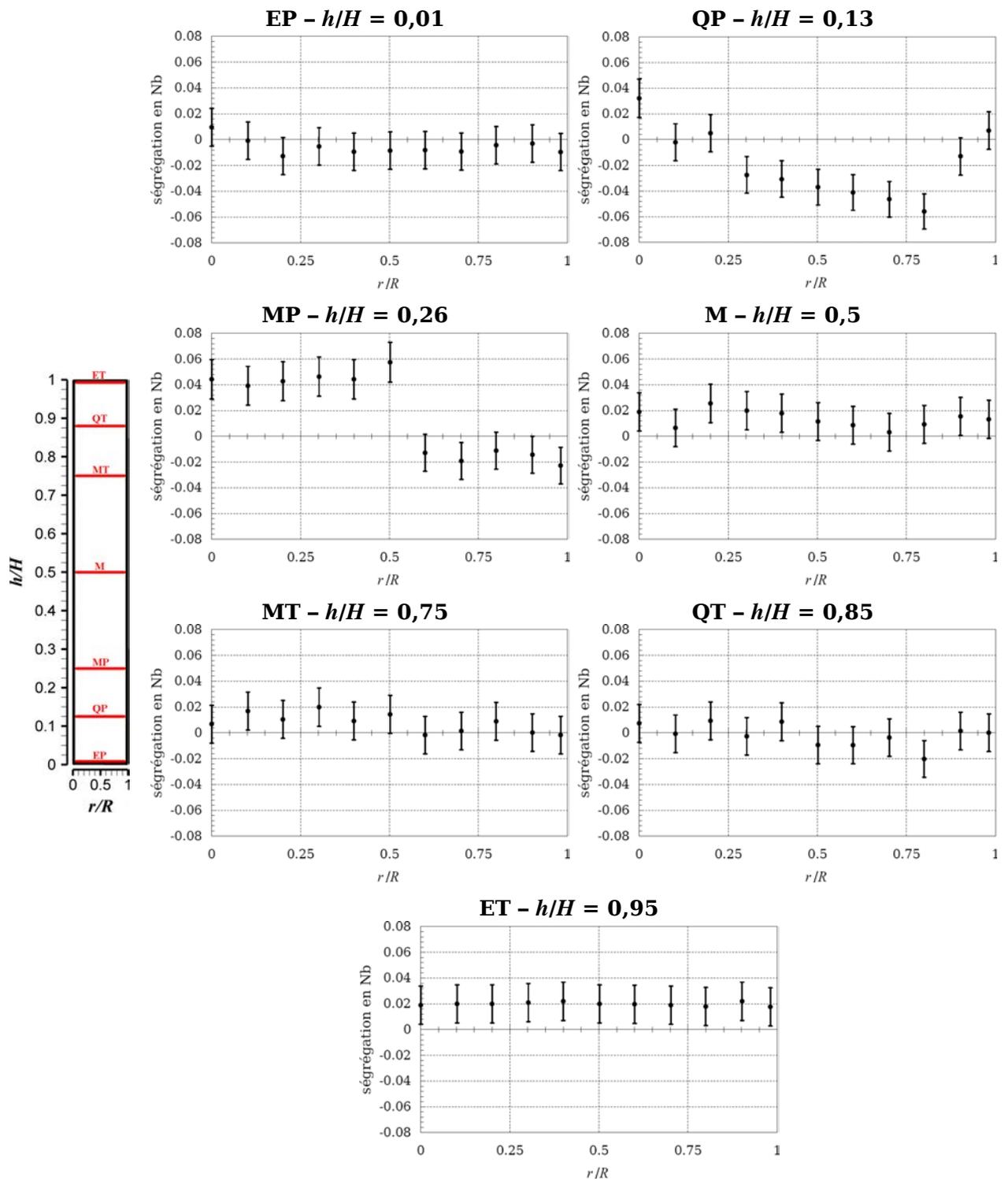
Les conditions de solidification des plaques EP et ET situées aux deux extrémités du lingot sont très spécifiques.

La plaque EP s'est solidifiée au cours de l'augmentation de la vitesse de fusion au début de l'essai. La ségrégation est quasiment nulle.

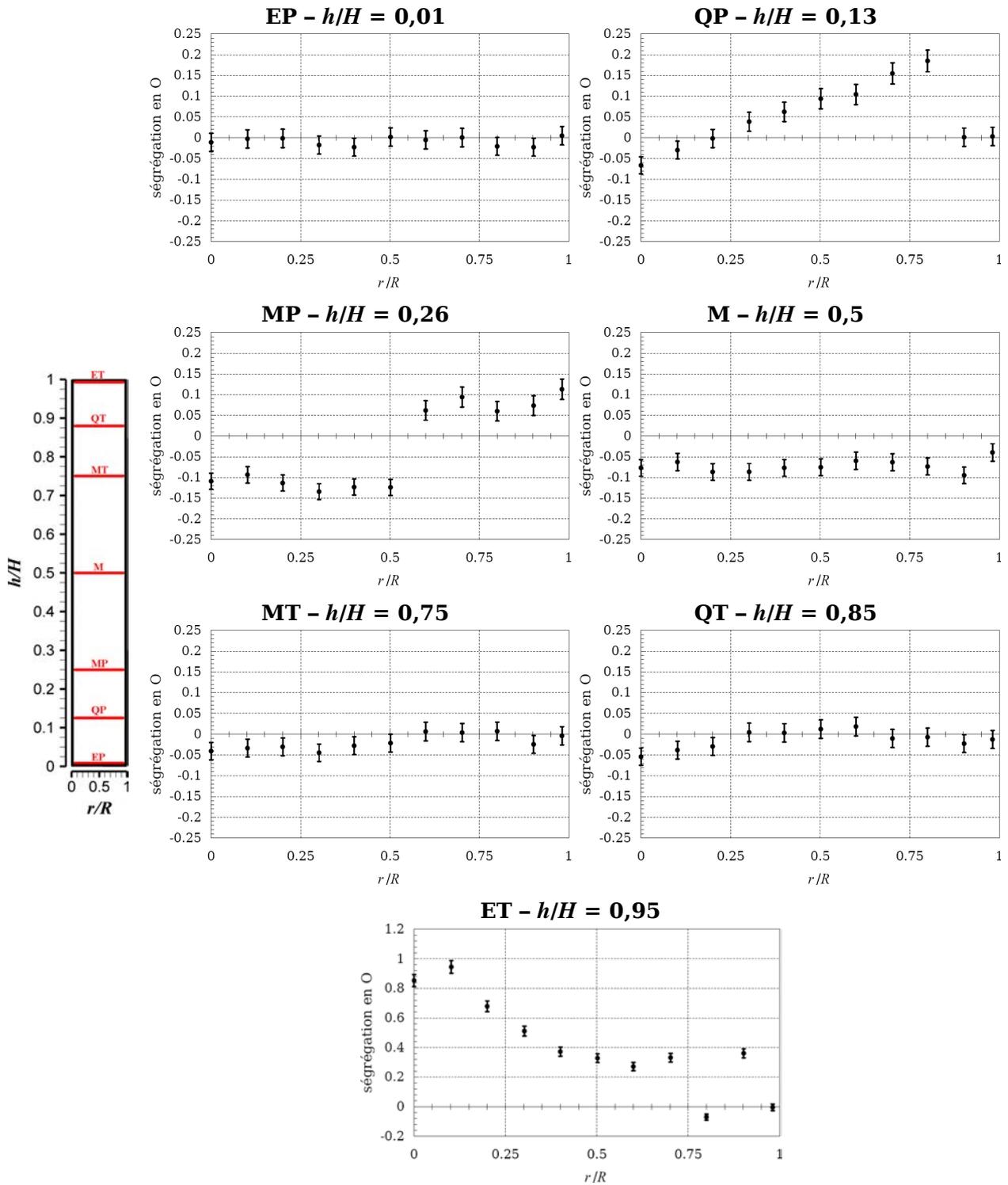
La solidification de la plaque ET a eu lieu très rapidement à la suite de la coupure de l'arc à la fin de la refusion. La teneur en Nb est stable. La teneur en O est très élevée à cause l'oxydation de la peau du lingot.



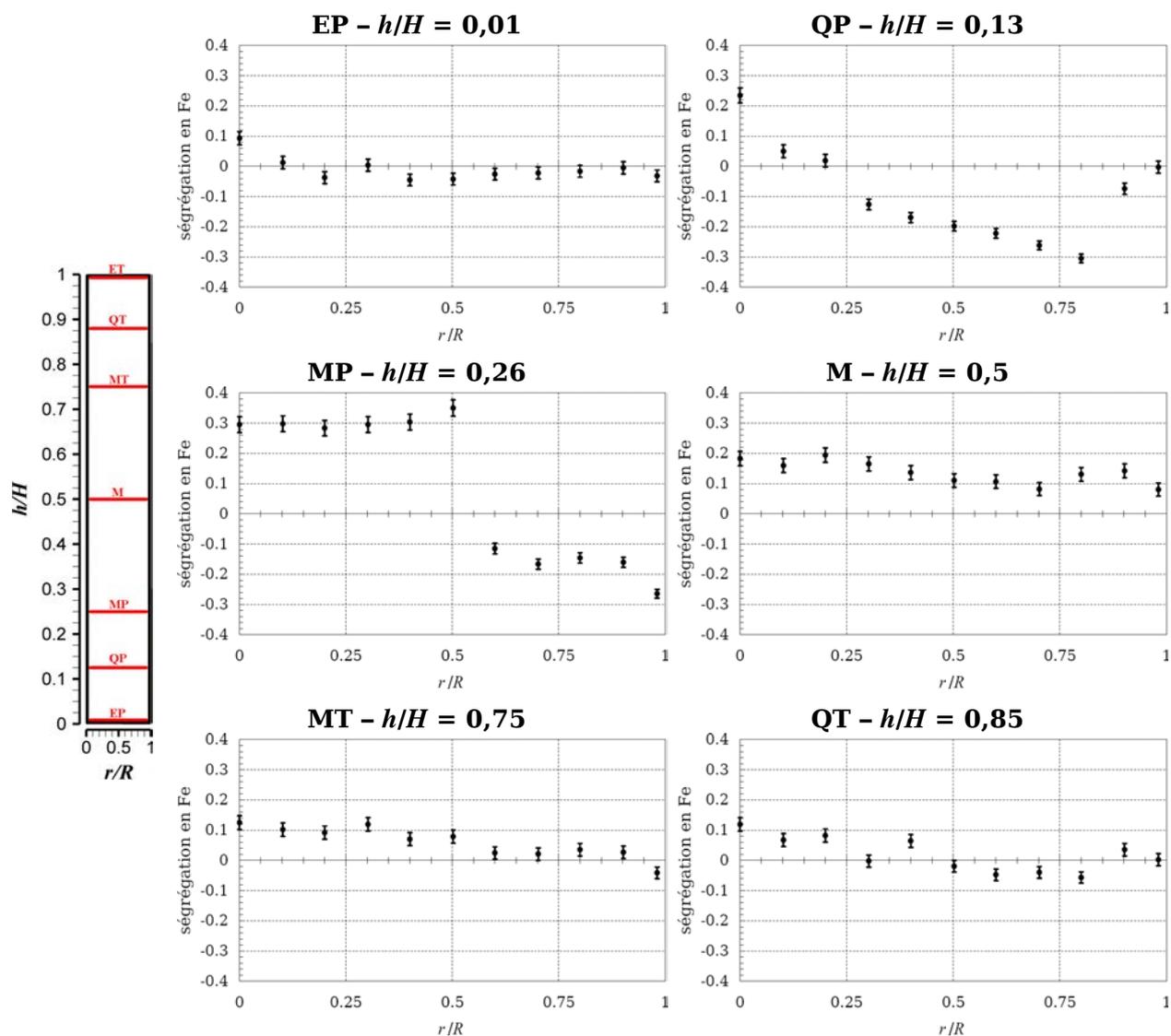
**FIGURE III.19** – Refusion expérimentale de l’alliage M5<sup>®</sup> : profils longitudinaux de macro-ségrégation moyennés radialement en Nb, O et Fe.



**FIGURE III.20** – Refusion expérimentale de l’alliage M5® : profils radiaux de macroségrégation en Nb.



**FIGURE III.21** – Refusion expérimentale de l’alliage M5<sup>®</sup> : profils radiaux de macroségrégation en O.



**FIGURE III.22** – Refusion expérimentale de l’alliage M5<sup>®</sup> : profils radiaux de macroségrégation en Fe.

### III.5 Synthèse

Deux électrodes homogènes chimiquement en alliages Zy-4 et en M5<sup>®</sup> ont été refondues dans un four VAR industriel. La structure, la micro- et la macroségrégation du lingot obtenu ont été caractérisées.

L’observation des macrographies montre que sur quelques centimètres au niveau de la périphérie de chaque lingot, les grains sont colonnaires. Néanmoins, la majeure partie des lingots est composée de grains ex- $\beta$  formant une structure équiaxe. Pour les deux lingots, la transition colonnaire/équiaxe n’est pas nette.

L'application d'à-coups de brassage électromagnétique a permis de marquer le puits liquide à plusieurs instants au cours de chaque refusion. Cette méthode a l'avantage de ne pas « polluer » le lingot secondaire. Elle est plus efficace pour un alliage dont l'intervalle de solidification est important comme le Zy-4. Dans l'annexe B, ces marquages expérimentaux ont été comparés à l'évolution du profil du puits liquide prédite par le modèle.

Les cartographies chimiques réalisées grâce à une microsonde de Castaing en mode défocalisé ne mettent pas en évidence des ségrégations à l'échelle de la centaine de microns. Les ségrégations mesurées découlent de la transformation à l'état solide  $\beta \rightarrow \alpha$  au cours du refroidissement du lingot. Ainsi, nous ne sommes pas parvenus à évaluer des valeurs fiables pour, par exemple, l'espacement interdendritique des bras primaires de dendrites ou les coefficients de partage.

De nombreux prélèvements dans chaque lingot ont été analysés chimiquement ce qui a permis de réaliser des profils de macroségrégation pour tous les éléments d'alliage. Ils montrent des variations significatives de la composition chimique en fonction des conditions opératoires utilisées lors des refusions. Il apparaît que les macroségrégations en Nb et Fe dans le M5<sup>®</sup> et en Sn, Fe et Cr dans le Zy-4 sont similaires ( $k_p < 1$ ). Néanmoins, Nb et Sn ségrègent peu par rapport aux deux autres éléments. Dans le M5<sup>®</sup> et le Zy-4, la ségrégation en O est opposée à celle des éléments métalliques ( $k_p^O > 1$ ).

## III.6 Bibliographie

- [1] J. Zollinger, Influence de l'oxygène sur le comportement à la solidification d'aluminures de titane binaires et alliés au niobium basés sur le composé intermétallique  $\gamma$ -TiAl, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2008.
- [2] D. Daloz, U. Hecht, J. Zollinger, H. Combeau, A. Hazotte, M. Založnik, Microsegregation, macrosegregation and related phase transformations in TiAl alloys, *Intermetallics*. 19 (2011) 749-756.
- [3] J. Zollinger, D. Daloz, On the sampling methodology to characterize microsegregation, *Materials Characterization*. 62 (2011) 1058-1065.
- [4] T.B. Massalski, *Binary Alloy Phase Diagrams*, 2nd Revised edition, ASM International, 1990.

## IV Simulation de la refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4 : étude de la macroségrégation

*Remarque :* Afin d'alléger les notations par rapport au chapitre II, nous désignons dans la suite  $\beta_{Tp}$  par  $\beta_T$ ,  $\beta_{Sp}^i$  par  $\beta_S^i$ ,  $G_{kp}^T$  par  $G_k^T$ ,  $G_{kp}^S$  par  $G_k^S$  et  $\langle \bar{\psi} \rangle$  par  $\psi$ .

### IV.1 Introduction

Plusieurs simulations de la refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4 (Zy-4 : Zr-1,3Sn-0,2Fe-0,13O-0,1Cr) décrite dans le chapitre III ont été menées en utilisant la version du modèle SOLAR qui intègre les développements présentés dans le chapitre II. Leur but était notamment d'identifier les causes principales de la macroségrégation mesurée expérimentalement.

Pour toutes les simulations, l'enregistrement des conditions opératoires de la refusion a été pris comme donnée d'entrée du modèle (vitesse de fusion, courant de fusion, tension et courant de brassage) et les propriétés thermophysiques utilisées sont regroupées dans l'annexe A.

Toutes les simulations ont été réalisées avec une taille moyenne de volumes de contrôle d'environ 9 x 6 mm<sup>2</sup> (largeur x hauteur). Un affinement du maillage a été appliqué aux 4 nœuds les plus proches de la surface libre et de la paroi latérale. Il a consisté à appliquer une raison géométrique de 0,7 sur la distance entre les nœuds des volumes de contrôle.

Par ailleurs, le pas de temps était de 0,15 s lorsque la règle du bras de levier était appliquée pour modéliser la microségrégation ; pour les simulations où nous avons utilisé le modèle cinétique de croissance, il était de 0,025 s. Ainsi, sur un processeur Intel® Xeon® X5540 2,53GHz, le temps de calcul pour simuler entièrement la refusion était d'environ une dizaine d'heures dans le premier cas, et d'environ 48 heures dans le second.

À la suite de cette introduction, la partie suivante vise à déterminer les rôles des convections forcée et naturelle sur le comportement hydrodynamique du puits liquide et de la zone pâteuse et, par conséquent, sur la macroségrégation.

La troisième partie est consacrée à étudier numériquement l'influence de l'espacement interdendritique sur la macroségrégation prédite par le modèle. En effet, cette taille caractéristique est difficile à mesurer expérimentalement pour les alliages de zirconium (cf. chapitre III).

La version actuelle du modèle peut tenir compte de la diffusion restreinte des solutés au cours de la solidification. L'étude de ses conséquences sur la macroségrégation du lingot en Zircaloy-4 (Zy-4) fait l'objet de la quatrième et dernière partie de ce chapitre.

## IV.2 Influence de la convection naturelle

### IV.2.a Introduction

L'objectif de cette partie est d'étudier numériquement l'influence de la convection naturelle d'origine thermique et solutale sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse.

Pendant la solidification des alliages métalliques, les convections thermique et solutale peuvent coopérer ou, au contraire, s'opposer. La force motrice résultante peut être dominée soit par les effets thermiques, soit par les effets solutaux, ou être dans un régime intermédiaire où les deux forces de volume sont en compétition et interagissent [1].

Les effets des forces de volume thermique et solutale sont modélisés dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement grâce à l'approximation de Boussinesq (cf chapitre II, éq. (II.76)).

L'alliage Zy-4 étant faiblement chargé, le coefficient d'expansion thermique a été évalué à partir du coefficient constant d'expansion thermique du zirconium pur à l'état liquide déterminé dans [2].

Par ailleurs, pour n'importe quel soluté, le coefficient d'expansion solutale peut être évalué en supposant l'additivité des volumes entre le zirconium pur et l'élément d'alliage  $i$ . La masse volumique de l'alliage Zr- $i$  peut être alors exprimée par :

$$\rho^{Zr-i} = \frac{\rho^{Zr} \rho^i}{\omega_0^i \rho^{Zr} + (1 - \omega_0^i) \rho^i} \quad (IV.1)$$

où  $\rho^{Zr-i}$  est la masse volumique de l'alliage Zr- $i$ ,  $\rho^{Zr}$  est la masse volumique du zirconium,  $\rho^i$  est la masse volumique de l'élément  $i$  et  $\omega_0^i$  est la teneur massique nominale en élément  $i$ .

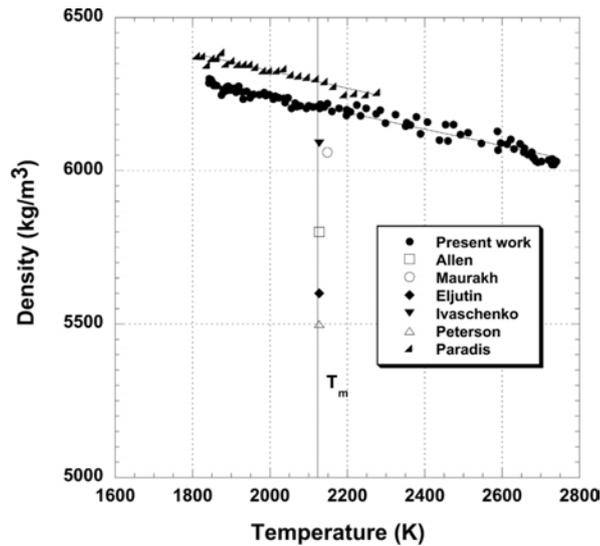
D'après la définition du coefficient d'expansion solutale, on obtient ainsi :

$$\beta_S^i = - \frac{1}{\rho^{Zr-i}} \frac{\partial \rho^{Zr-i}}{\partial \omega^i} \Big|_{T, \omega^{j \neq i}} \Rightarrow \beta_S^i = - \frac{\rho^i(T_{ref}) - \rho^{Zr}(T_{ref})}{\rho^i(T_{ref})(1 - \omega_0^i) + \rho^{Zr}(T_{ref})\omega_0^i} \quad (IV.2)$$

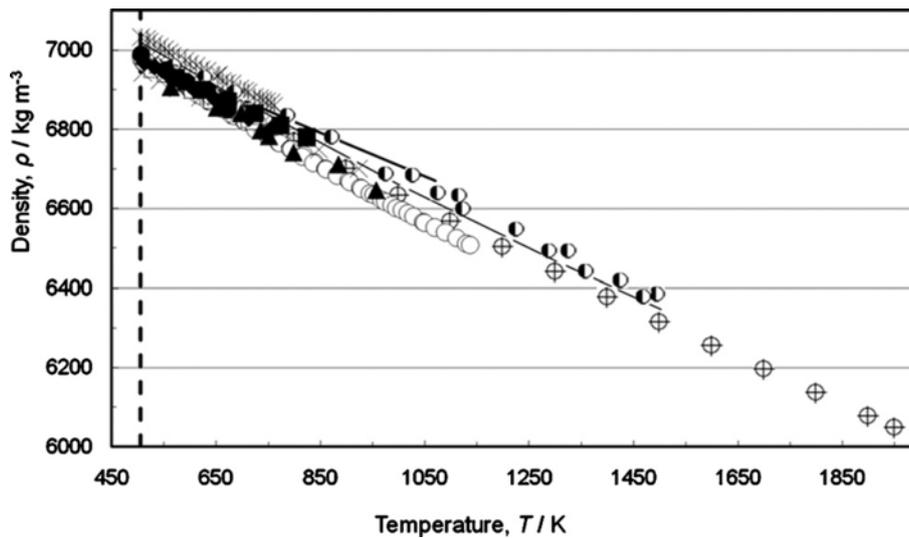
Les valeurs disponibles dans la littérature pour les masses volumiques du zirconium liquide et de l'étain liquide en fonction de la température ont été compilées récemment dans les références [2] (figure IV.1) et [3] (figure IV.2) respectivement.

D'après les figures IV.1 et IV.2, il n'est pas possible de savoir avec certitude si Sn, qui est l'élément d'alliage majeur, est plus lourd ou plus léger que Zr. Par conséquent, le coefficient d'expansion solutale de Sn calculé par l'éq. (IV.2) peut être positif ou négatif.

Cela illustre le manque de données expérimentales fiables sur les propriétés thermophysiques des alliages de zirconium à l'état liquide, bien que ces données soient nécessaires pour modéliser précisément la macroségrégation dans les lingots VAR.



**FIGURE IV.1** – Masse volumique du zirconium liquide en fonction de la température : figure issue de la référence [2].



**FIGURE IV.2** – Masse volumique de l'étain liquide en fonction de la température : figure issue de la référence [3].

Ainsi, afin d'étudier l'influence de la convection solutale, nous avons choisi de simuler 4 cas. Ils sont présentés dans le tableau IV.1.

Le cas (a) correspond à l'absence de convection naturelle, ce qui signifie que l'écoulement est uniquement causé par la convection forcée due aux champs électromagnétiques créés par l'inducteur externe et par le passage du courant. Dans le cas (b), les convections forcée et thermique sont prises en compte. En ce qui concerne la convection solutale, nous avons supposé que les variations de masse volumique de la phase liquide sont uniquement générées par Sn puisque c'est l'élément d'alliage principal. Cela signifie que  $\beta_S^{Fe}$ ,  $\beta_S^O$  et  $\beta_S^{Cr}$  sont considérés nuls. Dans le cas (c), nous avons volontairement pris

une valeur négative pour le coefficient d'expansion solutale de Sn :  $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \text{ (wt\%)}^{-1}$ . Dans le cas (d), le coefficient positif,  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \text{ (wt\%)}^{-1}$ , a été calculé en supposant l'additivité des volumes (éq. (IV.2)). Nous avons calculé la masse volumique de Zr liquide à sa température de fusion grâce à l'expression établie dans la référence [2]. La masse volumique de Sn liquide a été prise égale à  $6 \cdot 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$  (cf. figure IV.2).

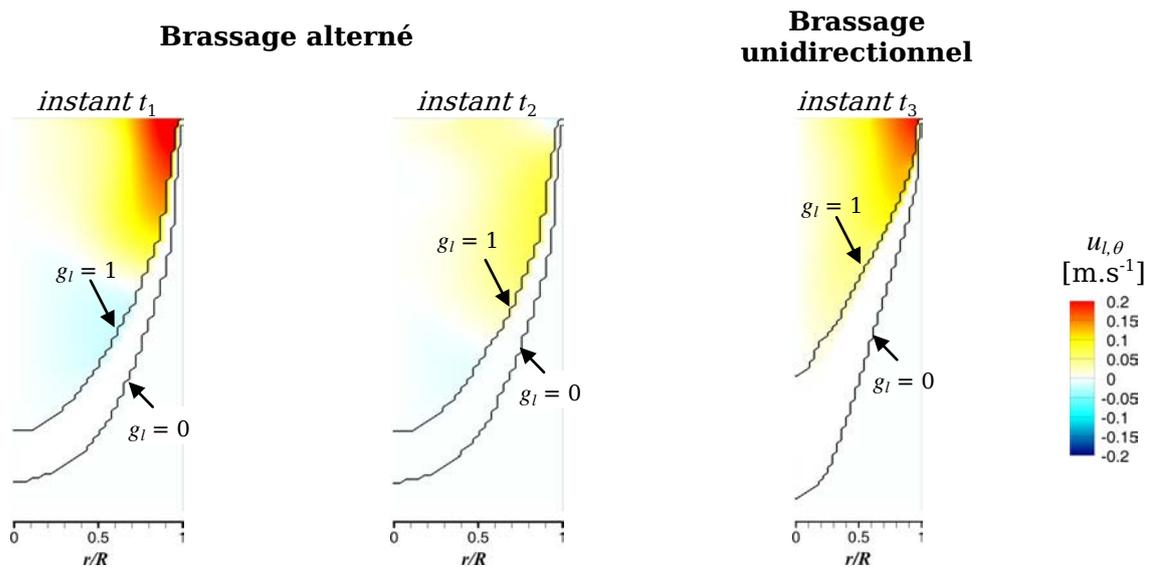
**TABLEAU IV.1** – les 4 cas étudiés

case	$\beta_T [^\circ\text{C}^{-1}]$	$\beta_S^{Sn} [\% \text{m}^{-1}]$
<b>a</b>	0	0
<b>b</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	0
<b>c</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	$-1 \cdot 10^{-2}$
<b>d</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-2}$

L'écoulement a été étudié pour les brassages unidirectionnel et alterné appliqués pendant la refusion (cf. chapitre III). Pour le brassage alterné, comme le mouvement angulaire évolue périodiquement, nous avons considéré deux instants (voir figure IV.3) :

- l'instant  $t_1$  est caractérisé par un fort mouvement orthoradial du puits liquide
- et l'instant  $t_2$  est caractérisé par un faible mouvement orthoradial.

Pour le brassage unidirectionnel (instant  $t_3$ ), l'hydrodynamique est relativement stationnaire. Les écoulements dans le plan ( $r$ - $z$ ) pendant le brassage unidirectionnel et à l'instant  $t_1$  au cours du brassage alterné sont similaires car les vitesses orthoradiales sont élevées dans les deux cas. C'est pourquoi, ils sont traités simultanément dans la suite.



**FIGURE IV.3** – Cartes des vitesses intrinsèques orthoradiales de la phase liquide à trois instants de la refusion de l'alliage Zy-4.

## IV.2.b Comportement hydrodynamique

### Vitesses orthoradiales élevées (instant $t_1$ (brassage alterné) et $t_3$ (brassage unidirectionnel))

Pour les quatre cas, les figures IV.4 et IV.5 présentent le champ de vitesses de la phase liquide et l'intensité de turbulence dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_1$  et pendant le brassage unidirectionnel, respectivement ( $r/R = 0$  désigne le centre du lingot et  $r/R = -1$  ou  $1$  sont les bords latéraux). L'intensité de turbulence est représentée par le rapport des viscosités  $\mu_t/\mu$ .

Sans convection thermosolutale – cas (a), nous observons dans le puits liquide et la zone pâteuse un vortex tournant dans le sens des aiguilles d'une montre : l'écoulement est descendant le long du front de solidification et ascendant le long de l'axe de symétrie ( $r/R = 0$ ). Nous en déduisons que la force centrifuge est prédominante par rapport à la force électromagnétique auto-induite lorsque le mouvement angulaire du puits liquide est important.

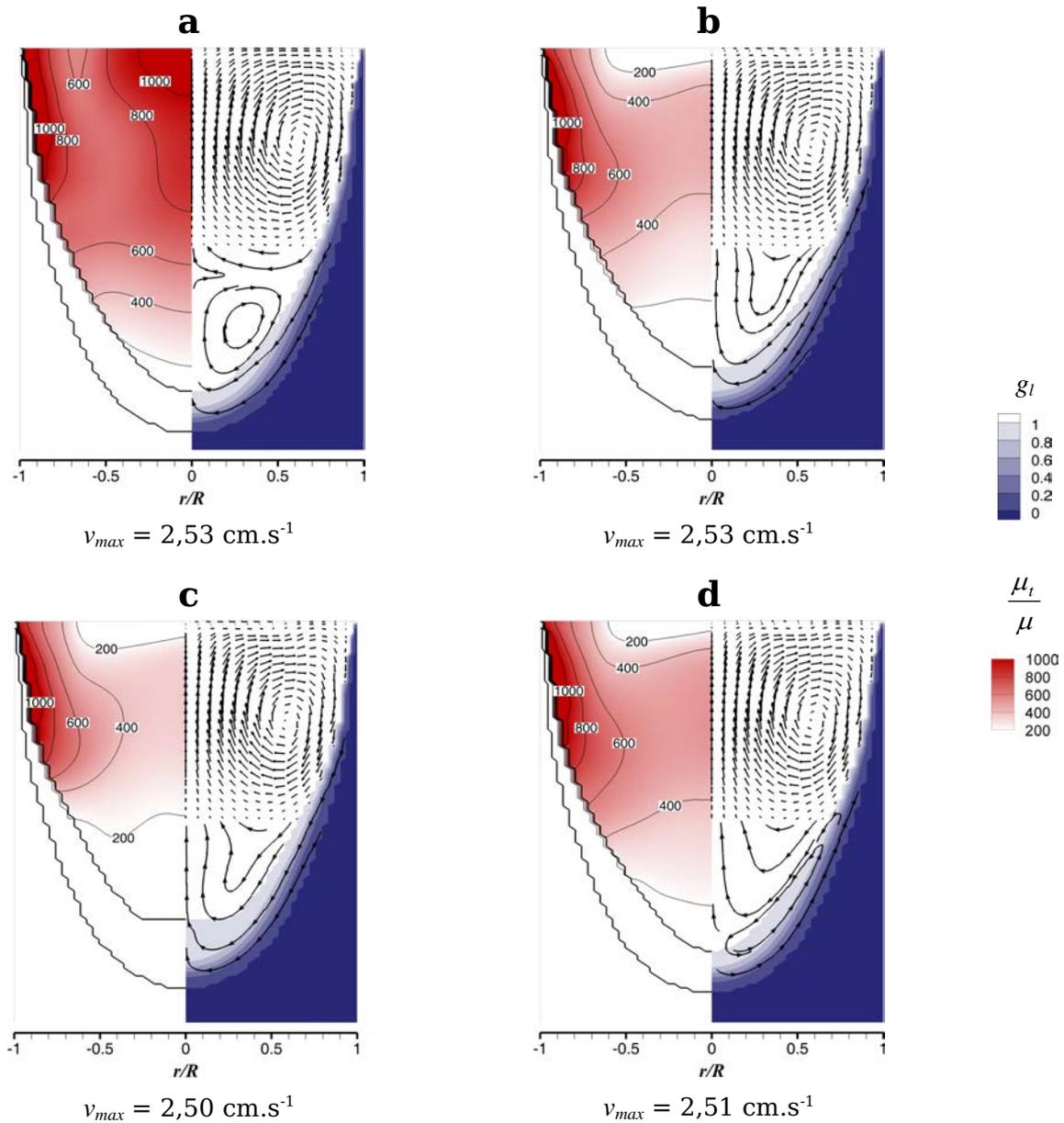
Quand la convection thermique est prise en compte – cas (b), le comportement hydrodynamique reste similaire car, comme la force centrifuge, la convection thermique promeut un écoulement descendant le long du front de solidification et ascendant dans la partie centrale du bain métallique. Néanmoins, la position du centre du vortex est plus basse et l'écoulement dans la partie supérieure du puits liquide a été modifié, surtout à l'instant  $t_1$  (brassage alterné). En comparant les cartes d'intensité de la turbulence, nous constatons que lorsque  $\beta_T = 0$  ( $^{\circ}\text{C}$ )<sup>-1</sup> – cas (a), l'écoulement est turbulent dans tout le puits liquide alors que, dans le cas (b), la turbulence est principalement localisée à proximité de la paroi latérale du lingot, au-dessus de la zone pâteuse. La laminarisation de l'écoulement dans ce cas est liée à la stratification thermique qui dissipe la turbulence par l'intermédiaire du terme source  $G_k^T$  du modèle  $k-\varepsilon$  (cf. chapitre II, éq. (II.111)). La stratification thermique du puits liquide est représentée dans la figure IV.6 à l'instant  $t_1$ . Ainsi, les écarts importants en termes de répartition de la turbulence entre les cas (a) et (b) expliquent les différences entre les champs de vitesses moyennées.

Les effets de la convection solutale peuvent être observés à travers les cas (c) et (d). Dans le cas (c), le champ de vitesses moyen est analogue aux deux cas précédents. Dans le cas (d), un second vortex tournant dans le sens trigonométrique est situé au niveau du fond du puits liquide et dans la zone pâteuse.

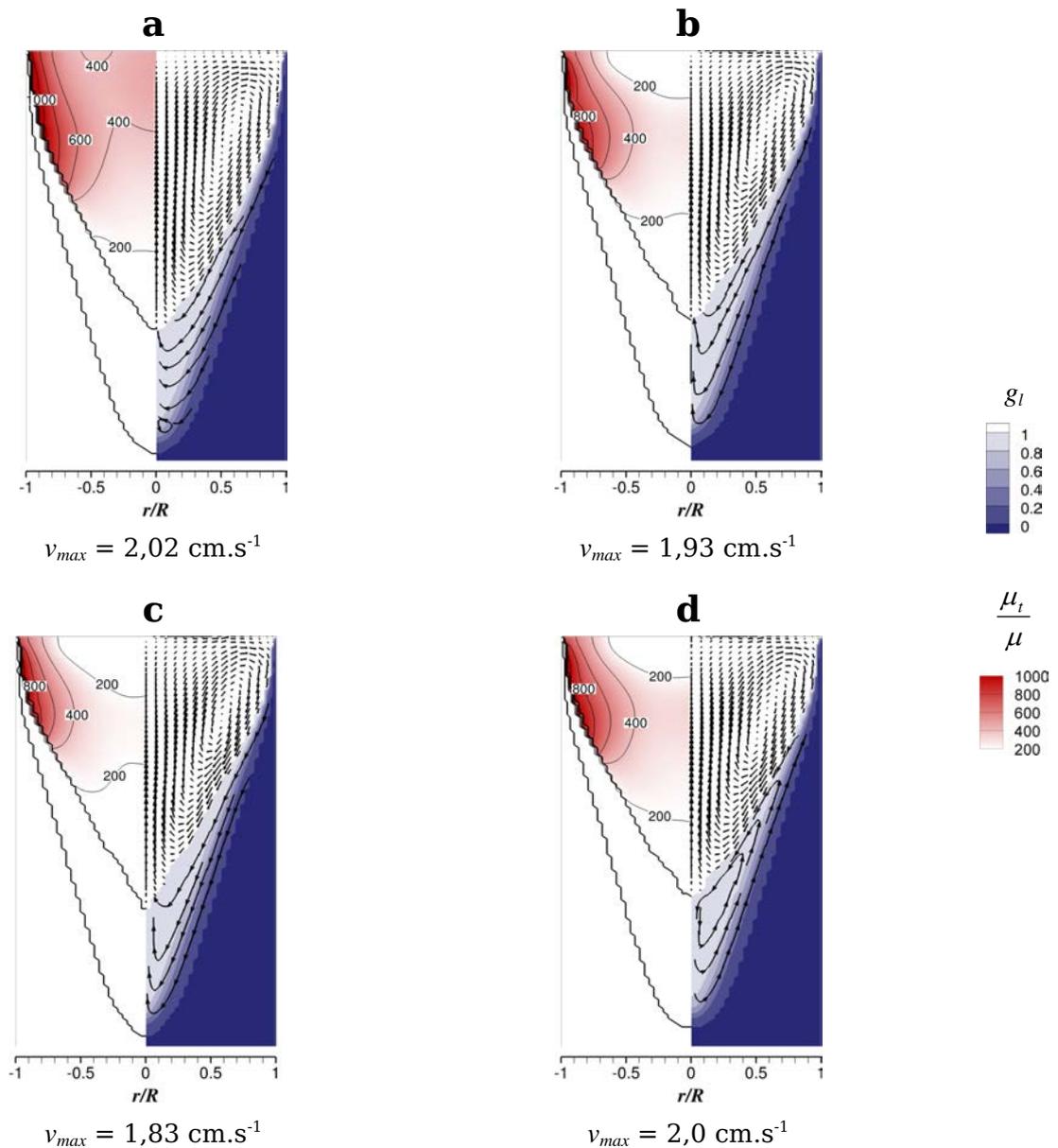
En effet, la redistribution de soluté au cours de la solidification qui a lieu dans la zone pâteuse cause un enrichissement de la phase liquide en Sn puisque  $k_p^{Sn} < 1$ . Dans le cas (c), cet enrichissement cause une augmentation de la masse volumique car  $\beta_S^{Sn}$  est négatif et, par conséquent, les forces de volume thermique et solutale coopèrent. Dans le cas (d), l'enrichissement du liquide en Sn est associé à une diminution de la masse volumique du liquide car  $\beta_S^{Sn}$  est positif. Ainsi, la force de volume solutale tend à favoriser un écoulement dirigé des zones riches en Sn vers les zones où la teneur en Sn est faible. Ainsi, la présence d'un second vortex dans le cas (d) montre que dans la zone pâteuse, au niveau de la région centrale du lingot, la convection solutale est prédominante.

En outre, la stratification de la teneur en Sn dans le puits liquide a aussi une influence sur la génération de la turbulence. La figure IV.6 montre que les gradients de concentration dans la direction  $z$  sont positifs. Ainsi, d'après l'expression du terme source  $G_k^S$  du modèle  $k-\varepsilon$  (cf. chapitre II, éq. (II.112)), la stratification de la teneur en Sn laminarise

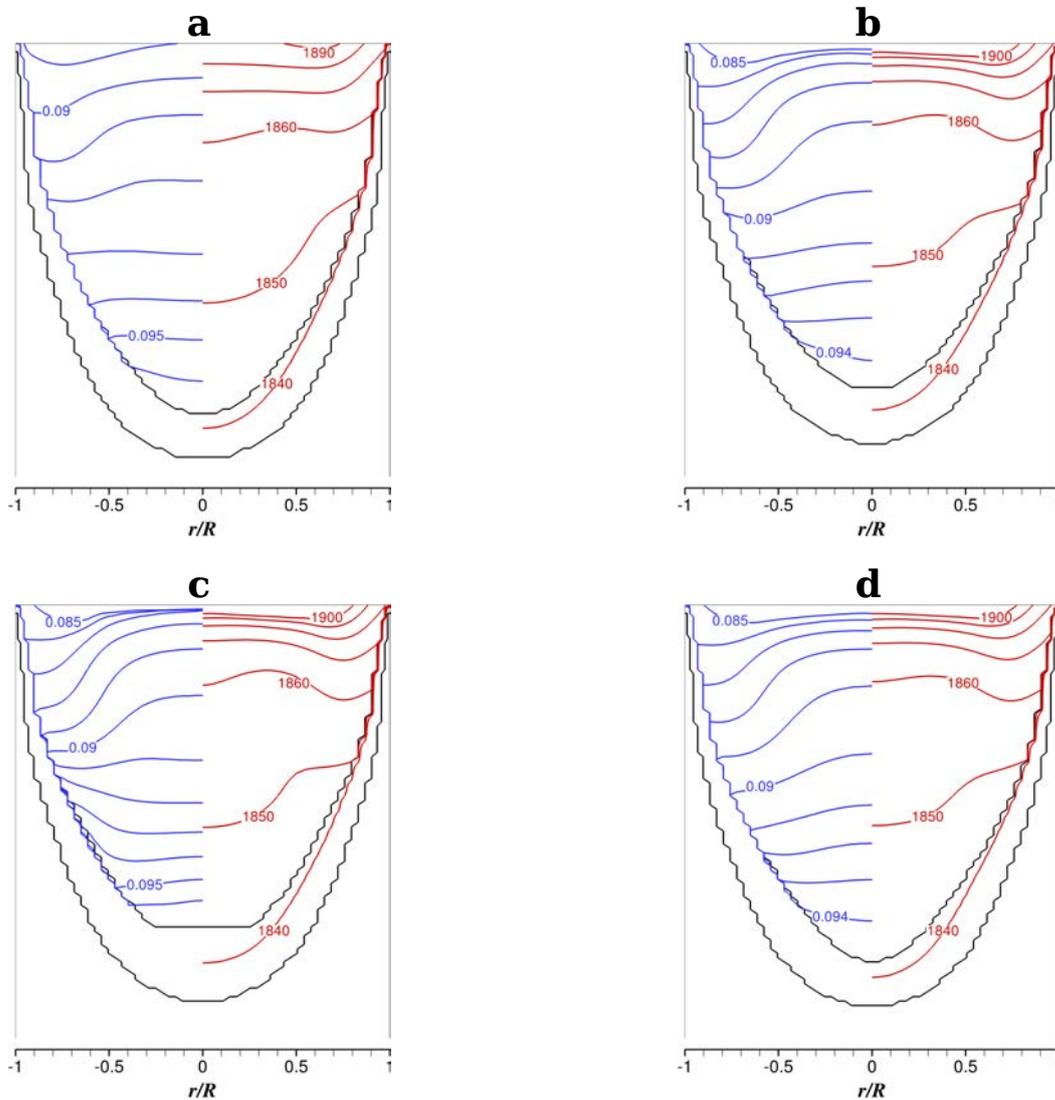
l'écoulement si  $\beta_s^{Sn}$  est négatif et génère de la turbulence si  $\beta_s^{Sn}$  est positif. Cet effet est bien observé lorsqu'on compare les cartes d'intensité de turbulence dans les cas (c) et (d).



**FIGURE IV.4** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_1$  de la refusion du Zy-4 (brassage alterné et vitesses orthoradiales élevées). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : Convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans la partie supérieure du puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la partie inférieure du puits liquide et dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la vitesse maximale dans le plan  $r-z$ ).



**FIGURE IV.5** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_3$  de la refusion de l'alliage Zy-4 (brassage unidirectionnel). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans le puits liquide où les vitesses sont élevées, et par des lignes de courant dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la vitesse maximale dans le plan  $r-z$ ).



**FIGURE IV.6** – Iso-valeurs de ségrégation relative en Sn  $(\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn})/\omega_0^{Sn}$  (à gauche) et isothermes (à droite) pour le brassage alterné à l'instant  $t_1$  (vitesses angulaires élevées). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$

### Vitesses orthoradiales faibles (instant $t_2$ au cours du brassage alterné)

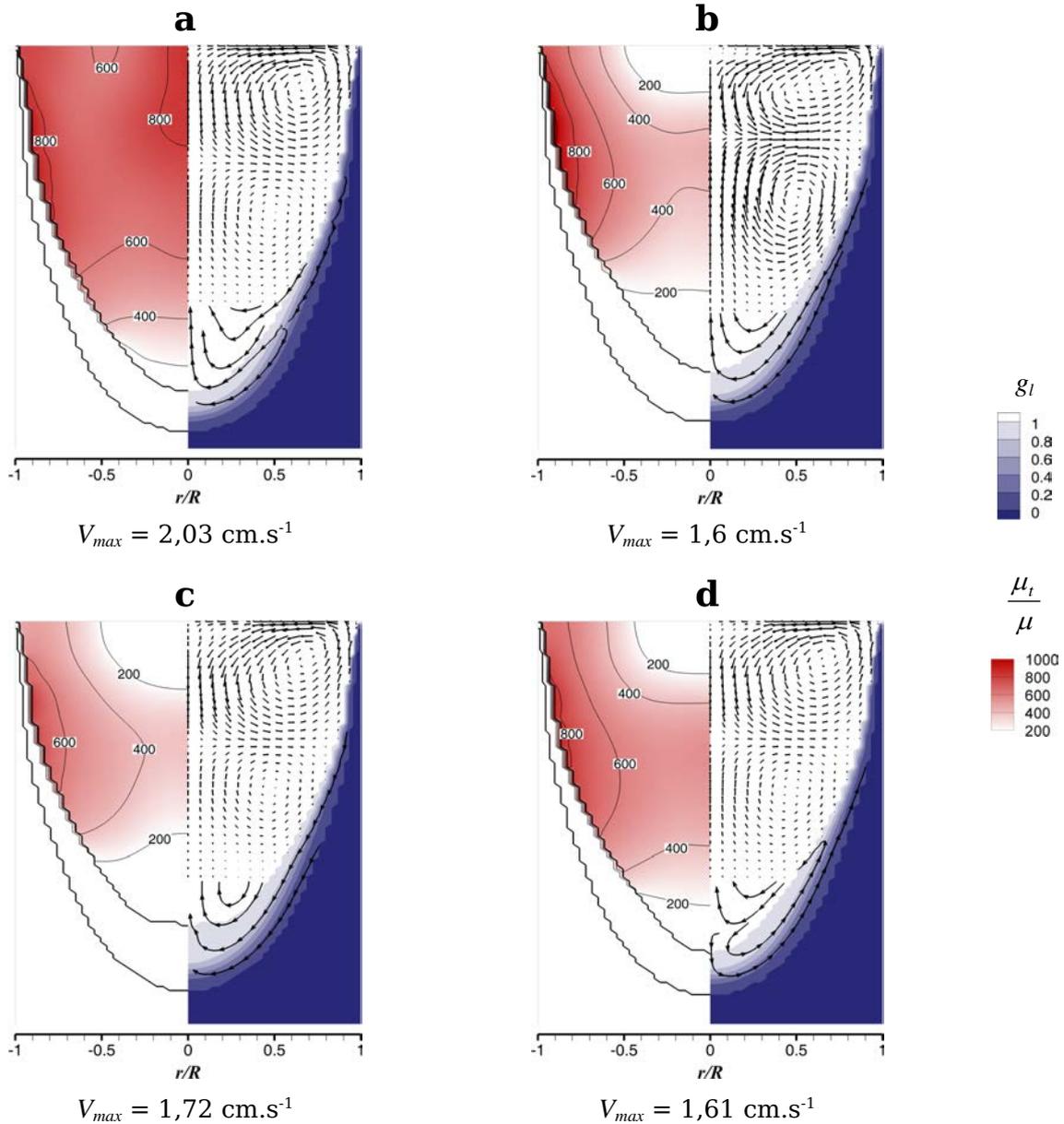
Le comportement hydrodynamique à l'instant  $t_2$  est présenté dans la figure IV.7.

Du fait de la diminution des forces centrifuges par rapport à l'instant  $t_1$ , l'influence des forces électromagnétiques auto-induites devient suffisamment importante pour que soit créé, dans la partie supérieure du puits liquide, une seconde recirculation descendante le long de l'axe du lingot et ascendante vers la surface latérale.

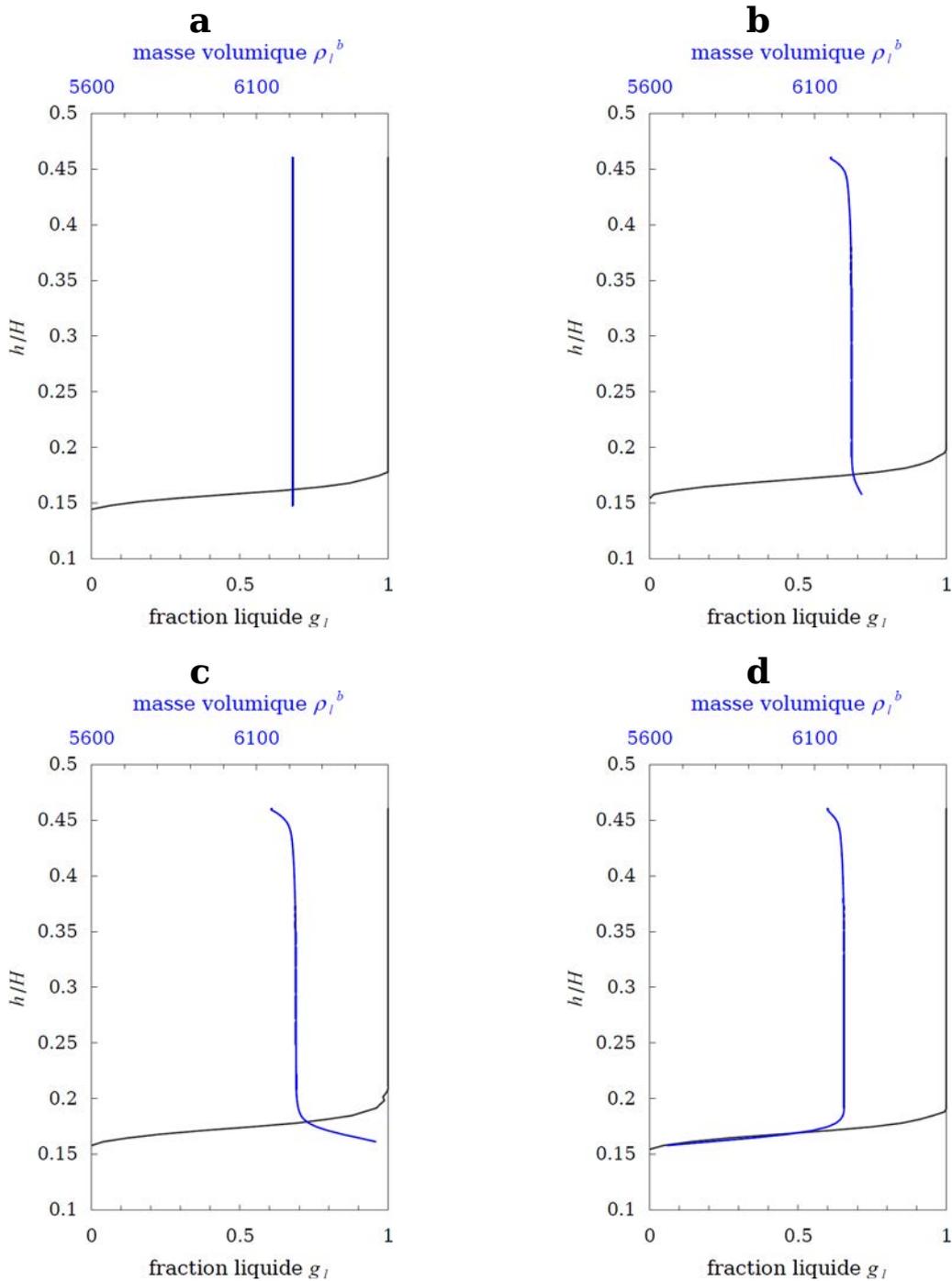
Dans le bain métallique, la prise en compte de la convection thermique entraîne la diminution des vitesses d'écoulement dans la partie supérieure du puits. La force d'expansion thermique contrebalance la force électromagnétique auto-induite. Par ailleurs, dans la région centrale du lingot, les vitesses près de la surface libre sont plus faibles dans les cas (b), (c) et (d) que dans le cas (a).

Dans la figure IV.8, nous avons tracé la masse volumique de la phase liquide calculée par l'approximation de Boussinesq suivant une ligne verticale située dans la région centrale du lingot et choisie arbitrairement ( $r/R = 0,14$ ). Nous pouvons constater que, pour les cas (b), (c) et (d) la masse volumique  $\rho_l^b$  diminue à mesure qu'on s'approche de la surface libre ( $h/H \sim 0,47$ ). Dans cette zone, la température de surface du puits est de l'ordre de 1900 °C à cause de la surchauffe des gouttes de métal liquide principalement. Le métal liquide est donc plus léger dans cette zone que dans le reste du bain où la température est relativement homogène. Ainsi, dans cette région, la force d'expansion thermique devient non négligeable par rapport à la force électromagnétique auto-induite.

La variation de la masse volumique  $\rho_l^b$  en fonction du rapport  $h/H$  montre aussi que l'effet solutal est prédominant dans la zone pâteuse pour les cas (c) et (d). Ainsi, pour  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ , la force de volume solutale créée, dans la zone pâteuse, une recirculation ascendante au cours du brassage unidirectionnel.



**FIGURE IV.7** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_2$  de la refusion de l'alliage Zy-4 (brassage alterné et vitesses orthoradiales faibles). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans la partie supérieure du puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la partie inférieure du puits liquide et dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la vitesse maximale dans le plan  $r$ - $z$ ).



**FIGURE IV.8** – Évolution de la fraction liquide  $g_l$  (—) et de la masse volumique  $\rho_l^b$  (—) le long d'une ligne verticale située à  $r/R = 0.14$  à l'instant  $t_2$  de la refusion de l'alliage Zy-4 (brassage alterné et vitesses orthoradiales faibles). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ .

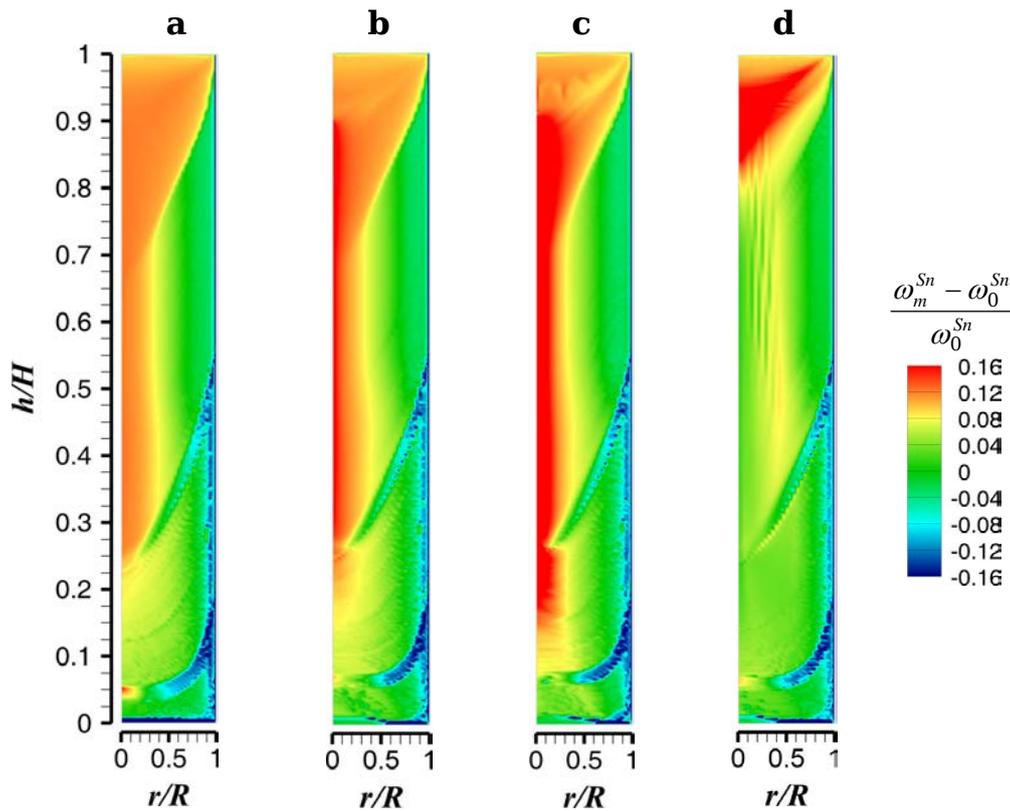
### IV.2.c Macroségrégation

Pour chaque cas, la carte de ségrégation relative en Sn dans le lingot final est présentée (figure IV.9).

Dans un premier temps, nous pouvons faire trois remarques d'ordre général. Premièrement, comme le coefficient de partage de Sn est inférieur à 1, la teneur moyenne en Sn du puits liquide augmente à mesure que le lingot croit. Ainsi, la zone enrichie en tête de lingot correspond à la solidification du dernier puits liquide, après la coupure de l'arc électrique. Rappelons qu'aucun hot-topping (masselottage) n'a été réalisé pour cette refusion.

Deuxièmement, les deux bandes inclinées appauvries en Sn sont dues à l'application pendant quelques minutes du brassage unidirectionnel fort afin de marquer le puits liquide.

Troisièmement, une ségrégation négative est prédite sur la surface latérale et inférieure du lingot. Ces résultats situés sur l'extrême périphérie du lingot doivent être considérés avec précaution car la ségrégation dans cette zone est très sensible au maillage. De plus, aucune analyse chimique n'a été effectuée sur la surface du lingot afin de confirmer ou d'infirmier ces résultats.



**FIGURE IV.9** – Simulation de la refusion de l'alliage Zy-4 : influence de la convection naturelle sur la macroségrégation en Sn dans le lingot final. Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ .

La comparaison des cartes entre-elles permet d'identifier les rôles des convections forcée et naturelle sur la macroségrégation.

Sans convection thermosolutale – cas (a), le modèle prédit un enrichissement en Sn dans la région centrale du lingot quel que soit le brassage utilisé pendant la refusion. Comme nous l'avons montré précédemment, l'écoulement du liquide dans la zone pâteuse est principalement descendant le long du front de solidification. Sa teneur en Sn augmente à cause de la redistribution de soluté lors de la solidification. Le liquide enrichi en Sn s'accumule au fond du puits liquide et de la zone pâteuse ce qui cause la ségrégation positive dans la zone centrale et une ségrégation relativement neutre dans la zone externe.

Le brassage alterné cause une macroségrégation radiale plus faible que le brassage unidirectionnel car l'inversion de la direction de l'écoulement dans la partie supérieure des zones liquide et pâteuse homogénéise chimiquement le bain métallique lorsque les vitesses orthoradiales sont faibles (instant  $t_2$ ).

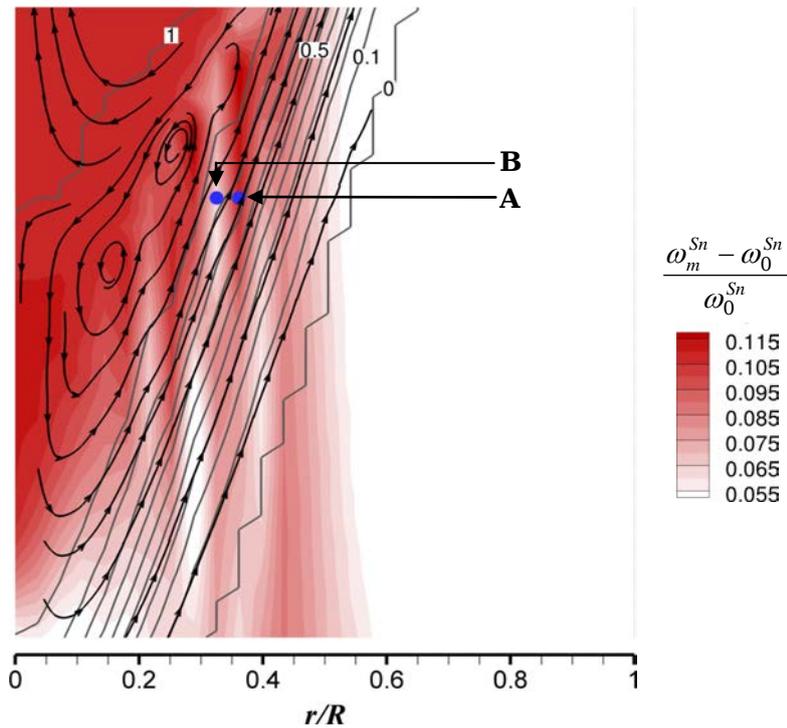
Pour les deux modes de brassage, la prise en compte de la convection thermique augmente légèrement la macroségrégation radiale dans la région centrale du lingot. La convection thermique renforce la force centrifuge dans la zone pâteuse ce qui entraîne une circulation plus intense du liquide interdendritique, et donc une macroségrégation plus forte.

La convection solutale affecte également la macroségrégation dans la zone centrale du lingot.

Dans le cas (c), la macroségrégation radiale est amplifiée car les convections thermique et solutale coopèrent.

Au contraire, dans le cas (d), l'intensité de la macroségrégation radiale est réduite pour les deux types de brassage. Sous l'effet de la convection solutale, le liquide riche en Sn situé dans la région centrale du lingot est déplacé vers la région externe.

Ce transport de soluté est illustré dans la figure IV.10 lorsque le brassage était unidirectionnel (moitié supérieure du lingot). La macroségrégation radiale est significativement réduite jusqu'à une fraction liquide d'environ 0,6. En effet, dans les régions où la fraction liquide est faible, la perméabilité de la zone pâteuse décroît rapidement ce qui réduit fortement la vitesse de l'écoulement ; par conséquent, la macroségrégation n'évolue plus.



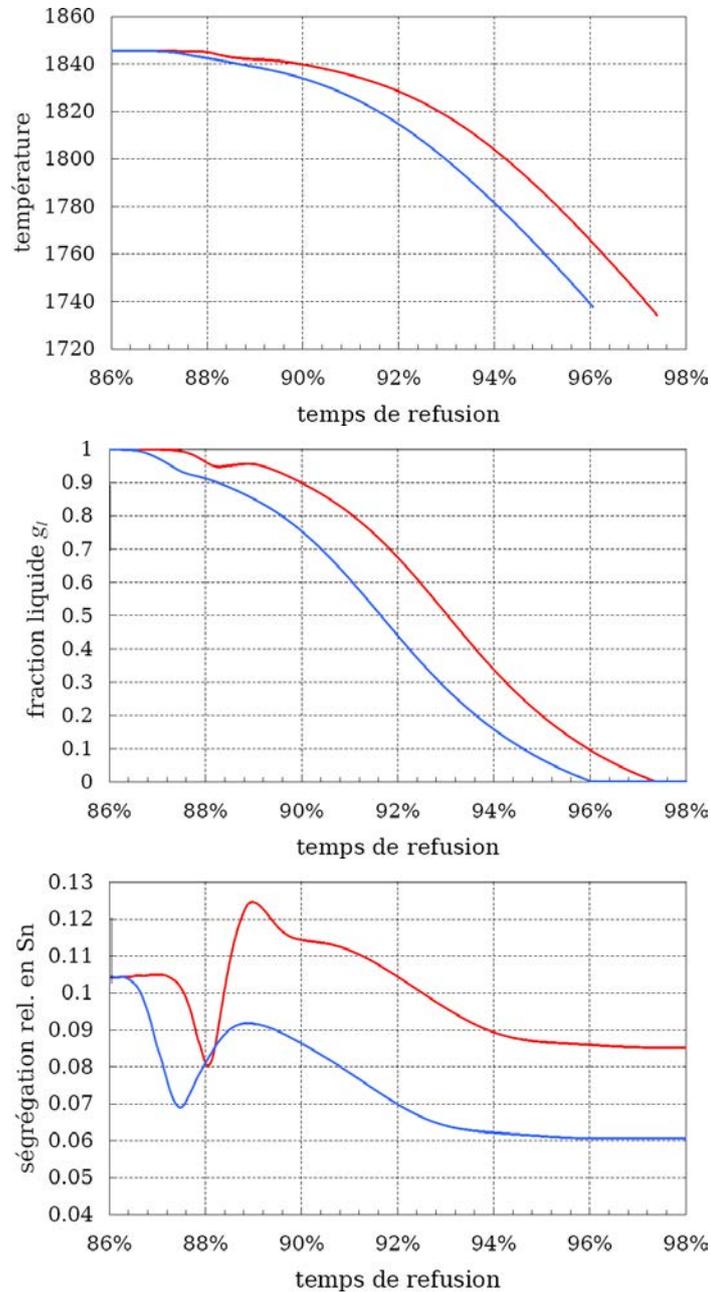
**FIGURE IV.10** – Effets de la convection solutale sur la macroségrégation en Sn dans le cas (d) : convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale où  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ .

En outre, nous observons dans le cas (d) l’apparition de canaux ségrégués dans la partie supérieure du lingot lorsque le brassage était unidirectionnel.

Les évolutions de la température, de la fraction liquide et de la ségrégation relative en Sn ont été enregistrées au cours de la solidification de deux points notés A et B : le point A est localisé dans une mésoségrégation positive et le point B est situé dans la mésoségrégation adjacente qui est moins riche en Sn (cf. figure IV.10). Les courbes obtenues sont représentées dans la figure IV.11.

Au début de la solidification des points A et B, la teneur massique moyenne  $\omega_m^{Sn}$  diminue car le coefficient de partage  $k_p^{Sn}$  est inférieur à 1 et l’écoulement est descendant pour les grandes fractions liquides. Nous constatons ensuite une augmentation de la ségrégation relative en Sn lorsque la fraction liquide est d’environ 0,9. Cette augmentation est la conséquence de la convection solutale qui est prédominante dans la zone pâteuse et qui déplace du liquide riche en Sn du centre vers l’extérieur du lingot.

Cependant, pour le point A, cela se traduit par une refusion ( $\partial g_l / \partial t > 0$ ) alors que pour le point B, nous constatons seulement une diminution de la vitesse de solidification. Ainsi, du fait de la forte dépendance de la perméabilité hydrodynamique vis-à-vis de la fraction liquide ( $K \sim g_l^3 / (1 - g_l)^2$ ), la refusion qui a lieu au point A ouvre un canal plus perméable. L’écoulement du métal liquide s’adapte à cette instabilité de solidification pour passer à travers les régions où la résistance hydrodynamique est la plus faible ce qui crée une ségrégation à l’échelle de la largeur du canal.



**FIGURE IV.11** – Évolution de la température, de la fraction liquide  $g_l$  et de la ségrégation relative en Sn ( $\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn} / \omega_0^{Sn}$ ) au cours de la solidification des points A (—) et B (—) (cf. figure IV.10).

## IV.2.d Comparaison à la macroségrégation expérimentale

### Macroségrégation longitudinale

La figure IV.12 représente, pour chaque élément d'alliage (Sn, Fe, O et Cr), les profils longitudinaux moyennés radialement de macroségrégation obtenus dans les quatre cas.

D'après ces profils, la convection thermosolutale a peu d'influence sur la macroségrégation moyennée radialement suivant la hauteur du lingot. Cette macroségrégation est due principalement à la convection forcée due aux forces électromagnétiques.

Pour les éléments dont le coefficient de partage est inférieur à 1 (Sn, Fe et Cr), la ségrégation relative moyennée radialement est légèrement négative dans la moitié inférieure du lingot. Dans la moitié supérieure, elle est neutre jusqu'à  $h/H \sim 0,8$ , puis positive au niveau du sommet du lingot du fait de la solidification du dernier puits liquide. Pour O, dont le coefficient de partage est supérieur à 1, la variation de la macroségrégation relative est opposées aux précédentes.

L'enrichissement en Sn, Fe et Cr et l'appauvrissement en O au sommet du lingot ( $h/H = 0,88 ; 0,99$ ) prédits par le modèle sont en accord avec les mesures expérimentales. De plus, la ségrégation relativement neutre mesurée à mi-hauteur du lingot ( $h/H = 0,5$ ) est également constaté sur le profil tracé à partir des résultats du modèle.

En revanche, à  $h/H = 0,75$ , le modèle prédit une ségrégation longitudinale moyennée relativement neutre pour tous les éléments alors que la ségrégation en Fe et Cr mesurée expérimentalement est positive. En outre, la ségrégation négative en Sn, Fe et Cr et positive en O au niveau de la moitié inférieure du lingot est plus marquée expérimentalement.

L'étude de la macroségrégation radiale doit permettre d'identifier plus précisément l'origine de ces écarts.

### Macroségrégation radiale

Pour les quatre cas étudiés, la ségrégation relative a été tracée du centre ( $r/R = 0$ ) au bord du lingot ( $r/R = 1$ ), et comparée aux mesures expérimentales. Les profils radiaux de macroségrégation ainsi obtenus sont représentés dans les figures IV.13, IV.14, IV.16 et IV.15 pour Sn, Fe, Cr et O, respectivement.

À l'exception de la plaque ET située à l'extrême tête du lingot ( $h/H = 0,99$ ), les profils montrent que la convection thermosolutale affecte principalement la macroségrégation prédite par le modèle dans la région centrale du lingot. En prenant comme référence les profils obtenus en considérant uniquement la convection forcée, la convection thermique engendre un faible enrichissement (respectivement, appauvrissement) en Sn, Fe et Cr (respectivement, en O). De même, la convection solutale lorsqu'elle renforce l'effet de la convection thermique ( $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  - cas (c)) accentue cet enrichissement (respectivement, cet appauvrissement). En revanche, dans le cas (d) où l'effet de la convection solu-

tale s'oppose et prédomine celui de la convection thermique, la région centrale du lingot est appauvrie en Sn, Fe et Cr et enrichie en O.

La comparaison entre ces résultats numériques et la macroségrégation mesurée expérimentalement met en évidence le rôle de la convection solutale dans la zone pâteuse.

Pour le profil à  $h/H = 0,75$  (plaque MT), les teneurs mesurées expérimentalement en Sn, Fe et Cr augmentent jusqu'à  $r/R = 0,5$ . Parmi les quatre cas simulés, ce comportement est caractéristique du cas (d) où la convection solutale s'oppose et domine la convection thermique ( $\beta_s^{Sn} = 3.10^{-2} \%m^{-1}$ ). La macroségrégation de la région centrale d'un lingot VAR en Zy-4 est en partie causée par un écoulement ascendant dans la zone pâteuse dû aux forces d'expansion solutales. Le nombre de mesures expérimentales réalisées n'est pas suffisant pour conclure sur la présence de mésoségrégations dans cette région. Par ailleurs, de tels canaux ségrégués n'ont jamais été observés expérimentalement dans des lingots VAR en alliage de zirconium.

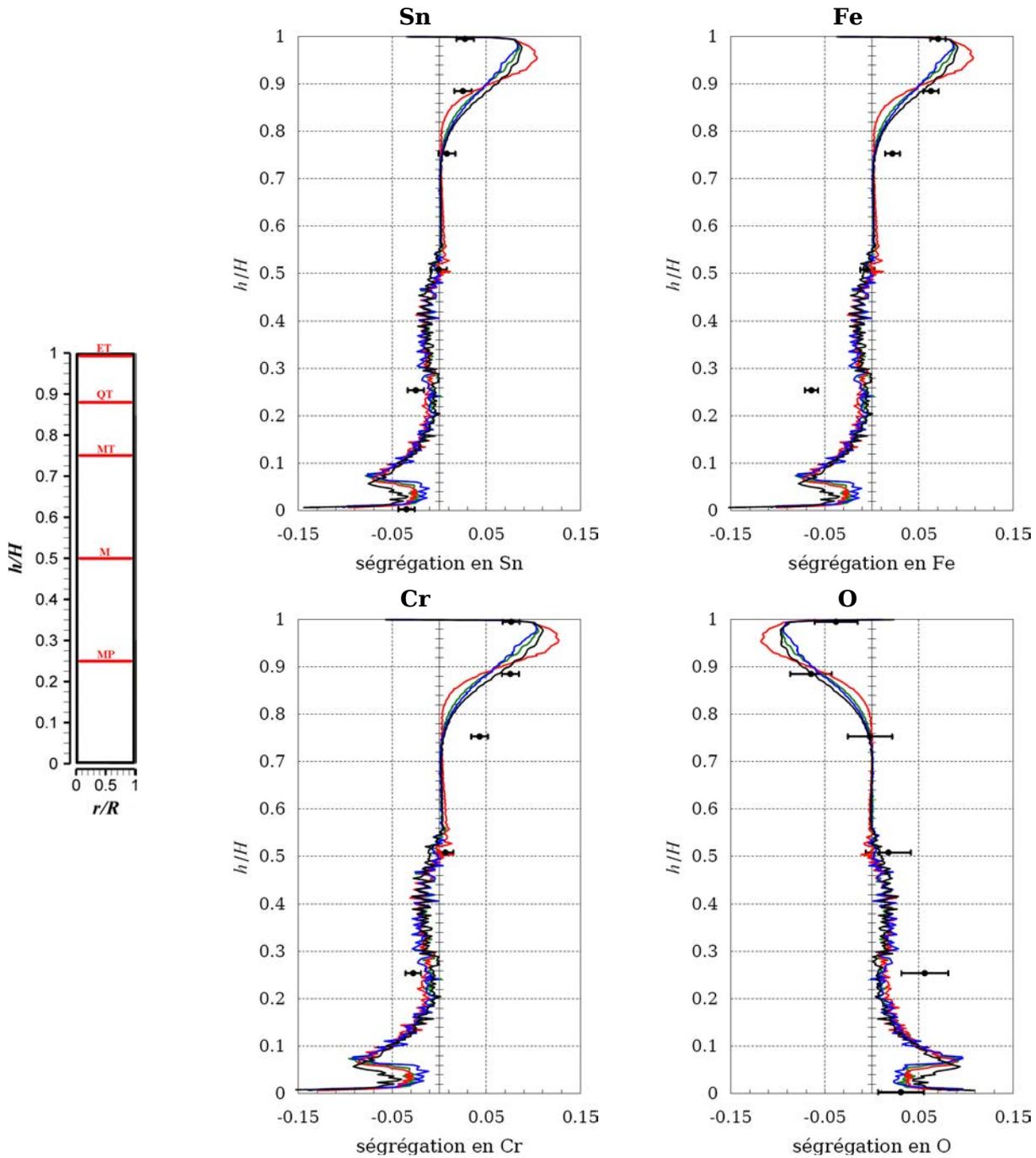
Par ailleurs, la ségrégation longitudinale moyennée radialement en Fe et Cr est positive à cette hauteur d'après les mesures expérimentales alors qu'elle est relativement neutre d'après le modèle. Les profils radiaux en Fe et Cr à  $h/H = 0,75$  (plaque MT) montrent que cet écart est dû à la prédiction d'une ségrégation négative dans la partie externe du lingot alors que les analyses chimiques indiquent une ségrégation positive. Du fait de la pondération appliquée pour tracer les profils longitudinaux, les mesures effectuées dans la partie externe du lingot ont un fort impact.

Pour les profils situés à  $h/H = 0,25 ; 0,5 ; 0,88$  (plaques MP, M et QT), les écarts entre les macroségrégations prédites et expérimentales sont relativement importants, même en terme de tendance et quel que soit le cas considéré.

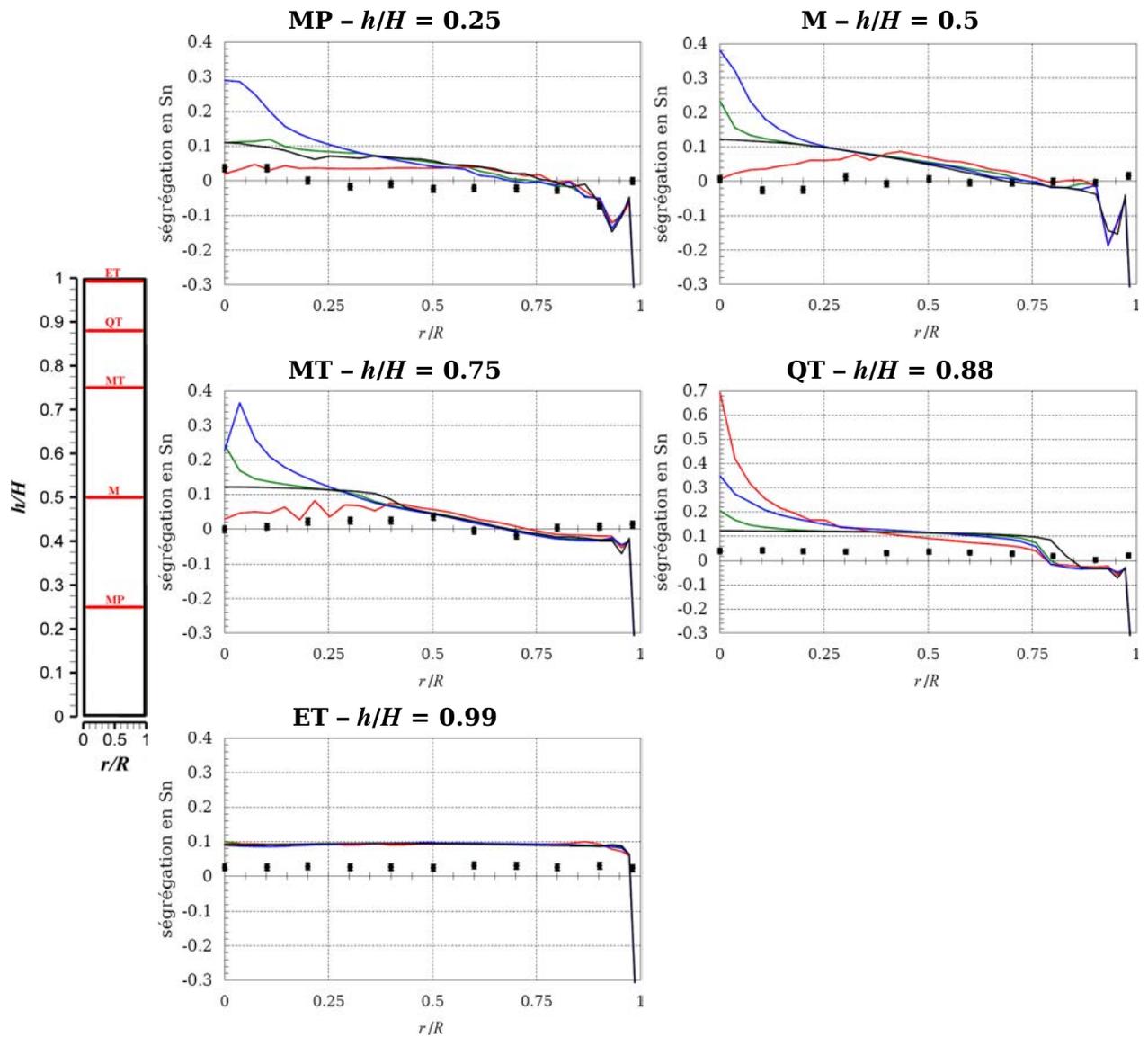
Bien que la ségrégation moyennée radialement soit relativement neutre à  $h/H = 0,5$  (plaque M) d'après les profils longitudinaux, le modèle ne prédit pas la ségrégation négative en Sn, Fe et Cr (positive en O) mesurée expérimentalement dans la région centrale du lingot. De même, à  $h/H = 0,25$  (plaque MP), la ségrégation négative en Sn, Fe et Cr à partir de  $r/R = 0,25$  n'est pas prédite quel que soit le cas considéré.

Comme nous le verrons dans §IV.3, l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  utilisé dans le modèle de perméabilité de la zone pâteuse joue un rôle crucial dans la prédiction de la macroségrégation, aussi bien qualitativement que quantitativement.

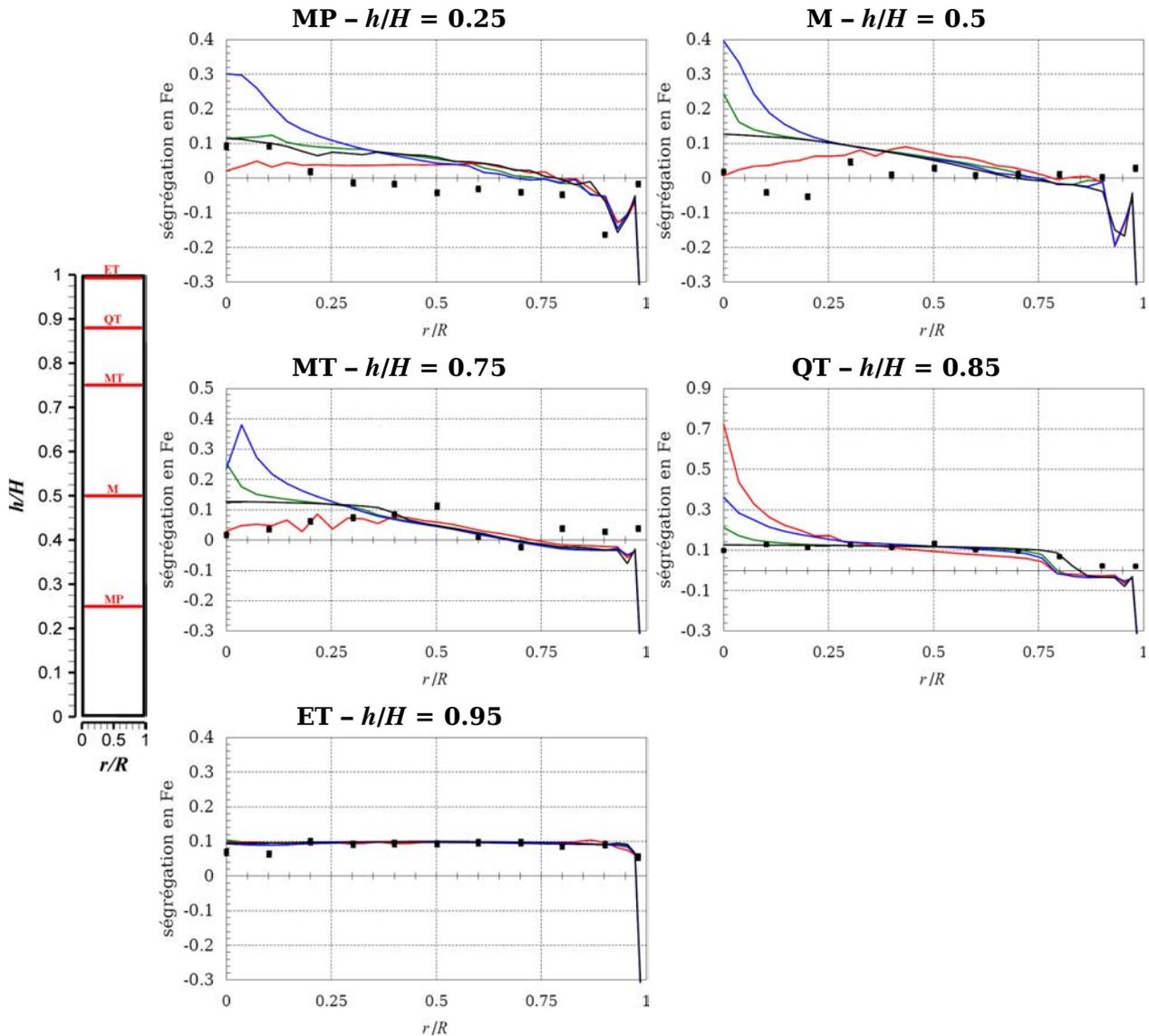
De plus, le mouvement de grains équiaxes non pris en compte dans les résultats présentés dans ce chapitre semble influencer significativement la macroségrégation dans ce lingot (cf. chapitre VI).



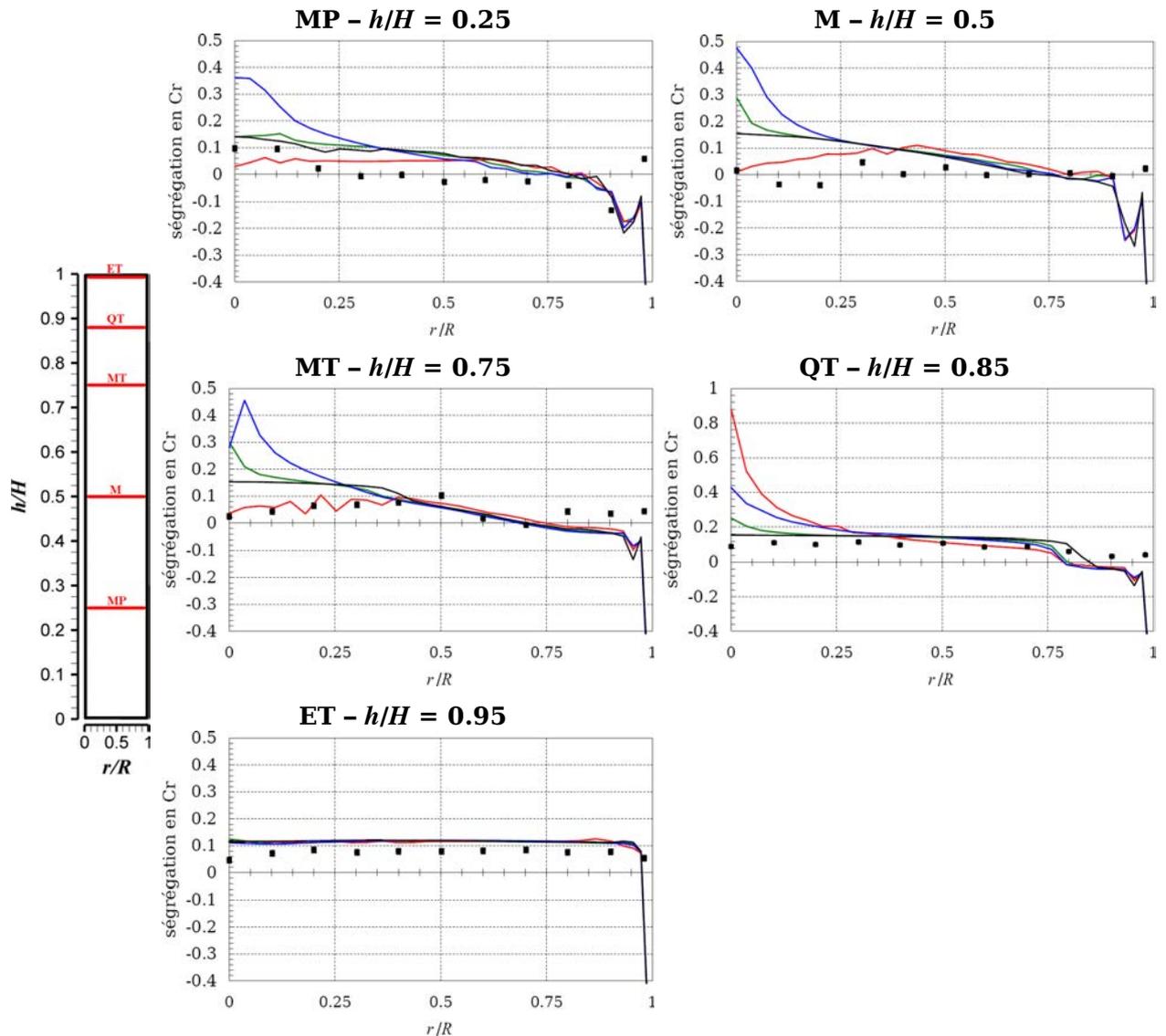
**FIGURE IV.12** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la convection thermosolutale sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas(c)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



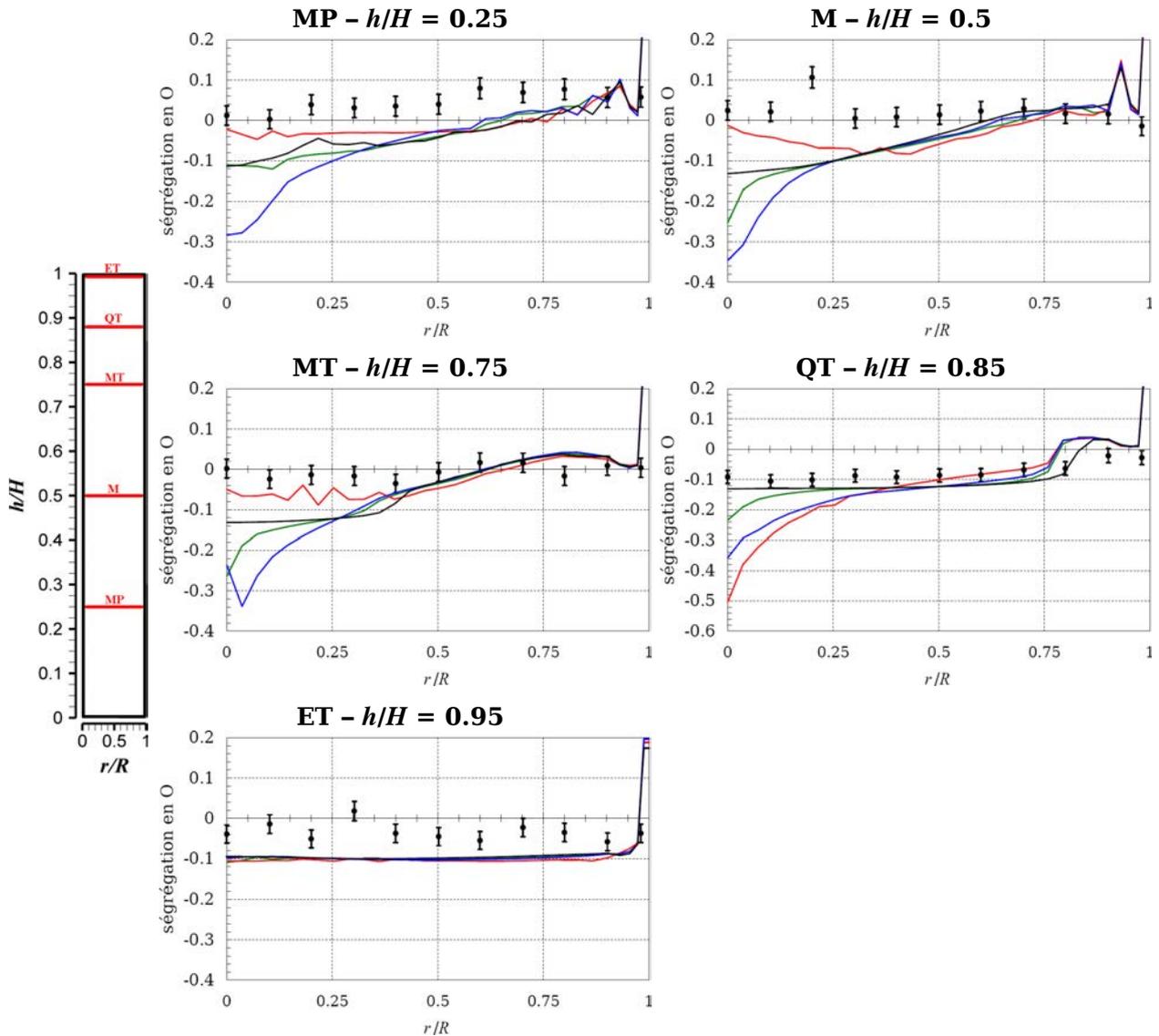
**FIGURE IV.13** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la convection thermosolutale sur les profils radiaux de ségrégation relative en Sn  $(\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn})/\omega_0^{Sn}$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE IV.14** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la convection thermosolutale sur les profils radiaux de ségrégation relative en Fe  $(\omega_m^{Fe} - \omega_0^{Fe}) / \omega_0^{Fe}$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE IV.15** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la convection thermosolutale sur les profils radiaux de ségrégation relative en Cr  $(\omega_m^{Cr} - \omega_0^{Cr})/\omega_0^{Cr}$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE IV.16** – Refusion de l'alliage Zy-4 : influence de la convection thermosolutale sur les profils radiaux de ségrégation relative en O  $(\omega_m^O - \omega_0^O)/\omega_0^O$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — (green) : Convection forcée et convection naturelle d'origine thermique (cas (b)). — (blue) : Convection forcée et convection naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = -1 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — (red) : Convection forcée et convection naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).

### IV.3 Influence de l'espacement interdendritique dans le modèle de perméabilité de la zone pâteuse

Pour les alliages de zirconium, l'espacement interdendritique des bras primaires n'est pas mesurable par observation métallographique ou par la réalisation d'une cartographie chimique grâce à une microsonde de Castaing. En effet, la transformation à l'état solide  $\beta \rightarrow \alpha$  modifie significativement la microségrégation induite lors de la solidification (cf. chapitre III, §III.4.b).

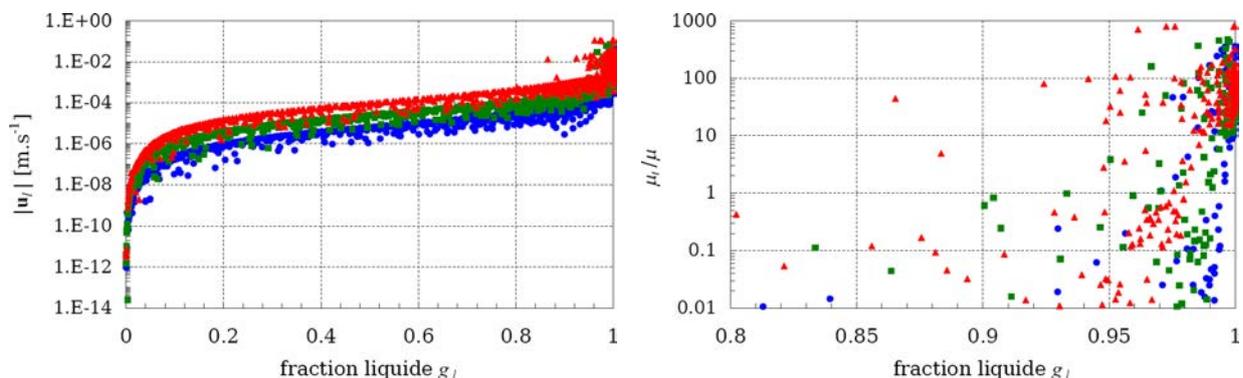
Ainsi, nous ne disposons pas d'une évaluation fiable de la taille caractéristique,  $\lambda_{DAS}$ , qui est utilisée dans le modèle de Kozeny-Carman pour calculer la perméabilité de la zone pâteuse (cf. chapitre II, éq. (II.81)).

Tous les résultats présentés précédemment ont été obtenus avec  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$ , soit une constante de perméabilité  $K_0$  égale à  $1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ .

Afin d'estimer l'influence de  $\lambda_{DAS}$  sur la macroségrégation, deux nouveaux cas ont été simulés. Dans le premier cas,  $\lambda_{DAS}$  était égal à  $67 \mu\text{m}$ , soit  $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$ . Cela réduit la perméabilité de la zone pâteuse à une fraction liquide donnée, ce qui pénalise l'écoulement interdendritique. Dans le second cas,  $\lambda_{DAS}$  a été pris égal à  $268 \mu\text{m}$ , soit  $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$  et ainsi, l'écoulement interdendritique est favorisé.

Pour ces deux nouvelles simulations, la convection naturelle est prise en compte avec  $\beta_S^{Sn} = 3 \cdot 10^{-2} \% \text{ m}^{-1}$  (cas (d) du §IV.2).

La figure IV.17 illustre l'effet de l'espacement interdendritique sur l'écoulement dans la zone pâteuse. Elle représente l'évolution de la norme de la vitesse intrinsèque de la phase liquide et de l'intensité de turbulence  $\mu_t/\mu$  en fonction de la fraction liquide au cours du brassage unidirectionnel (instant  $t_3$ ). Pour cette figure, l'ensemble des points du maillage situés dans la zone pâteuse (i. e.  $g_l < 1$ ) a été pris en considération, quelle que soit leur position.



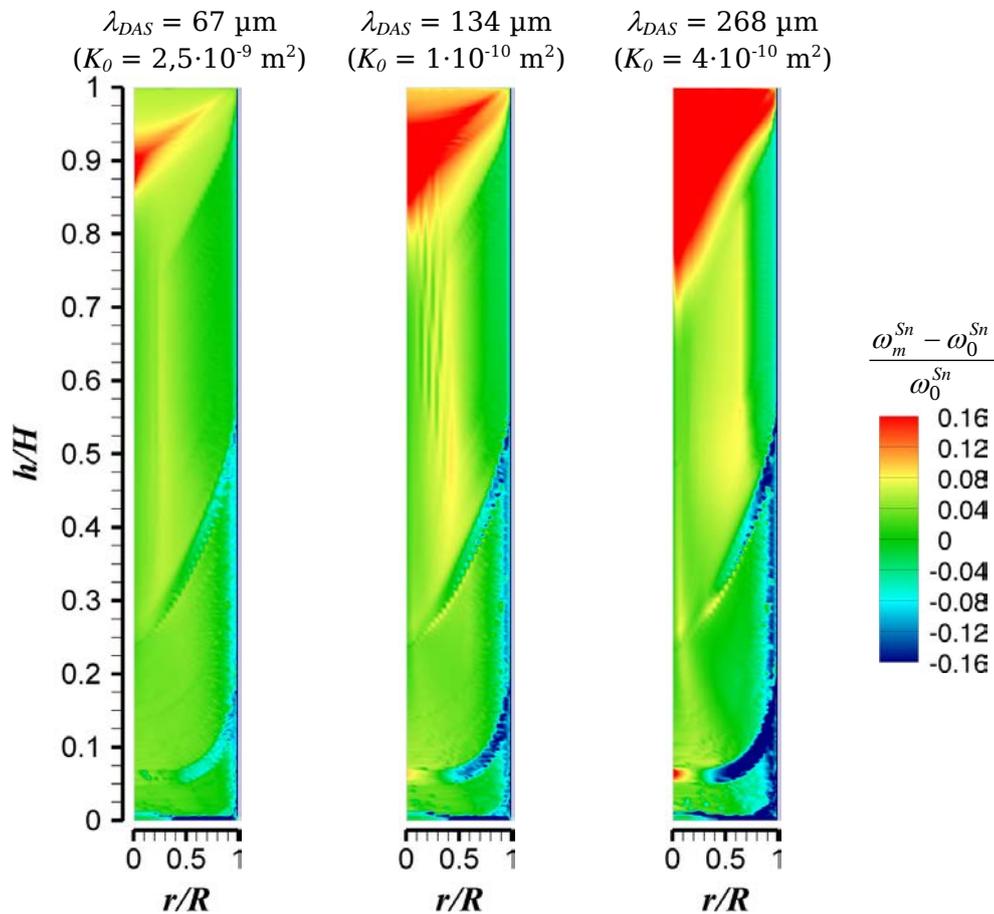
**FIGURE IV.17** – *A gauche* : norme de la vitesse intrinsèque de la phase liquide ( $|u_l|$ ) dans la zone pâteuse en fonction de la fraction liquide  $g_l$ . *A droite* : rapport des viscosités turbulente et dynamique ( $\mu_t/\mu$ ) dans la zone pâteuse en fonction de la fraction liquide  $g_l$  (échelle logarithmique sur les axes des ordonnées). ● :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). ■ :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ). ▲ :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).

Comme nous l'attendions, l'augmentation de  $\lambda_{DAS}$  entraîne l'augmentation globale de la vitesse intrinsèque de la phase liquide à un  $g_l$  donné. Le doublement de l'espacement interdendritique multiplie approximativement par 10 cette vitesse.

La même tendance est observée pour l'intensité de la turbulence bien que les valeurs maximales obtenues pour les grandes fractions liquides soient d'un ordre de grandeur comparable dans les trois cas. Notons également que l'interaction solide/liquide dans la zone pâteuse engendre une diminution rapide de l'intensité de la turbulence.

Nous allons maintenant déterminer l'impact de ces différents espacements interdendritiques sur la macroségrégation.

Pour les trois valeurs de  $\lambda_{DAS}$ , les cartes de macroségrégation en Sn du lingot final font l'objet de la figure IV.18.



**FIGURE IV.18** – Simulation de la refusion de l'alliage Zy-4 : influence de l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  sur la macroségrégation en Sn dans le lingot final.

L'augmentation de l'espacement interdendritique accentue particulièrement la ségrégation dans les régions du lingot où l'écoulement est dominé par la convection forcée due aux conditions opératoires. Ainsi, la ségrégation négative au niveau du bord du lingot et celle

causée par l'application du brassage unidirectionnel de forte intensité pour marquer le puits liquide sont accrues.

Par ailleurs, pour le brassage alterné (moitié inférieure du lingot), une diminution d'un facteur 2 de  $\lambda_{DAS}$  par rapport à 134  $\mu\text{m}$  influe peu sur la teneur massique en Sn prédite par le modèle. L'augmentation de  $\lambda_{DAS}$  influence un peu plus la macroségrégation.

L'effet de l'espacement interdendritique sur la macroségrégation est plus important pour le brassage unidirectionnel (moitié supérieure du lingot).

La zone ségrégée positivement est déplacée vers l'axe du lingot pour une faible perméabilité de la zone pâteuse alors qu'elle est déplacée vers l'extérieur du lingot pour une forte perméabilité. En effet, l'augmentation de la perméabilité de la zone pâteuse favorise la convection solutale et ainsi, le transport de soluté du centre vers l'extérieur du lingot.

Les canaux ségrégés obtenus pour  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ne sont plus prédits par le modèle pour un espacement interdendritique plus faible ou plus important. Nous avons montré dans §IV.2.c que ces canaux ségrégés sont dus à des déstabilisations locales de l'écoulement dans la zone pâteuse. Pour  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$ , la perméabilité de la zone pâteuse est trop faible pour que l'apport en Sn par la convection solutale cause une refusion locale qui conduirait à la déstabilisation de l'écoulement. Pour  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$ , la vitesse de l'écoulement est suffisamment élevée pour qu'il ne soit pas déstabilisé par des variations locales de perméabilité.

Les profils longitudinaux moyennés radialement (figure IV.19) et les profils radiaux (figures IV.20, IV.21, IV.22 et IV.23) de macroségrégation sont comparés aux mesures expérimentales pour les trois valeurs de  $\lambda_{DAS}$ .

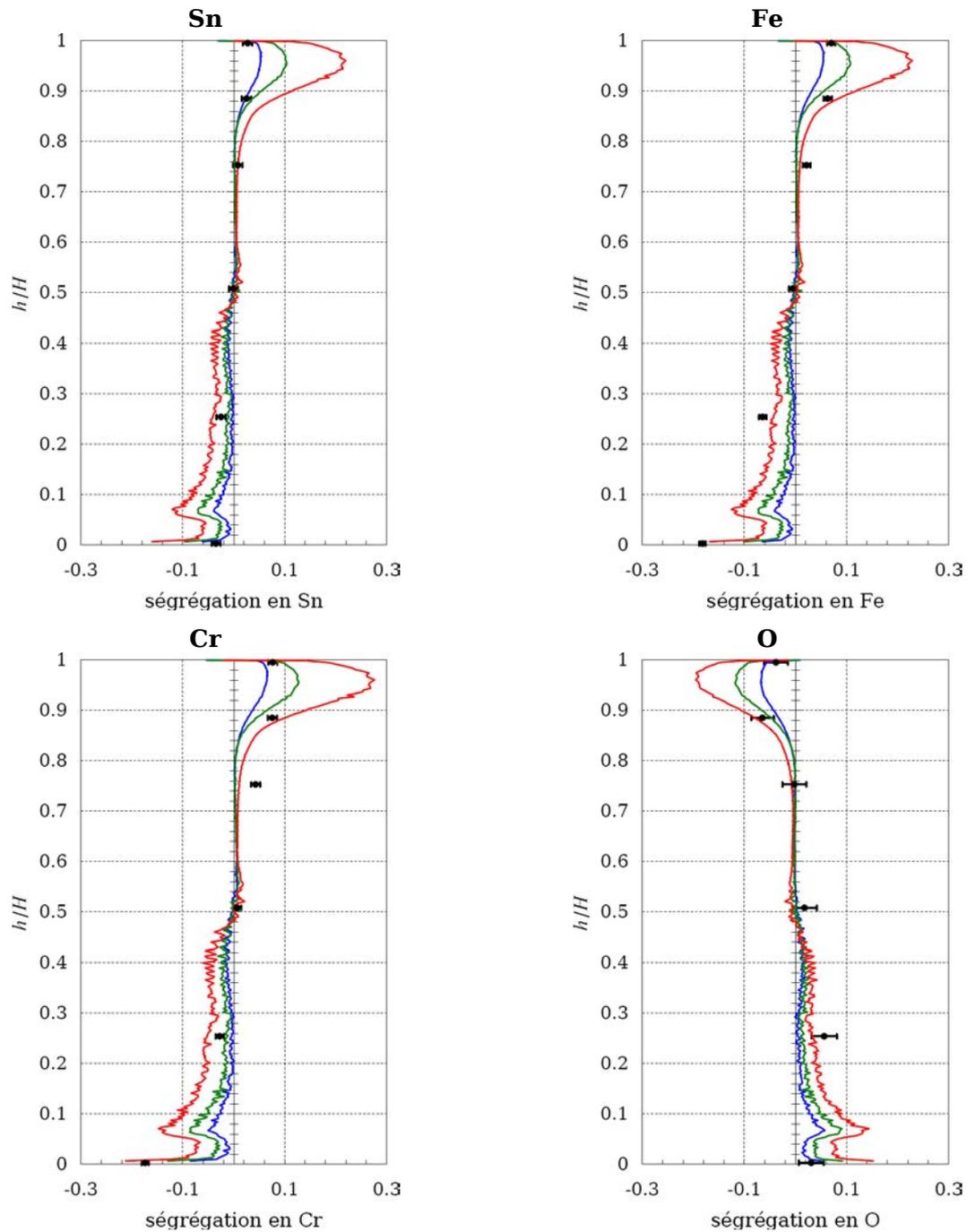
Sur ces profils, l'effet de  $\lambda_{DAS}$  est principalement marqué en tête et en pied de lingot. En particulier, l'augmentation de l'espacement interdendritique de 67 à 268  $\mu\text{m}$  entraîne, en favorisant l'écoulement, une ségrégation négative en pied de lingot de plus en plus forte. Parallèlement, la ségrégation positive causée par le dernier puits liquide est de plus en plus marquée.

Les résultats obtenus à  $h/H = 0,25$  (plaque MP – brassage alterné) confirment qu'un espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  égal à 268  $\mu\text{m}$  rapproche en termes de tendance le profil obtenu par le modèle et celui mesuré expérimentalement.

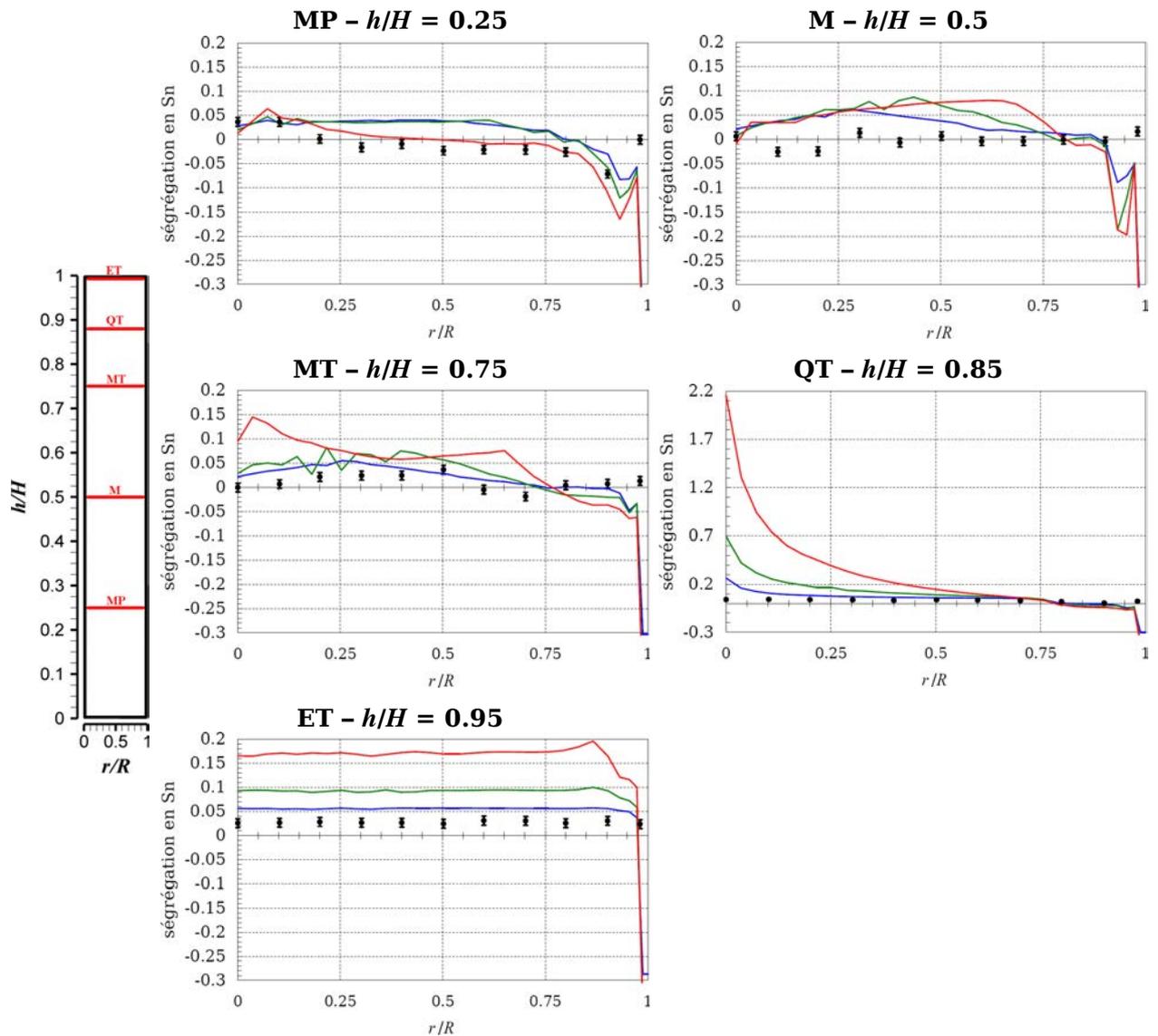
En revanche, pour la moitié supérieure du lingot (plaque MT, QT et ET – brassage unidirectionnel), cet espacement interdendritique accentue les écarts entre les résultats du modèle et les mesures expérimentales.

Pour conclure, l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  est un paramètre essentiel dans la capacité du modèle à prédire la macroségrégation. Il influence non seulement l'intensité de la macroségrégation, mais également les variations radiales des teneurs en soluté à cause de la prépondérance de la convection solutale dans la zone pâteuse.

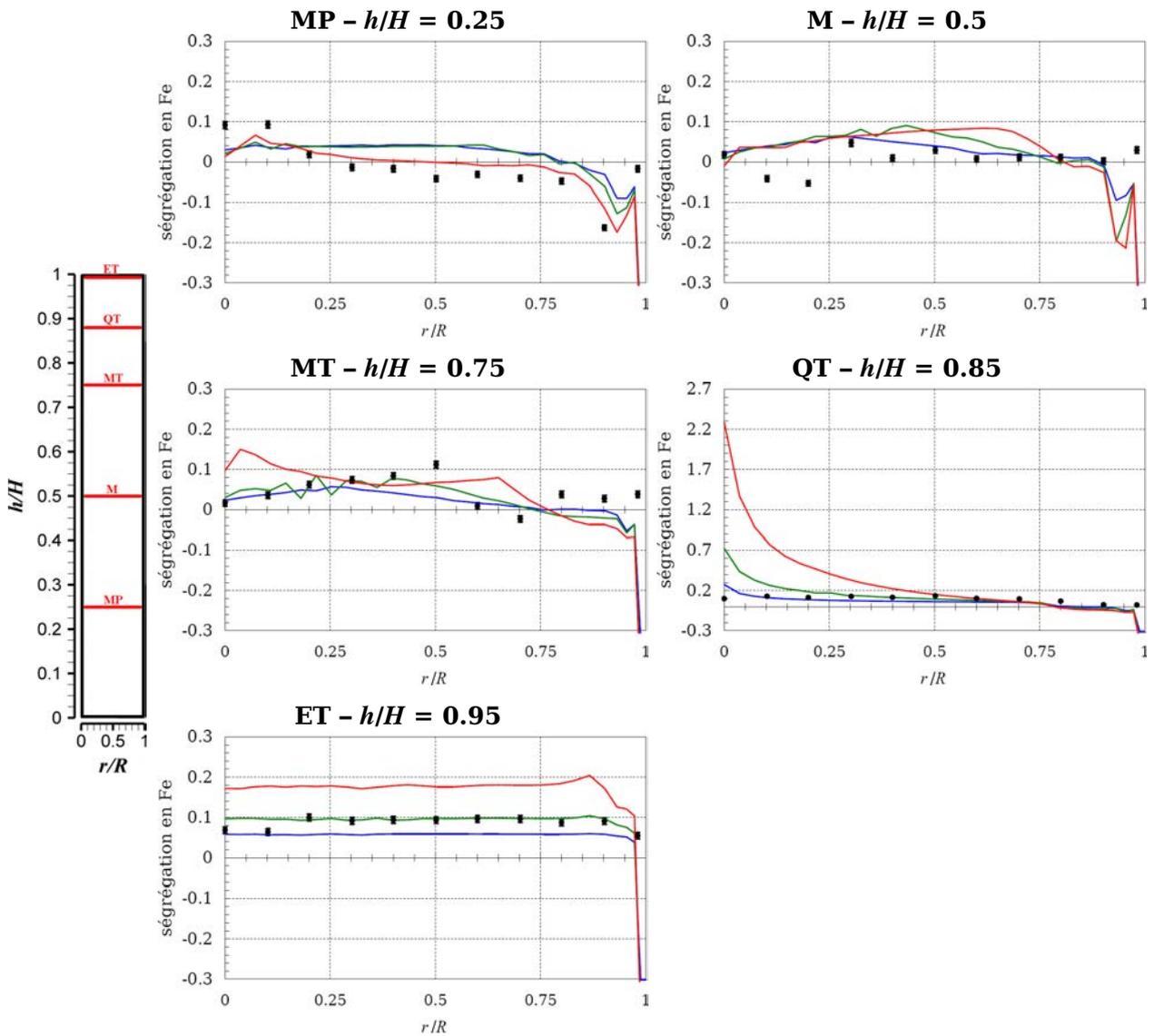
La difficulté expérimentale associée à la mesure d'un espacement interdendritique pour les alliages de zirconium constitue une contrainte pour prédire quantitativement la macroségrégation d'un lingot VAR.



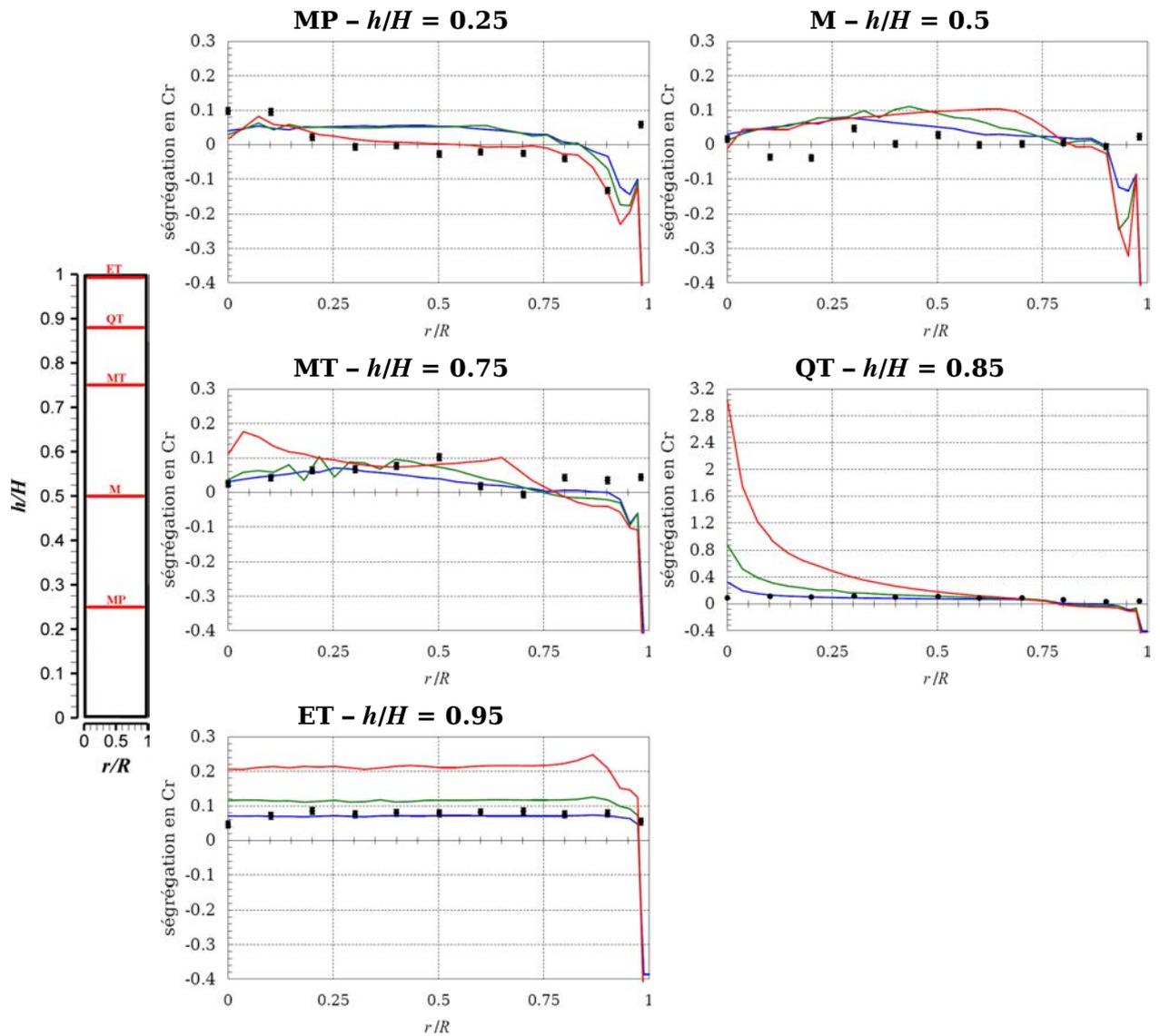
**FIGURE IV.19** – Refusion de l'alliage Zy-4 : influence de l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ .  
 — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).  
 — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).



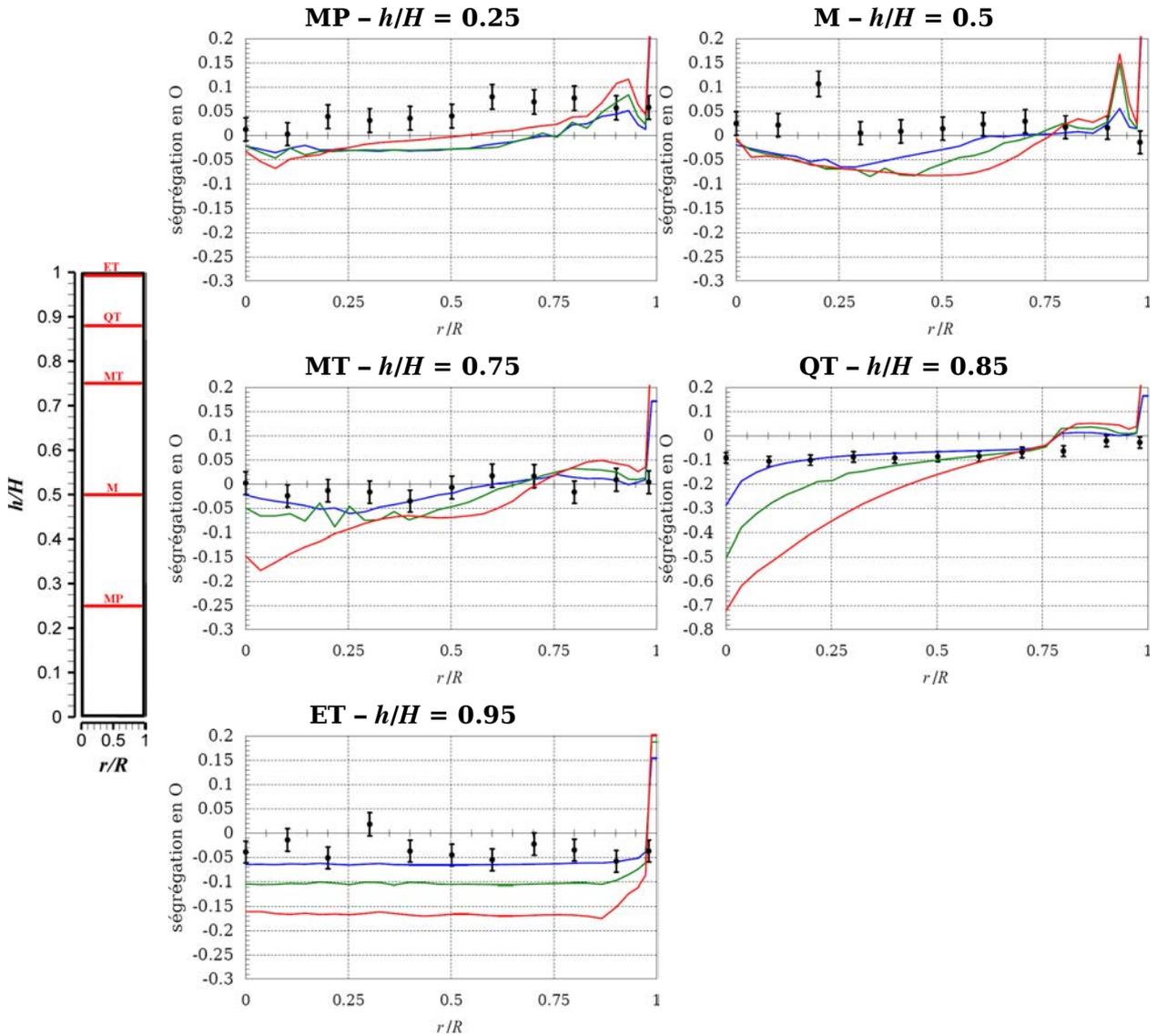
**FIGURE IV.20** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de l’espacement interdendritique sur les profils radiaux de ségrégation relative en Sn  $(\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn}) / \omega_0^{Sn}$ . — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).



**FIGURE IV.21** – Refusion de l'alliage Zy-4 : influence de l'espacement interdendritique sur les profils radiaux de ségrégation relative en Fe  $(\omega_m^{Fe} - \omega_0^{Fe})/\omega_0^{Fe}$ . — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{m}^2$ ).



**FIGURE IV.22** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de l’espacement interdendritique sur les profils radiaux de ségrégation relative en Cr  $(\omega_m^{Cr} - \omega_0^{Cr})/\omega_0^{Cr}$ . — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ) et — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).



**FIGURE IV.23** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de l’espacement interdendritique sur les profils radiaux de ségrégation relative en O  $(\omega_m^O - \omega_0^O) / \omega_0^O$ . — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{m}^2$ ).

## IV.4 Influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification

Afin d'identifier le rôle de la diffusion restreinte des solutés sur la macroségrégation, quatre nouvelles simulations ont été réalisées en employant le modèle cinétique de croissance (cf. chapitre II, §II.3.b). Nous avons fait varier deux paramètres dont les valeurs dans chaque cas sont regroupées dans le tableau IV.2.

Deux données d'entrée du modèle de microségrégation ont un rôle prépondérant sur la redistribution de solutés : les coefficients de diffusion et la densité de grains  $N_0$ .

Pour des grains de morphologie globulaire, la densité de grains est reliée au diamètre des grains  $d_g$  par la relation suivante :

$$N_0 = \frac{6}{\pi} \frac{1}{d_g^3} \quad (\text{IV.3})$$

Nous avons fait varier la densité de grains de  $10^{12}$  à  $10^9 \text{ m}^{-3}$ , ce qui est équivalent à un diamètre de grains variant de 0,124 à 1,24 mm.

Au cours de la solidification de l'alliage Zy-4, le solide est uniquement composé de phase  $\beta$ . Dans les cas (e), (f) et (g), les coefficients de diffusion de chaque élément d'alliage dans la phase solide correspondent aux coefficients de diffusion dans le  $\beta$ -Zr pur des réf. [4] et [5]. Pour le cas (h), nous avons volontairement divisé par 1000 le coefficient de diffusion de Sn pour déterminer son impact sur la prédiction de la macroségrégation par le modèle.

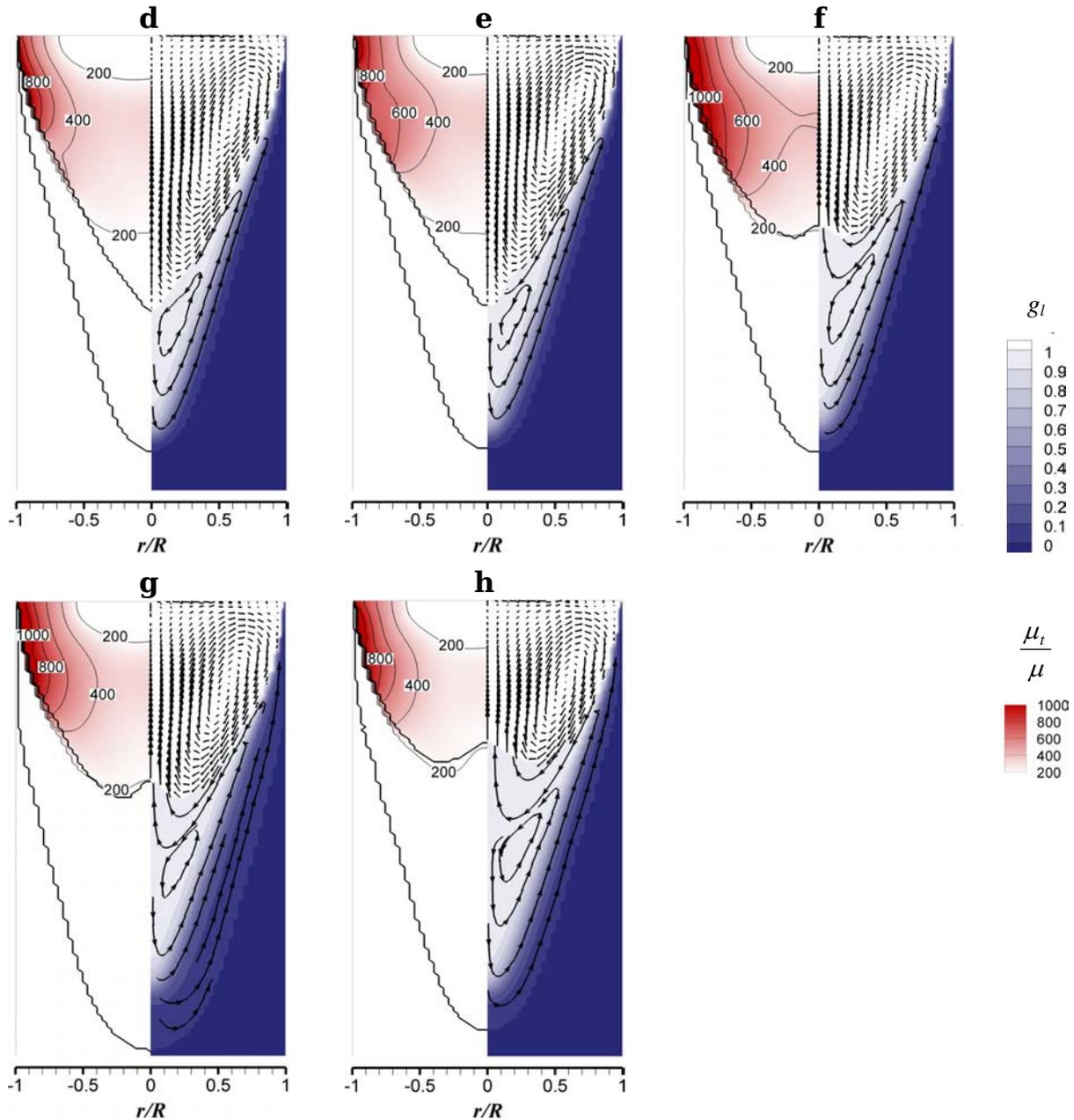
Par ailleurs, dans les quatre cas étudiés, les coefficients de diffusion dans la phase liquide ont tous été pris égaux à  $1 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Les convections thermiques et solutales sont prises en compte avec  $\beta_T = 4 \cdot 10^{-5} \% \text{m}^{-1}$  et  $\beta_S^{\text{Sn}} = 3 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$  (comme dans le cas (d) du §IV.2).

**TABLEAU IV.2** – Influence de la diffusion restreinte des solutés : les quatre cas étudiés

		(e)	(f)	(g)	(h)
$N_0$	$[\text{m}^{-3}]$	$10^{12}$	$10^{10}$	$10^9$	$10^{10}$
$R_g$	$[\text{mm}]$	0,124	0,576	1,24	0,576
$D_s^{\text{Sn}}$	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$	$4,9 \cdot 10^{-11}$	$4,9 \cdot 10^{-11}$	$4,9 \cdot 10^{-11}$	$4,9 \cdot 10^{-14}$
$D_s^{\text{Fe}}$	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-9}$
$D_s^{\text{Cr}}$	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$	$1,3 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-9}$
$D_s^{\text{O}}$	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$	$3,8 \cdot 10^{-9}$	$3,8 \cdot 10^{-9}$	$3,8 \cdot 10^{-9}$	$3,8 \cdot 10^{-9}$
$D_i^i$	$[\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$	$1 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$

Pour les quatre cas définis dans le tableau IV.2, nous avons représenté dans la figure IV.24 la carte de fraction liquide et le comportement hydrodynamique au cours du brassage unidirectionnel (moitié supérieure du lingot – instant  $t_3$ ). Le brassage était alors unidirectionnel (moitié supérieure du lingot). De plus, nous avons ajouté le résultat obtenu dans le cas (d) (règle du bras de levier).

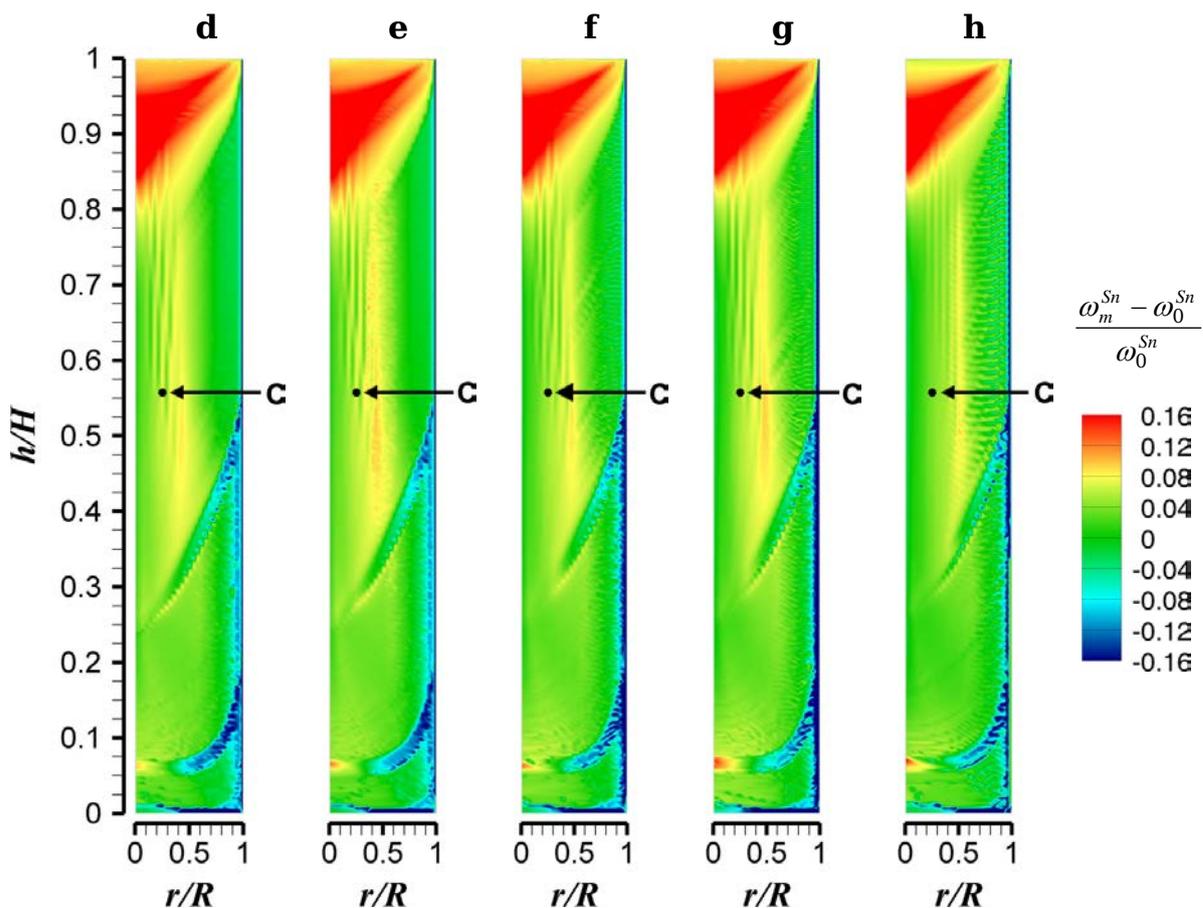


**FIGURE IV.24** – Influence de la densité de germes  $N_0$  et du coefficient de diffusion de Sn dans la phase solide  $D_s^{Sn}$  sur la zone pâteuse et l'écoulement à l'instant  $t_3$  de la refusion de l'alliage Zy-4 (brassage unidirectionnel). Cas (d) : Bras de levier. Cas (e) :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$ . Cas (f) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ . Cas (g) :  $N_0 = 10^9 \text{ m}^{-3}$ . Cas (h) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Sn} = 4,9 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cf tableau IV.2). L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans le puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles.

La diminution de la densité de grains  $N_0$  entraîne la remontée du liquidus et un élargissement de la zone des fractions solides comprises entre 0 et 0,1 ( $0,9 \leq g_l < 1$ ). Cela est dû au fait que plus la densité de grains est faible, plus la surfusion locale sera grande en début de solidification. Par ailleurs, lorsque la densité de germes est de  $10^{12} \text{ m}^{-3}$ , la zone pâteuse est identique à celle obtenue en supposant une diffusion parfaite des solutés dans les phases liquide et solide (règle du bras de levier). Cela signifie que les effets de la diffusion restreinte tendent vers la loi des leviers pour  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$ .

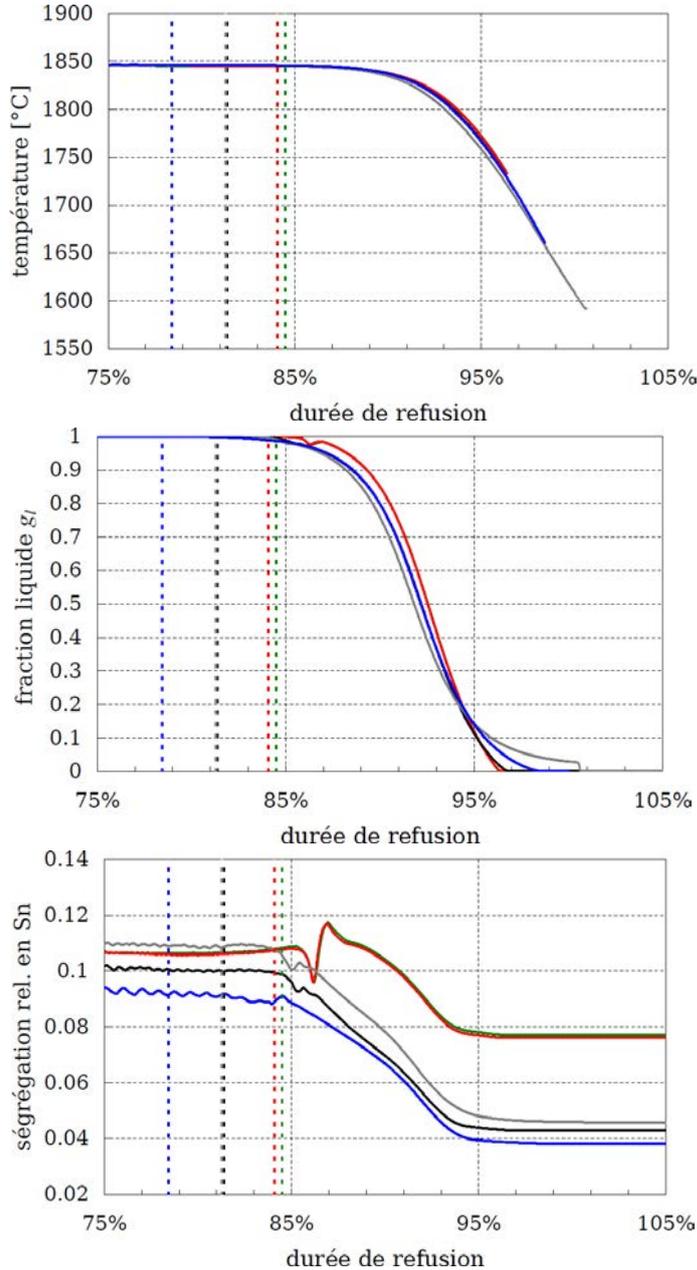
Dans tous les cas, le comportement hydrodynamique reste très similaire. Notons que, malgré la remontée de l'isovaleur de fraction liquide égale à 1 lorsque  $N_0$  diminue, la position de la recirculation causée par la convection solutale est analogue dans tous les cas.

La figure IV.25 compare la carte de macroségrégation en Sn pour les quatre cas ; de plus, la carte obtenue en appliquant la règle des bras de levier est représentée (cas (d) – cf. §IV.2). La comparaison des cartes ne révèle pas de différences de macroségrégation significatives, bien que l'intervalle de solidification diffère entre chaque cas. Néanmoins, on peut noter que la position des mésoségrégations dans la moitié supérieure du lingot (brasage unidirectionnel) varie sensiblement en fonction des cas.



**FIGURE IV.25** – Simulation de la refusion du Zy-4 : influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification sur la macroségrégation en Sn dans le lingot final. Cas (d) : bras de levier, cas (e) :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$ , cas (f) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ , cas (g) :  $N_0 = 10^9 \text{ m}^{-3}$  et cas (h) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Sn} = 4,9 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cf tableau IV.2)

La figure IV.26 représente l'historique de solidification du point C ( $r/R = 0,25$ ;  $h/H = 0,56$  - cf. figure IV.25) dans les cinq cas étudiés. Ce point s'est solidifié lorsque le brassage était unidirectionnel (moitié supérieure du lingot). À 100 %, la coupure de l'arc électrique qui marque la fin de la fusion de l'électrode est intervenue. Nous avons représenté une durée de refusion supérieure à 100 % car, dans le cas (h), la fin de la solidification du point C se déroule après la coupure de l'arc.



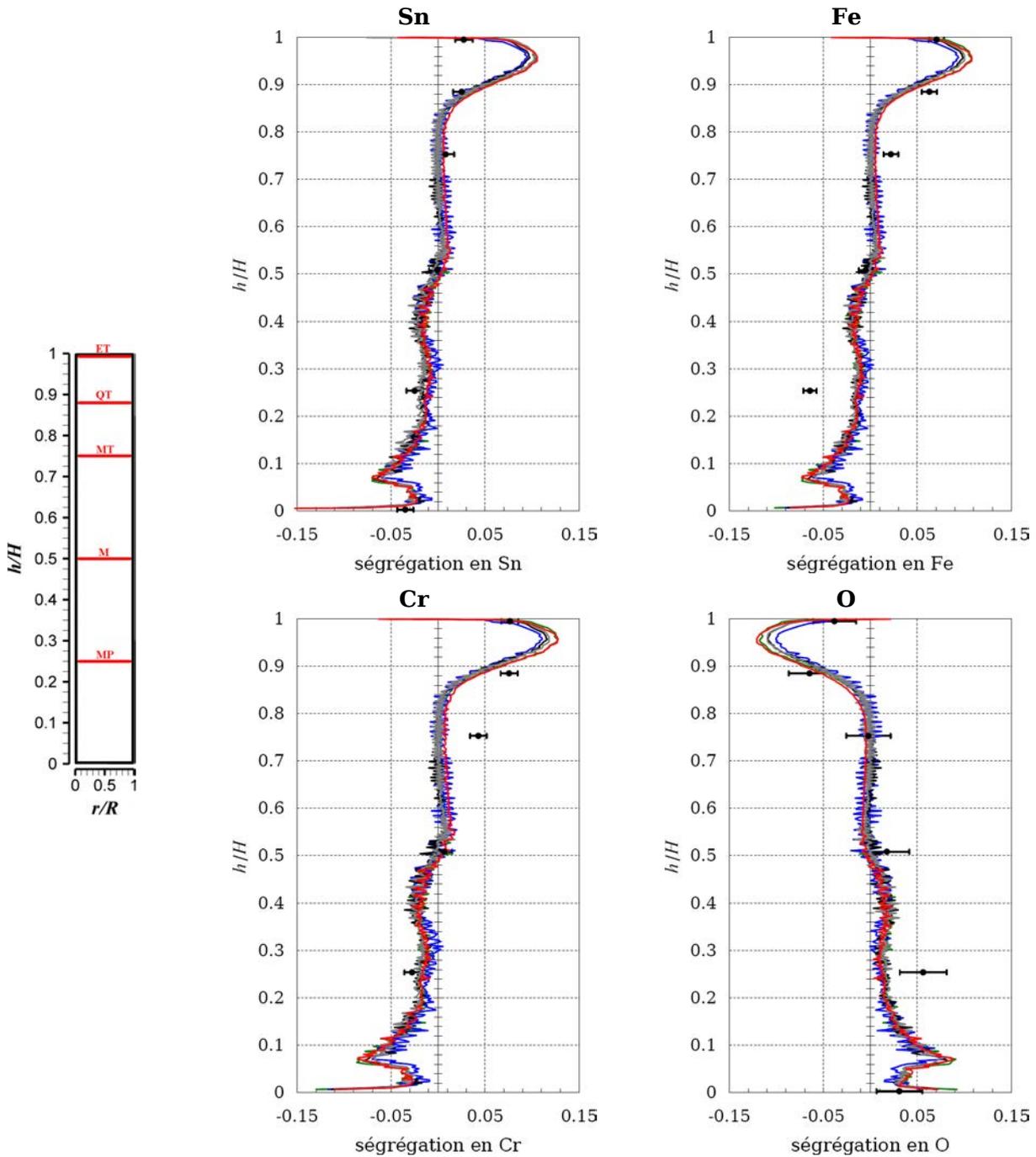
**FIGURE IV.26** – Influence de la densité de germes  $N_0$  et du coefficient de diffusion de Sn dans la phase solide  $D_s^{Sn}$  sur l'évolution de la température, de la fraction liquide  $g_l$  et de la ségrégation relative en Sn  $(\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn})/\omega_0^{Sn}$  au cours de la solidification du point C. — : Bras de levier (cas (d)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)). — :  $N_0 = 10^9 \text{ m}^{-3}$  (cas (g)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Sn} = 4,9 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (h)) (cf. tableau IV.2). Les droites en pointillés indiquent le début de la solidification ( $g_l < 1$ ).

Les courbes de température et de fraction liquide montrent que la diffusion restreinte des éléments cause l'augmentation de l'intervalle de solidification, en diminuant la température de fin de solidification. Une faible densité de germes et un faible coefficient de diffusion  $D_s^{Sn}$  favorisent d'autant plus cet effet : dans le cas (h), la solidification se termine à  $T_{sol0} = 1592$  °C.

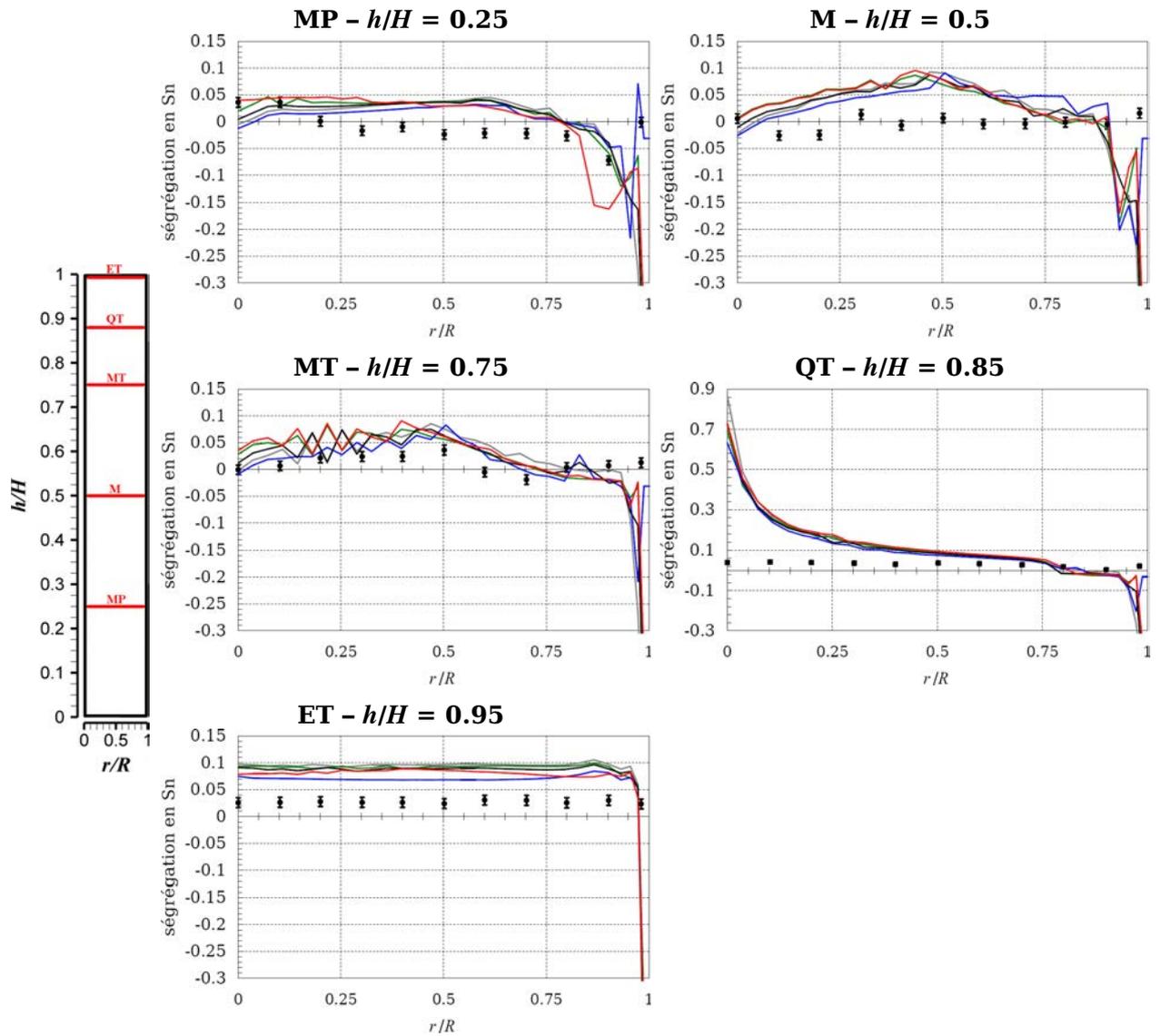
En outre, au début de la solidification, la ségrégation relative en Sn diminue. En effet, l'écoulement dans la zone pâteuse aux faibles fractions solides cause une diminution de la teneur moyenne car le liquide enrichi en Sn ( $k_p^{Sn} < 1$ ) est remplacé par du liquide plus pauvre (cf. figure IV.24).

Dans les cas (d) et (e), on note ensuite que la ségrégation relative augmente significativement et que l'on observe une refusion de la phase solide ( $\partial g_l / \partial t > 0$ ) à cause de la convection solutale. Dans ces deux cas, le point C est localisé dans une mésoségrégation positive (cf. §IV.2.c et figure IV.11). Dans les trois autres cas, la position des mésoségrégations est modifiée et le point C n'est pas situé dans une mésoségrégation positive ce qui explique l'évolution différente de  $g_l$  et  $(\omega_m^{Sn} - \omega_0^{Sn}) / \omega_0^{Sn}$ . Dans les cas (f), (g) et (h), l'apport de soluté par la convection solutale réduit seulement la vitesse de solidification sans causer de refusion.

Dans les figures IV.27 et IV.28, nous avons tracé les profils de macroségrégation qui permettent de vérifier que l'effet de la diffusion restreinte sur la macroségrégation prédite est relativement faible.



**FIGURE IV.27** – Refusion de l'alliage Zy-4 : influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ . — : Bras de levier (cas (d)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)). — :  $N_0 = 10^9 \text{ m}^{-3}$  (cas (g)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{\text{Sn}} = 4,9 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (h)) (cf tableau IV.2).



**FIGURE IV.28** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la diffusion restreinte des éléments d’alliage au cours de la solidification sur les profils radiaux de ségrégation relative en Sn ( $(\omega_m^{Sn} - \bar{\omega}_0^{Sn}) / \bar{\omega}_0^{Sn}$ ). — : Bras de levier (cas (d)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)). — :  $N_0 = 10^9 \text{ m}^{-3}$  (cas (g)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Sn} = 4,9 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (h)) (cf tableau IV.2).

## IV.5 Conclusion

Grâce au modèle présenté dans le chapitre II, nous nous sommes attachés à identifier l'influence de la convection naturelle, de l'espacement interdendritique et de la rétrodiffusion sur la macroségrégation au cours de la refusion VAR de l'alliage Zircaloy-4.

La comparaison entre la macroségrégation prédite par le modèle et celle mesurée expérimentalement a mis en évidence le rôle essentiel de la convection solutale. Nous avons pu démontrer que dans la zone pâteuse, la force de volume d'origine solutale s'oppose à celle d'origine thermique et qu'elle est prédominante. Ainsi, elle promeut un écoulement ascendant, dirigé vers la région externe du lingot.

En considérant que l'élément d'alliage principal dans le Zy-4, Sn, est le seul soluté à influencer sur la masse volumique de l'alliage liquide, l'hypothèse d'additivité des volumes entre l'étain et le zirconium liquide permet d'évaluer approximativement  $\beta_S^{Sn}$  à  $3 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  avec  $\rho^{Zr} = 6,21 \cdot 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$  [2] et  $\rho^{Sn} = 6 \cdot 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$ . La valeur pour  $\rho^{Sn}$  a été évaluée d'après la compilation réalisée dans la référence [3].

Par ailleurs, la prise en compte de la convection solutale dans le modèle peut entraîner l'apparition de mésoségrégations au cours du brassage unidirectionnel (moitié supérieure du lingot). Néanmoins, la prédiction de ces canaux dépend fortement de l'espacement interdendritique. De plus, ces canaux ne sont pas observés expérimentalement.

L'effet de l'espacement interdendritique sur la prédiction de la macroségrégation est important. L'augmentation de cette taille caractéristique dans la zone pâteuse engendre une intensification de la macroségrégation longitudinale prédite par le modèle. De plus, du fait de la convection solutale, la ségrégation radiale est significativement modifiée par une variation de l'espacement interdendritique de 67 à 268  $\mu\text{m}$ .

Au cours du brassage alterné fort et court (plaque MP située à  $h/H = 0,25$ ), un espacement interdendritique de 268  $\mu\text{m}$  permet d'approcher la ségrégation négative mesurée expérimentalement dans la région externe du lingot. Cependant, l'hypothèse faite dans le modèle d'une solidification uniquement colonnaire est très discutable d'après la macrographie du lingot (cf. chapitre III, §III.4.a). L'effet du transport de grains équiaxes sur la macroségrégation doit être étudié (cf. chapitre VI).

La prise en compte de la rétrodiffusion des solutés dans le modèle de microségrégation a montré qu'elle n'agit pas significativement sur la macroségrégation. Cependant, sa prise en compte est essentielle pour la prédiction de la température de fin de solidification.

## IV.6 Bibliographie

- [1] M. Zaloznik, H. Combeau, Thermosolutal flow in steel ingots and the formation of mesosegregates, International Journal of Thermal Sciences. 49 (2010) 1500-1509.

- 
- [2] T. Ishikawa, P.F. Paradis, Thermophysical properties of molten refractory metals measured by an electrostatic levitator, *Journal of electronic materials*. 34 (2005) 1526–1532.
  - [3] M.J. Assael, A.E. Kalyva, K.D. Antoniadis, R. Michael Banish, I. Egry, J. Wu, et al., Reference Data for the Density and Viscosity of Liquid Copper and Liquid Tin, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. 39 (2010) 033105-033105-8.
  - [4] G. Neumann, C. Tuijn, *Self-diffusion and impurity diffusion in pure metals: handbook of experimental data*, Elsevier, 2008.
  - [5] H. Bakker, H.P. Bonzel, C.M. Bruff, M.A. Dayananda, W. Gust, J. Horvath, et al., *Diffusion in Solid Metals and Alloys / Diffusion in festen Metallen und Legierungen*, 1<sup>er</sup> éd., Springer, 1990.



# V Simulation de la refusion expérimentale de l'alliage M5<sup>®</sup> : étude de la macroségrégation

## V.1 Introduction

La refusion expérimentale de l'alliage M5<sup>®</sup> (Zr-1Nb-0,14O) (cf. chapitre III) a été simulée en utilisant le modèle décrit dans le chapitre II. Cet alliage est moins chargé que le Zircaloy-4 et, comme nous le verrons dans ce chapitre, son intervalle de solidification est plus faible.

Parallèlement aux résultats présentés pour l'alliage Zircaloy-4 dans le chapitre précédent, les rôles de la convection naturelle et de la convection forcée, l'influence de l'espacement interdendritique et l'effet de la diffusion restreinte des solutés ont été identifiés pour l'alliage M5<sup>®</sup>.

De plus, nous avons déterminé l'incidence des conditions thermiques à la limite latérale du lingot sur la macroségrégation. En effet, la comparaison entre les profils de puits liquide mesurés expérimentalement et ceux prédits par le modèle (cf. annexe B) a montré que ces conditions étaient importantes pour la prédiction de la géométrie du puits liquide et qu'elles semblaient évoluer au cours de la refusion de l'alliage M5<sup>®</sup>.

## V.2 Influence de la convection naturelle

### V.2.a Introduction

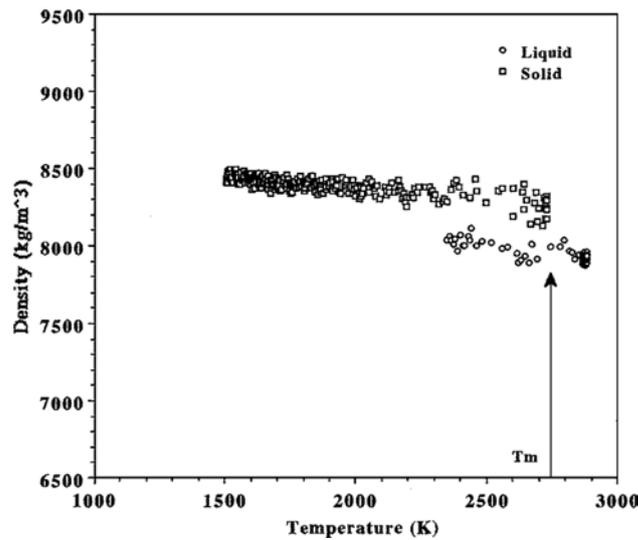
Le but de cette partie est d'établir numériquement l'impact de la convection naturelle d'origine thermique et solutale sur la macroségrégation, au cours de la refusion VAR de l'alliage de zirconium M5<sup>®</sup>. Nous avons étudié la macroségrégation de Nb, O et Fe, dont la teneur nominale est confidentielle dans cet alliage.

Comme pour l'alliage Zy-4, nous avons utilisé le coefficient constant d'expansion thermique du zirconium pur à l'état liquide déterminé dans [1].

Pour les coefficients d'expansion solutale, nous avons considéré que  $\beta_s^{Fe}$  et  $\beta_s^O$  sont nuls étant donné que l'élément d'alliage principal est Nb. La température de fusion du niobium étant supérieure à celle du zirconium ( $T_m^{Nb} = 2477$  °C et  $T_m^{Zr} = 1855$  °C), le calcul du coeffi-

cient  $\beta_S^{Nb}$  en supposant l'additivité des volumes entre le zirconium et le niobium est très approximatif.

Paradis et al. [2] ont mesuré par lévitation électrostatique la masse volumique de Nb en fonction de la température (figure V.1). Au vue de leurs mesures, Nb est plus dense que Zr (cf. chapitre IV, figure IV.1) ; on peut supposer que le niobium augmente la masse volumique du zirconium liquide et donc  $\beta_S^{Nb}$  est négatif.



**FIGURE V.1** – Masse volumique du niobium liquide et solide en fonction de la température : figure issue de la référence [2].

Néanmoins, nous avons choisis arbitrairement deux valeurs pour ce coefficient afin d'étudier son influence : l'une négative,  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (augmentation de la masse volumique de la phase liquide avec la teneur en Nb), et l'autre positive,  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (diminution de la masse volumique de la phase liquide avec la teneur en Nb).

Les quatre cas simulés sont résumés dans le tableau V.1.

**TABLEAU V.1** – les 4 cas étudiés

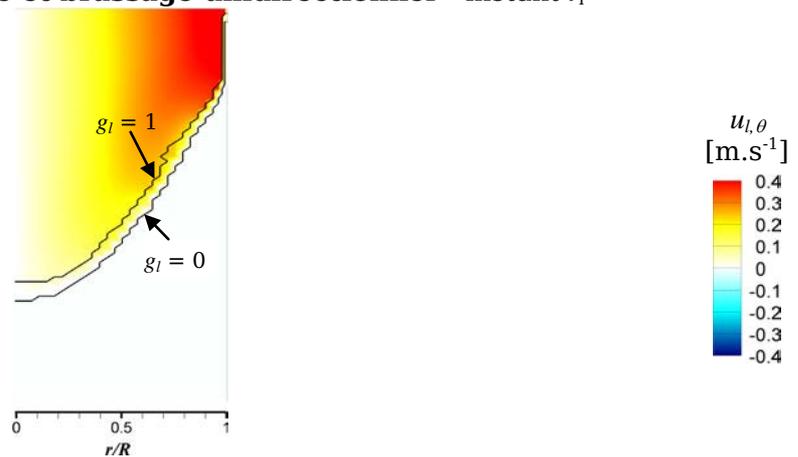
case	$\beta_T [^{\circ}C^{-1}]$	$\beta_S^{Nb} [\%m^{-1}]$
<b>a</b>	0	0
<b>b</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	0
<b>c</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	$-5 \cdot 10^{-2}$
<b>d</b>	$4 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-2}$

Les conditions opératoires appliquées au cours de la refusion expérimentale de l'alliage M5<sup>®</sup> varient (cf. chapitre III). Ainsi, l'écoulement (champ de vitesses et intensité de la turbulence) a été étudié à différents instants (cf. figure V.2).

A l'instant  $t_1$  (première moitié de la refusion), la vitesse de fusion était relativement élevée et le brassage unidirectionnel de forte intensité. Au cours de la seconde moitié de la refusion, la vitesse de fusion était relativement faible et le brassage alterné. Nous avons donc analysé l'écoulement à deux instants : lorsque les vitesses orthoradiales étaient relativement élevées (instant  $t_2$ ) et lorsqu'elles étaient relativement faibles (instant  $t_3$ ).

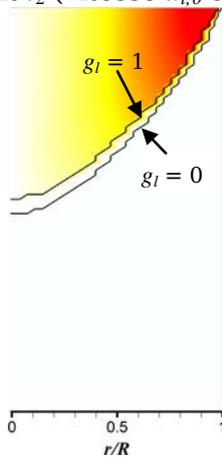
Les écoulements dans le plan ( $r$ - $z$ ) pendant le brassage unidirectionnel et à l'instant  $t_2$  au cours du brassage alterné sont similaires car les vitesses orthoradiales sont élevées dans les deux cas. Ils donc traités simultanément par la suite.

### Vitesse de fusion élevée et brassage unidirectionnel - instant $t_1$

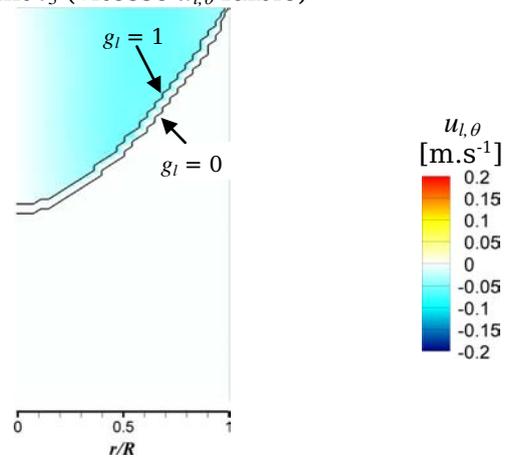


### Vitesse de fusion faible et brassage alterné

instant  $t_2$  (vitesse  $u_{l,\theta}$  élevée)



instant  $t_3$  (vitesse  $u_{l,\theta}$  faible)



**FIGURE V.2** – Cartes des vitesses intrinsèques orthoradiales de la phase liquide à trois instants de la refusion expérimentale de l'alliage M5<sup>®</sup>.

## V.2.b Comportement hydrodynamique

### Vitesses orthoradiales élevées (instants $t_1$ et $t_2$ )

Pour les quatre cas, les figures V.3 et V.4 présentent le champ de vitesses de la phase liquide et l'intensité de turbulence dans le puits liquide et la zone pâteuse aux instants  $t_1$  (vitesse de fusion élevée et brassage unidirectionnel) et  $t_2$  (vitesse de fusion faible et brassage alterné), respectivement. L'intensité de turbulence est représentée par le rapport des viscosités  $\mu_l/\mu$ .

Aux deux instants, la force centrifuge due au brassage électromagnétique est prédominante. Ainsi, l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse est descendant le long du front de solidification et ascendant au niveau de l'axe du lingot. La turbulence de l'écoulement dans le bain liquide est très importante.

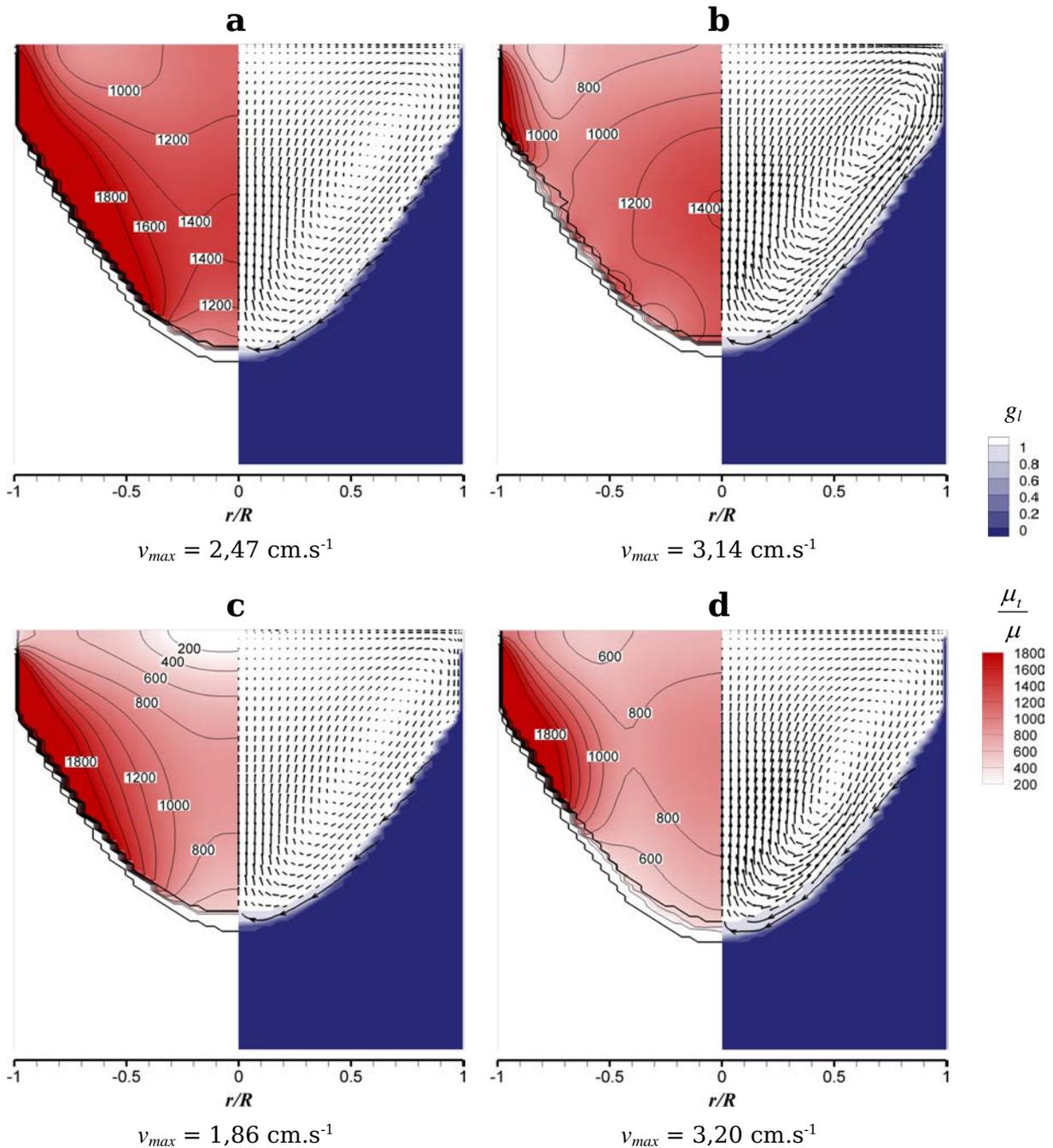
La prise en compte de la convection thermique ne modifie pas l'écoulement : la force d'expansion thermique amplifie l'effet de la force centrifuge sur l'écoulement dans les zones liquide et pâteuse. Ainsi, à l'instant  $t_1$ , les normes des vitesses dans le plan  $r-z$  ont globalement augmenté. Néanmoins, au cours du brassage alterné (instant  $t_2$ ), la prise en compte de la convection thermique a modifié l'écoulement dans la région centrale du lingot, au niveau de la partie supérieure du bain métallique. En effet, le coefficient d'expansion thermique  $\beta_T$  intervient également dans le modèle  $k-\varepsilon$  afin de prendre en compte la laminarisation de l'écoulement par la stratification thermique du puits liquide (terme  $G_k^T$ , cf. chapitre II, éq. (II.111)). Ainsi, l'intensité de turbulence a diminué dans le cas (b) par rapport au cas (a), ce qui modifie le champ des vitesses moyennes.

Les coefficients non nuls d'expansion solutale utilisés dans les cas (c) et (d) affectent, aux instants  $t_1$  et  $t_2$ , le niveau de turbulence de l'écoulement dans le bain métallique. En effet, comme les gradients thermiques, les gradients de teneur massique en Nb suivant  $z$  dans le puits liquide influent sur la turbulence (terme  $G_k^S$ , cf. chapitre II, éq. (II.112)).

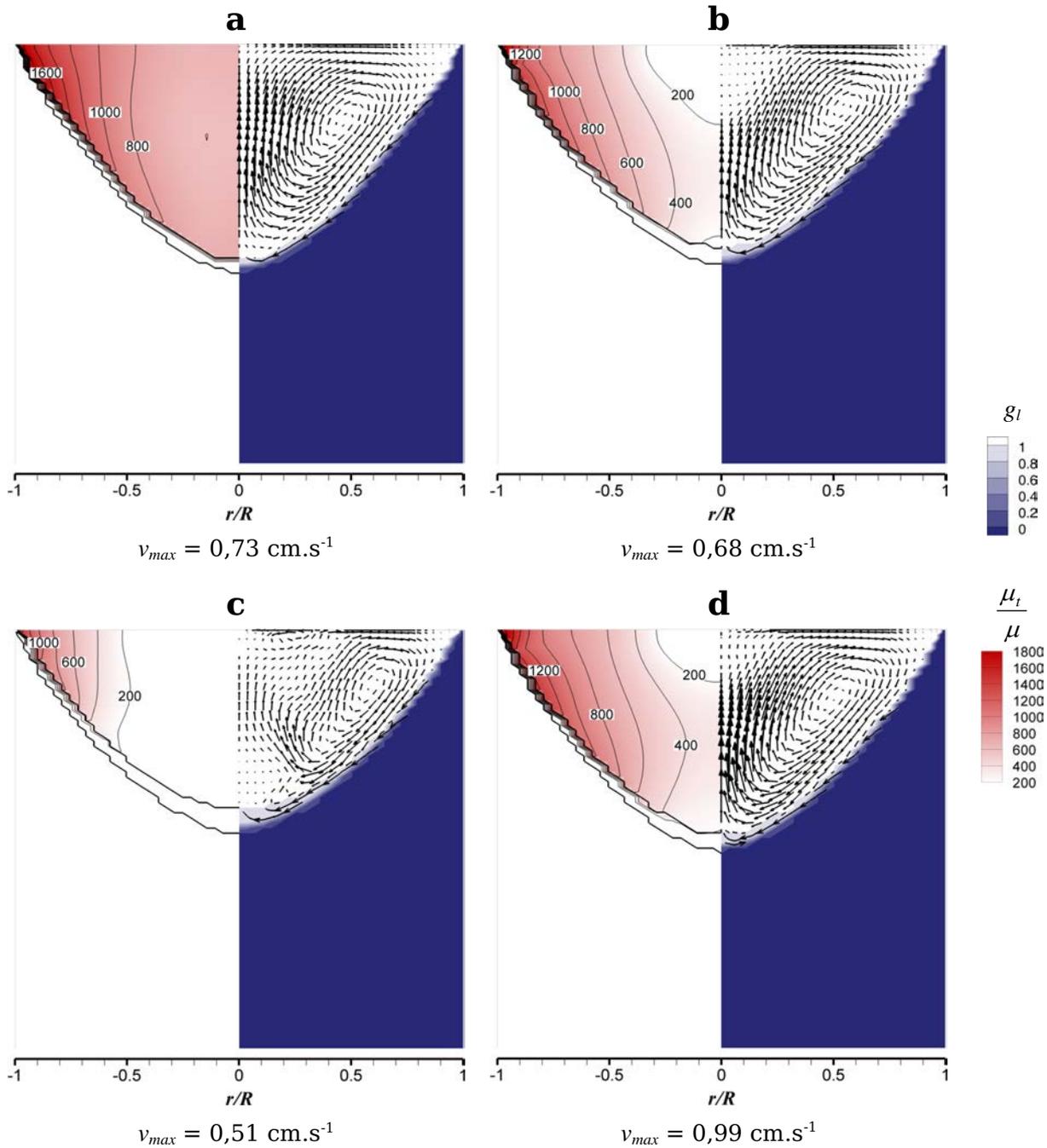
À l'instant  $t_1$ , les champs de vitesses moyennes calculés pour  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  ou  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  restent similaires aux cas précédents. Cependant, dans la zone centrale du puits liquide, la viscosité turbulente est plus grande dans le cas (c) que dans le cas (d). Cela se traduit par une vitesse d'écoulement plus faible dans le premier cas. À l'instant  $t_2$ , la diminution de l'intensité de turbulence calculée dans le cas (c) cause un changement relativement important de l'écoulement moyen dans la région centrale du lingot.

Pour cet alliage, le sens de l'écoulement dans la zone pâteuse qui est moins étendue que pour l'alliage Zy-4 est similaire, que la valeur de  $\beta_S^{Nb}$  soit négative ou positive. Aux deux instants, un coefficient d'expansion solutale non nul influe principalement sur l'intensité de turbulence de l'écoulement dans le puits liquide.

Remarquons finalement que les normes des vitesses moyennes dans le plan  $r-z$  sont significativement plus grandes à l'instant  $t_1$  qu'à l'instant  $t_2$  car le brassage était unidirectionnel et son intensité était plus élevée.



**FIGURE V.3** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_1$  de la refusion de l'alliage M5<sup>®</sup> (vitesse de fusion élevée et brassage unidirectionnel). Cas (a) : Absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans le puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la vitesse maximale dans le plan  $r-z$ ).



**FIGURE V.4** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_2$  de la refusion de l'alliage M5® (vitesse de fusion faible et brassage alterné). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans le puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la vitesse maximale dans le plan  $r$ - $z$ ).

### Vitesses orthoradiales faibles (instant $t_3$ )

Le comportement hydrodynamique dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_3$  est présenté dans la figure V.5.

Comparativement au brassage alterné appliqué au cours de la refusion de l'alliage Zy-4, la période de ce brassage est plus longue et son intensité est plus faible. Néanmoins, nous observons le même type d'écoulement lorsque les vitesses orthoradiales sont faibles. Du fait de la diminution des forces centrifuges par rapport à l'instant  $t_1$ , l'influence des forces électromagnétiques auto-induites devient suffisamment importante pour que soit créée, dans la plus grande partie du puits liquide, une seconde recirculation qui est descendante le long de l'axe du lingot et ascendante au niveau de la surface latérale.

La prise en compte de la convection thermique entraîne la diminution des vitesses d'écoulement dans la partie supérieure du puits liquide. En effet, la force d'expansion thermique contrebalance l'effet de la force électromagnétique auto-induite, qui reste néanmoins prépondérante.

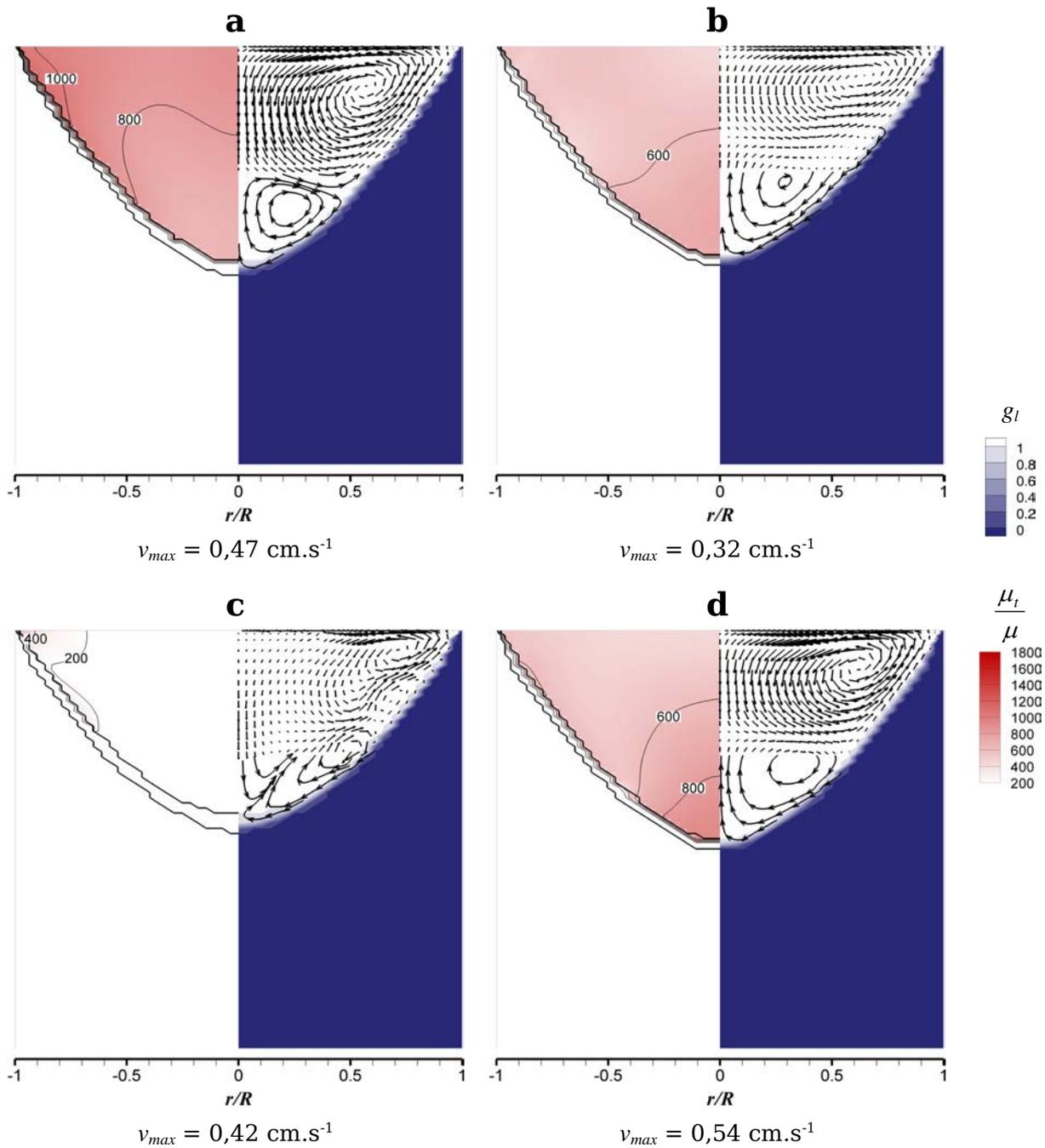
Comme aux instants  $t_1$  et  $t_2$ , un coefficient d'expansion solutale non nul a un effet important sur la turbulence de l'écoulement.

La prise en compte de la convection solutale diminue plus fortement l'intensité de turbulence dans le cas (c) qu'elle ne l'augmente dans le cas (d) alors que  $|\beta_S^{Nb}|$  est identique. En effet, dans le cas (c), les convections thermique et solutale coopèrent dans la zone pâteuse ce qui intensifie l'écoulement et donc la macroségrégation. Ainsi, la teneur en Nb dans le fond du puits liquide est plus élevée dans le cas (c) que dans le cas (d) ce qui accroît les gradients de teneur en Nb suivant  $z$  dans le puits liquide.

Ainsi, pour  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$  – cas (c), la réduction du caractère turbulent de l'écoulement modifie significativement le champ de vitesses moyennes dans le bain métallique alors que pour  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$  – cas (d), le champ de vitesse restent analogue à celui du cas (b) où  $\beta_S^{Nb} = 0 \% \text{m}^{-1}$ .

Aux trois instants considérés, la prise en compte de la convection thermosolutale influence l'écoulement moyen à travers, principalement, la viscosité turbulente calculée par le modèle  $k-\varepsilon$ .

L'effet de la convection solutale sur l'écoulement dans la zone pâteuse n'est pas aussi important que pour la refusion de l'alliage Zy-4. Le faible intervalle de solidification du M5® par rapport au Zy-4 en est la cause.



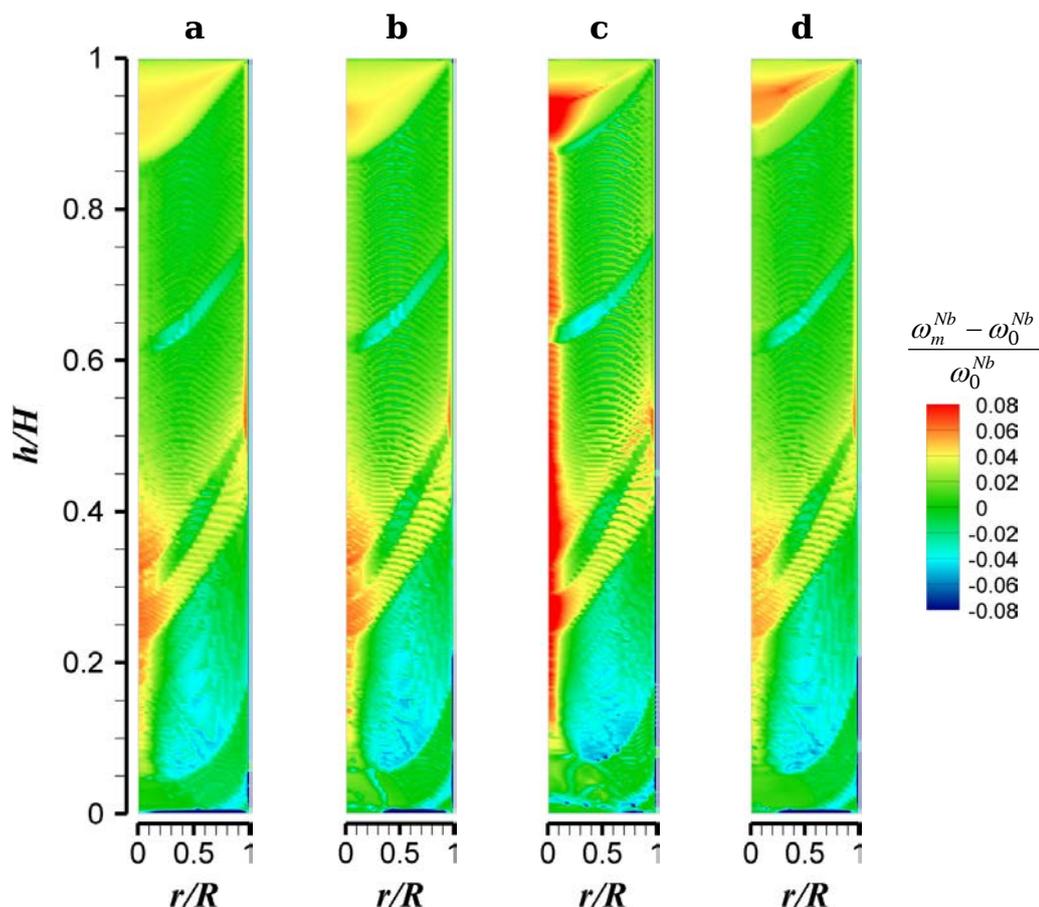
**FIGURE V.5** – Influence de la convection naturelle sur l'écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t_3$  de la refusion de l'alliage M5® (vitesse de fusion faible et brassage alterné). Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs vitesses dans le puits liquide où les vitesses sont relativement élevées, et par des lignes de courant dans la zone pâteuse et la partie basse du puits liquide où les vitesses sont relativement faibles ( $v_{max}$  est la norme maximale des vitesses dans le plan  $r$ - $z$ ).

### V.2.c Macroségrégation

Les cartes de macroségrégation en Nb dans le lingot final font l'objet de la figure V.6.

Pour les quatre cas, la macroségrégation prédite par le modèle est similaire qualitative-ment. En outre, les variations des conditions opératoires au cours de la refusion ont eu un impact important sur la macroségrégation.

Dans la moitié inférieure du lingot, l'application prolongée du brassage unidirectionnel (cf. chapitre III, §III.1) a causé l'apparition d'une région fortement appauvrie en Nb dans la partie externe du lingot. On observe ensuite un enrichissement de la région centrale du lingot suite au retour à un brassage alterné et à la réduction de la vitesse de fusion. Les deux autres marquages utilisés avant la fin de la refusion ont également un impact sur la ségrégation prédite, en causant deux zones appauvries en Nb, inclinées suivant la forme du puits liquide.

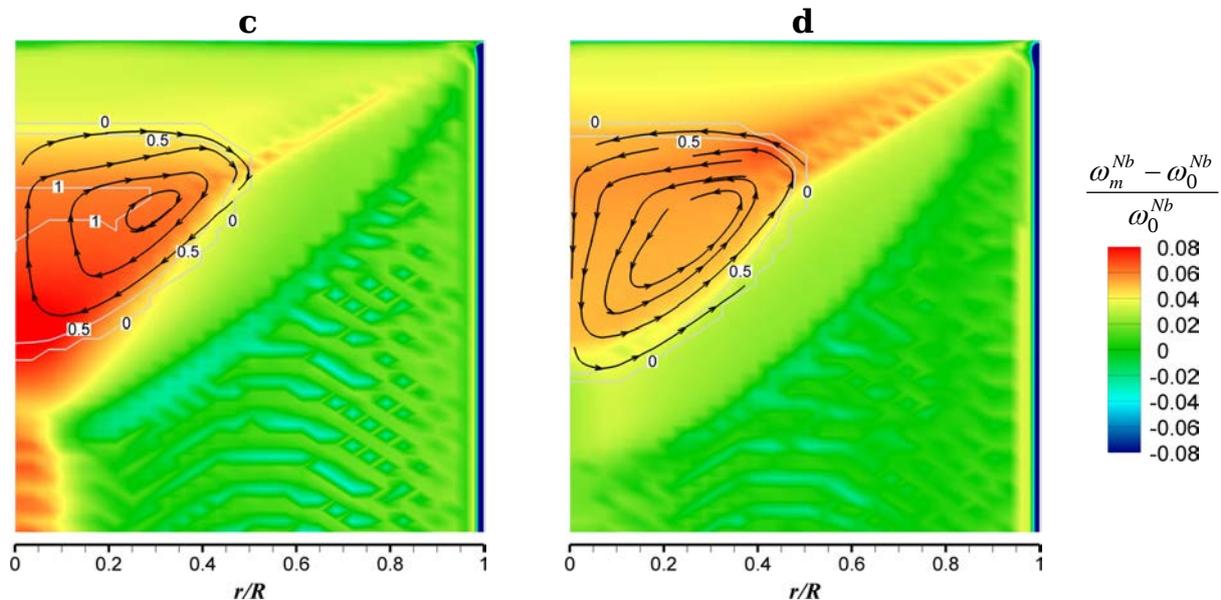


**FIGURE V.6** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : influence de la convection naturelle sur la macroségrégation en Nb dans le lingot final. Cas (a) : absence de convection naturelle. Cas (b) : convections forcée et naturelle d'origine thermique. Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ .

La comparaison des cartes obtenues dans les cas (a) et (b) montre que la convection thermique, comparativement à la convection forcée, n'est pas une cause essentielle de macroségrégation dans le lingot en alliage M5®. La convection solutale lorsqu'elle s'oppose à la convection thermique – cas (d) – ne modifie pas non plus de manière importante la macroségrégation, mis à part au cours de la solidification du dernier puits liquide. En revanche, le cas (c) ( $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ ) impacte plus significativement la macroségrégation. Néanmoins, son effet se limite à la zone située à proximité de l'axe du lingot où l'on constate un fort enrichissement en Nb.

La macroségrégation dans le dernier puits liquide qui se solidifie sans l'influence des forces électromagnétiques, est la plus impactée par la convection solutale.

La figure V.7 représente sept minutes après la fin de la refusion l'écoulement ainsi que la ségrégation relative en Nb dans les cas (c) et (d). A cet instant, l'écoulement est dû à la convection solutale qui prédomine sur la convection thermique : dans le cas (c), où l'enrichissement du liquide en Nb s'accompagne d'une augmentation sa masse volumique, la recirculation tournant dans le sens des aiguilles d'une montre entraine l'accumulation de liquide riche en Nb dans la région centrale du lingot. Au contraire, dans le cas (d), où l'enrichissement du liquide en Nb s'accompagne d'une diminution de sa masse volumique, la recirculation tournant dans le sens antihoraire, déplace le liquide riche en Nb vers la partie externe du lingot, ce qui limite ainsi la macroségrégation.



**FIGURE V.7** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : influence de la convection naturelle d'origine solutale au cours de la solidification du dernier puits liquide (7 minutes après la coupure de l'arc électrique). Cas (c) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ . Cas (d) : convections forcée et naturelle d'origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$ .

Nous avons comparés pour les quatre cas la macroségrégation obtenue par le modèle à celle mesurée expérimentalement.

### **Macroségrégation longitudinale**

Pour chaque soluté (Nb, Fe et O), les profils longitudinaux de macroségrégation moyennés radialement font l'objet de la figure V.8.

Premièrement, la convection thermosolutale n'a pas un effet important sur le calcul de la macroségrégation longitudinale moyennée radialement. Ce résultat avait déjà été obtenu pour la refusion du Zy-4.

Deuxièmement, ces premiers résultats montrent que pour Nb et O, la macroségrégation longitudinale moyennée radialement prédite par le modèle est en accord avec les profils expérimentaux. Pour Fe, on peut constater un accord qualitatif mais l'intensité de macroségrégation est sous-estimée par rapport à celle mesurée expérimentalement.

Nous pouvons en déduire que la ségrégation globalement négative mesurée en pied de lingot (plaque QP) est due au brassage unidirectionnel de forte intensité. De plus, la ségrégation positive à mi-hauteur du lingot (plaque M) est due à la diminution de la vitesse de fusion et au passage d'un brassage unidirectionnel fort à un brassage alterné. L'utilisation d'une faible vitesse de fusion et d'un brassage alterné cause une macroségrégation moyenne relativement neutre à  $h/H = 0,75$  et  $0,85$ .

### **Macroségrégation radiale**

Pour chaque plaque prélevée expérimentalement, la ségrégation relative obtenue numériquement a été tracée en fonction du rayon, du centre ( $r/R = 0$ ) au bord du lingot ( $r/R = 1$ ). La comparaison entre ces profils radiaux et les profils expérimentaux fait l'objet des figures V.9, V.10 et V.11 pour Nb, Fe et O, respectivement.

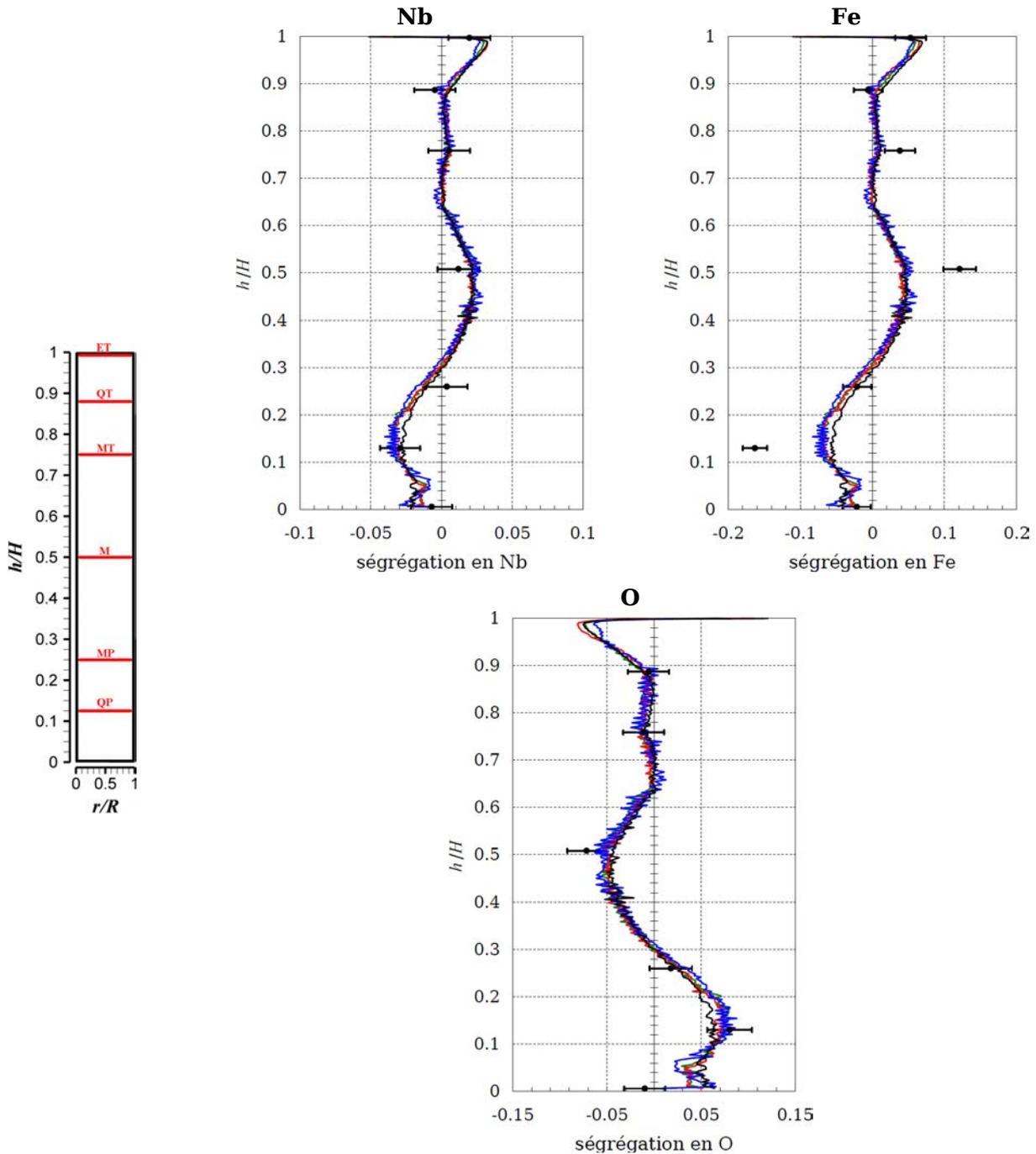
Les profils radiaux obtenus dans les cas (a), (b) et (d) sont très proches à toutes les hauteurs comme nous l'avons constaté sur les cartes (cf. figure V.6).

Comme nous l'avons remarqué sur les cartes de macroségrégation, le cas (c) engendre uniquement un enrichissement en Nb et Fe et un appauvrissement en O pour  $r/R < 0,25$ . Cette augmentation de la ségrégation relative au niveau de l'axe du lingot n'est pas observée expérimentalement.

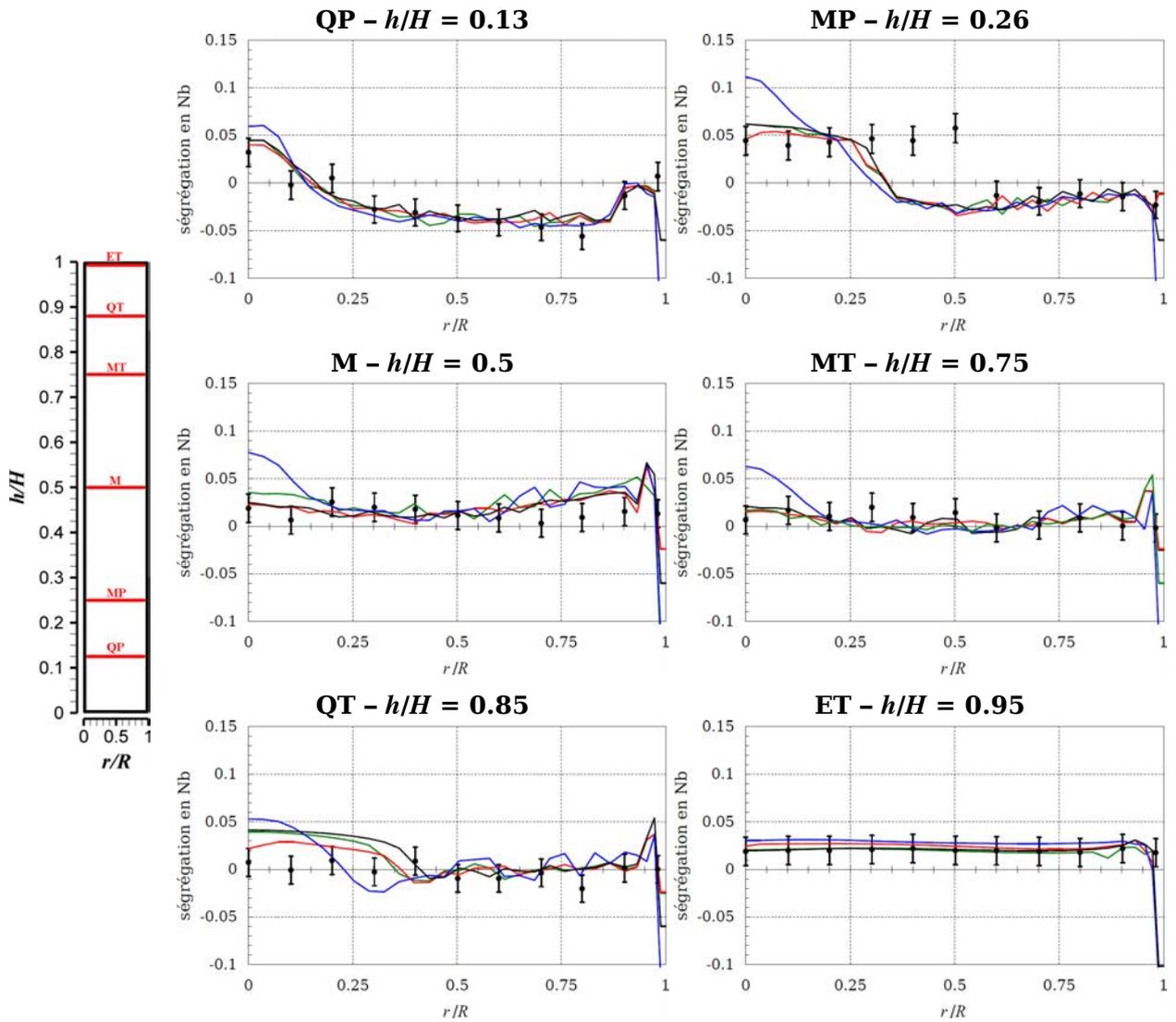
Ainsi, quelle que soient les conditions opératoires employées, la convection solutale n'est pas une cause importante de macroségrégation au cours de la refusion de l'alliage M5®.

Pour Nb et O, un bon accord quantitatif existe entre les résultats du modèle et les mesures expérimentales à l'exception de la plaque située à  $h/H = 0,26$  (plaque MP). En effet, à cette hauteur, la région ségrégée positivement au centre du lingot est plus large expérimentalement que celle prédite par le modèle. Nous avons identifié dans la suite l'origine de cet écart (cf. V.5).

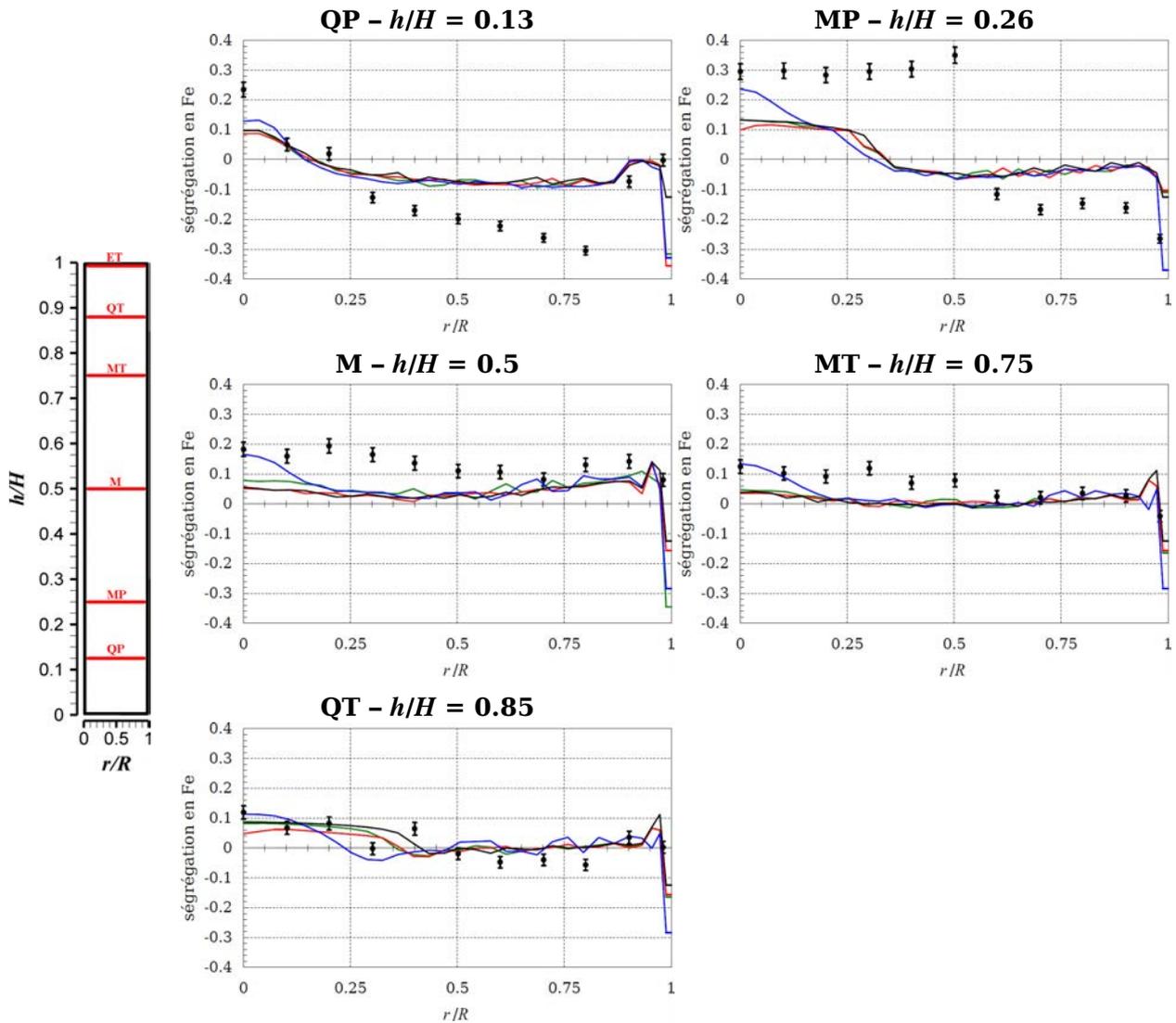
Par ailleurs, notons que tous les profils radiaux tracés pour Fe sous-estiment l'intensité de ségrégation expérimentale de cet élément, comme le montrait la ségrégation longitudinale. On peut donc penser que le coefficient de partage de Fe déterminé à partir du diagramme binaire Zr-Fe ( $k_p^{Fe} = 0,25$ ) est sous-estimé.



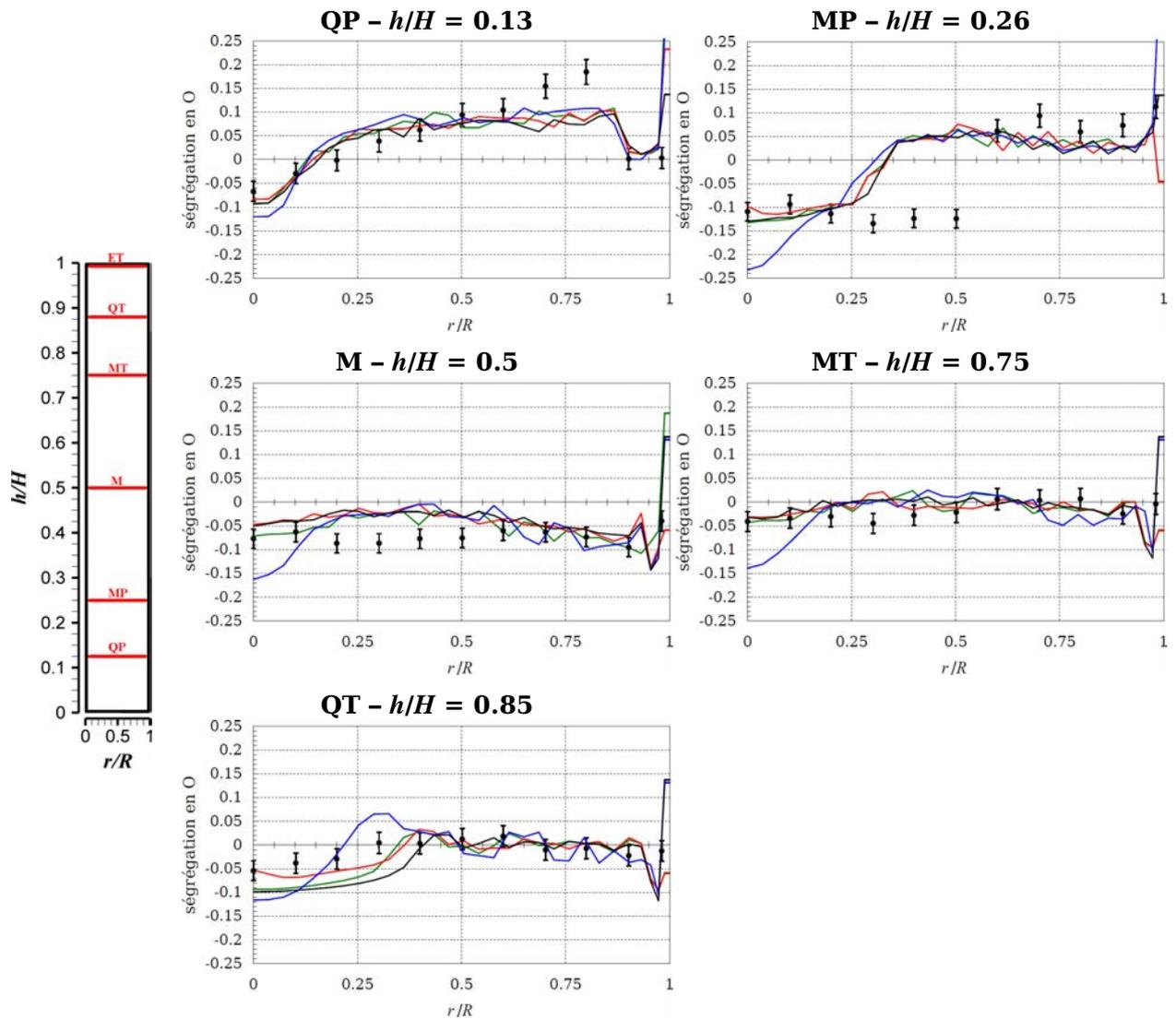
**FIGURE V.8** – Refusion de l’alliage M5® : influence de la convection naturelle sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i)/\omega_0^i$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convection forcée et convection naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE V.9** – Refusion de l’alliage M5<sup>®</sup> : influence de la convection naturelle sur les profils radiaux de ségrégation relative en Nb  $(\omega_m^{Nb} - \omega_0^{Nb}) / \omega_0^{Nb}$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE V.10** – Refusion de l’alliage M5® : influence de la convection naturelle sur les profils radiaux de ségrégation relative en Fe ( $\omega_m^{Fe} - \omega_0^{Fe} / \omega_0^{Fe}$ ). — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_S^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).



**FIGURE V.11** – Refusion de l’alliage M5<sup>®</sup> : influence de la convection naturelle sur les profils radiaux de ségrégation relative en O  $(\omega_m^O - \omega_0^O) / \omega_0^O$ . — : Absence de convection naturelle (cas (a)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique (cas (b)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale avec  $\beta_s^{Nb} = -5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (c)). — : Convections forcée et naturelle d’origine thermique et solutale où  $\beta_s^{Nb} = 5 \cdot 10^{-2} \%m^{-1}$  (cas (d)).

### V.3 Influence de l'espacement interdendritique dans le modèle de perméabilité de la zone pâteuse

Comme pour l'alliage Zy-4, nous avons estimé l'influence de  $\lambda_{DAS}$  sur la macroségrégation : deux nouveaux cas ont été simulés, l'un avec  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ) et l'autre avec  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$ ). Rappelons que jusqu'à maintenant, toutes les simulations ont été effectuées avec  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$ .

Pour ces deux nouvelles simulations, nous avons négligé la convection solutale ( $\beta_s^{Nb} = 0 \text{ \%m}^{-1}$ ).

Les cartes de macroségrégation en Nb dans le lingot final pour les trois espacements interdendritiques font l'objet de la figure V.12.

L'augmentation de  $\lambda_{SDAS}$  favorise l'écoulement, ce qui conduit à une augmentation de l'intensité de macroségrégation quelles que soient les conditions opératoires.

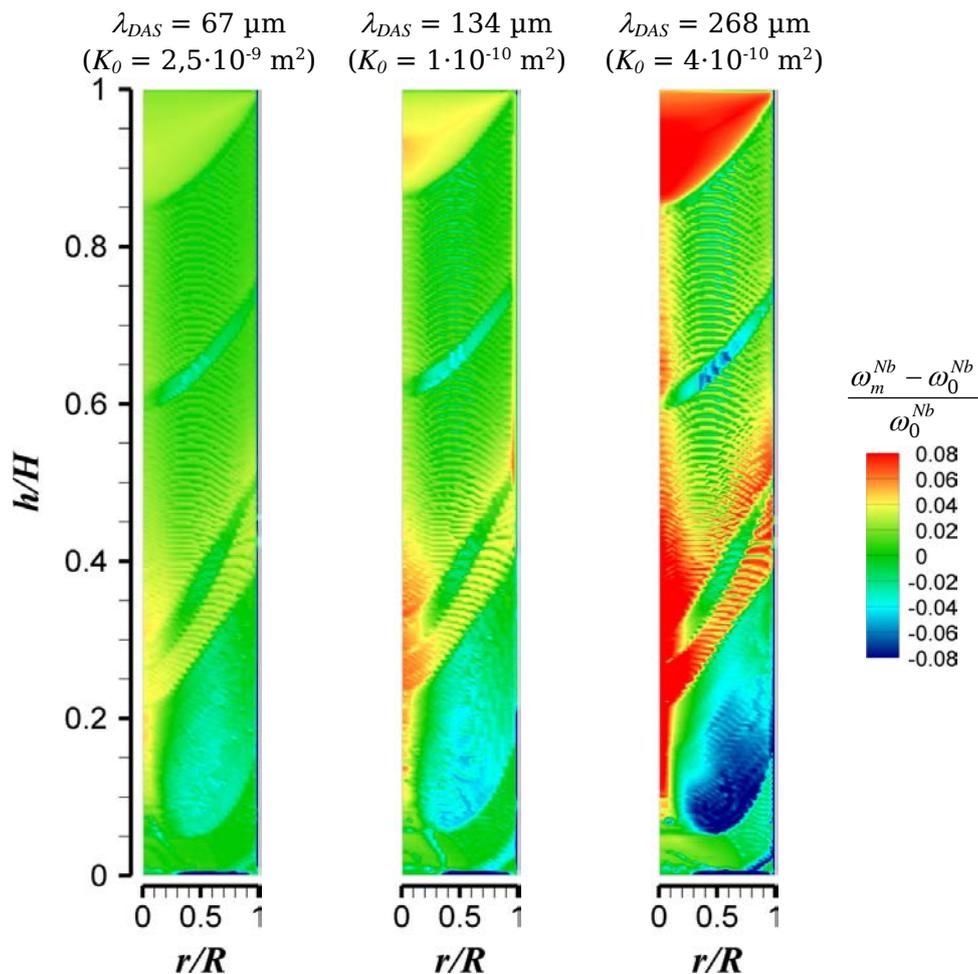
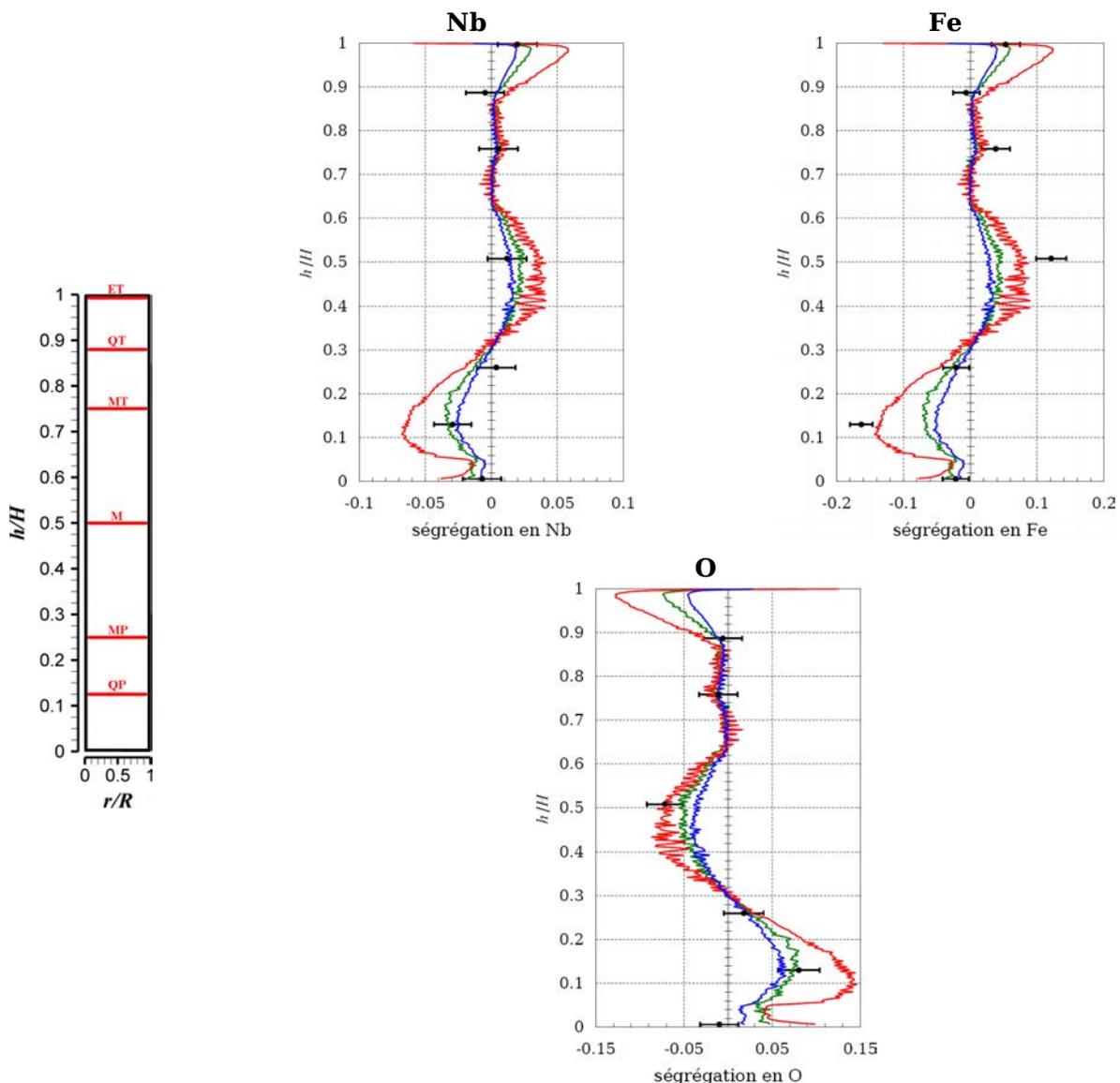


FIGURE V.12 – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : influence de l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$  sur la macroségrégation en Nb dans le lingot final.

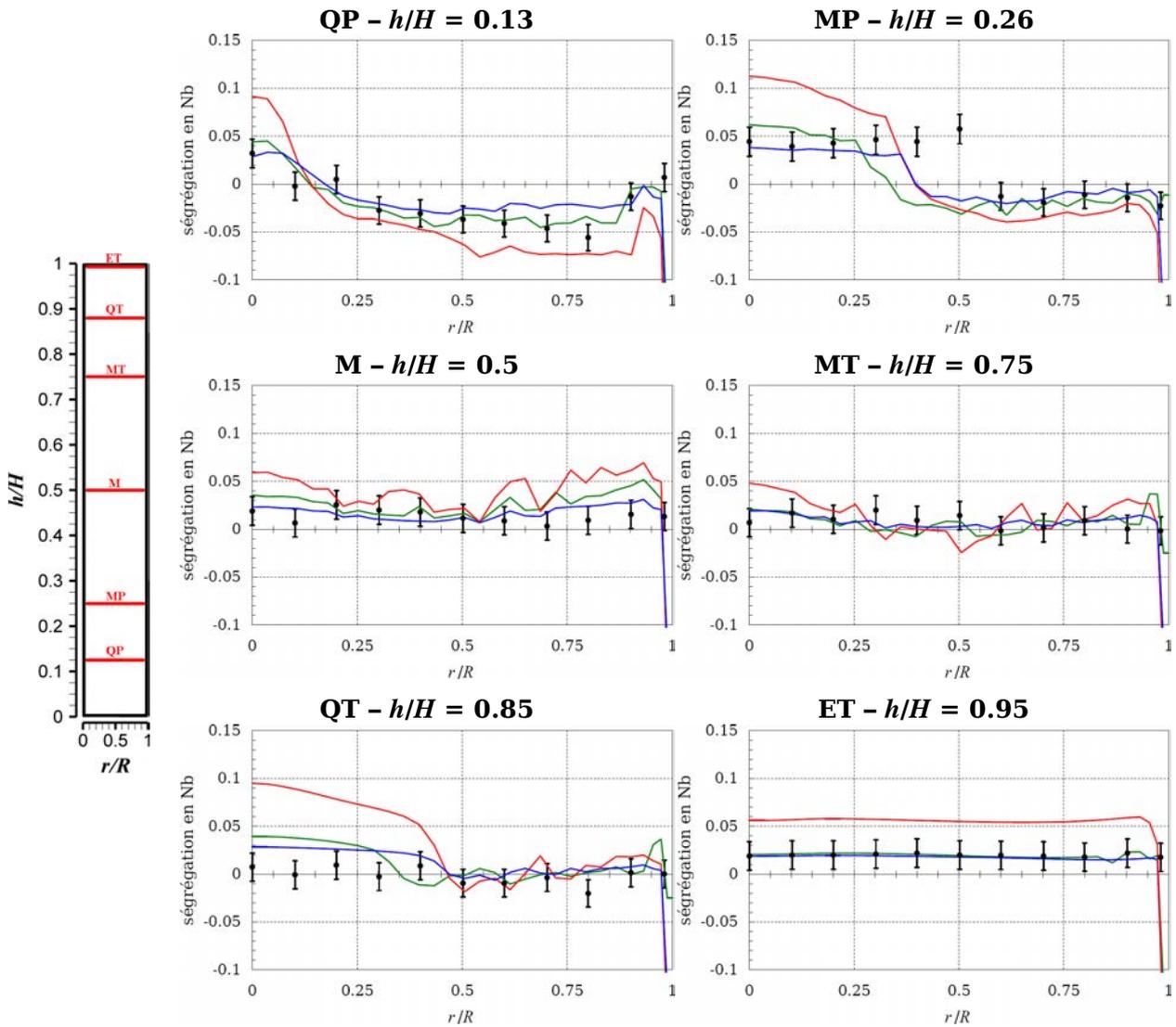
Les profils longitudinaux moyennés radialement sont présentés dans la figure V.13.

L'augmentation de  $\lambda_{DAS}$  intensifie la ségrégation des trois éléments. Néanmoins, l'espacement interdendritique joue un rôle principalement dans les régions du lingot où la macroségrégation est forte. Dans la zone située entre  $0,6 \leq h/H \leq 0,85$ , la ségrégation longitudinale est relativement neutre car les vitesses d'écoulement dans la zone pâteuse sont faibles. L'augmentation ou la diminution de  $\lambda_{DAS}$  entraîne une faible variation relative des vitesses d'écoulement et donc, de la ségrégation.

Les profils radiaux de ségrégation en Nb représentés dans la figure V.14 montrent la même tendance. De plus, une augmentation de  $\lambda_{DAS}$  n'élargit pas la zone ségrégée positivement à  $h/H = 0,26$  (plaque MP).



**FIGURE V.13** – Refusion de l'alliage M5® : influence de l'espacement interdendritique sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ .  
 — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).  
 — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).



**FIGURE V.14** – Refusion de l’alliage M5® : influence de l’espacement interdendritique sur les profils radiaux de ségrégation relative en Nb  $(\omega_m^{Nb} - \omega_0^{Nb}) / \omega_0^{Nb}$ . — :  $\lambda_{DAS} = 67 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 2,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 134 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ). — :  $\lambda_{DAS} = 268 \mu\text{m}$  ( $K_0 = 4 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ ).

## V.4 Influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification

Cette partie a pour but d'évaluer le rôle de la diffusion restreinte des solutés au cours de la solidification.

Trois nouvelles simulations ont été effectuées en utilisant le modèle cinétique de croissance afin de décrire la macroségrégation au cours de la refusion. Comme pour le Zy-4 (cf. chapitre IV, §IV.4), nous avons fait varier la densité de grains  $N_0$ . De plus, dans le cas (g),  $D_s^{Nb}$  a été volontairement divisé par 1000 par rapport à la valeur trouvée dans la littérature [3]. Les trois nouveaux cas simulés sont regroupés dans le tableau V.2. La convection solutale est négligée dans les trois simulations.

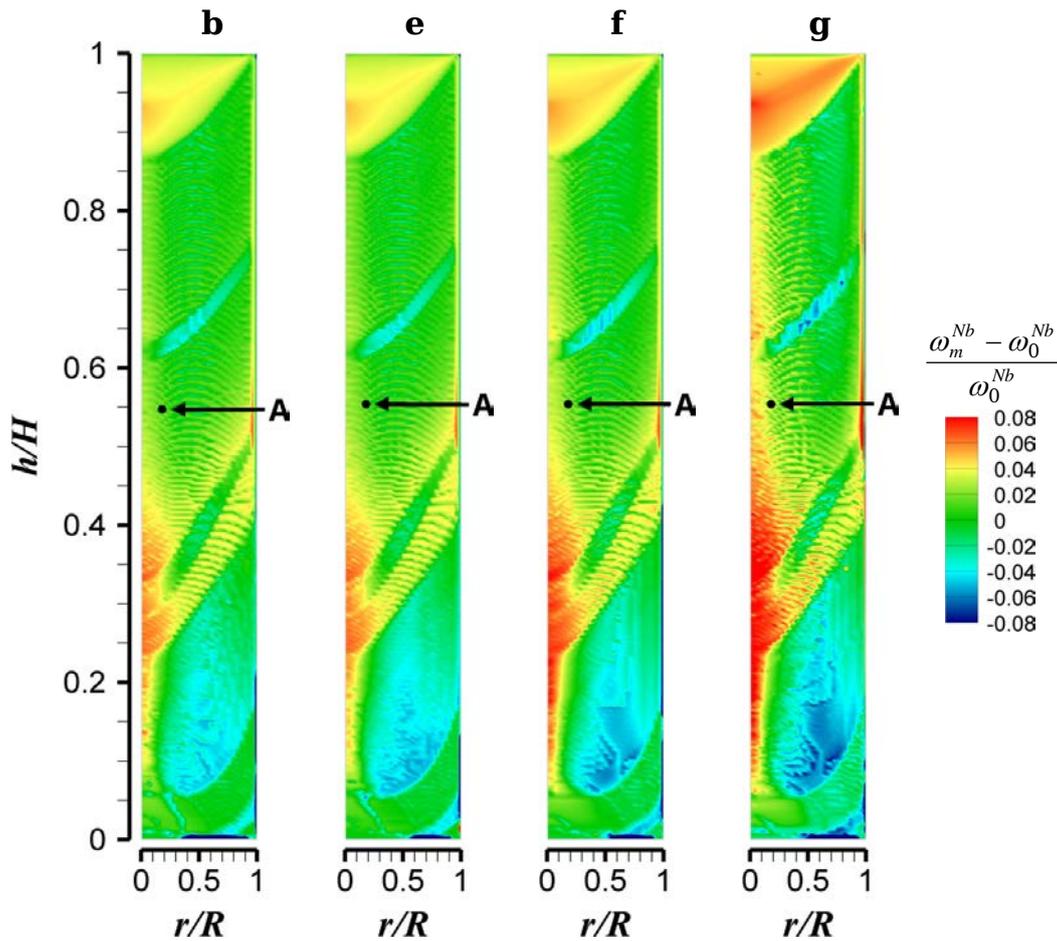
**TABLEAU V.2** – Influence de la diffusion restreinte des solutés : les quatre cas étudiés

		<b>(e)</b>	<b>(f)</b>	<b>(g)</b>
$N_0$	[m <sup>-3</sup> ]	10 <sup>12</sup>	10 <sup>10</sup>	10 <sup>10</sup>
$d_g$	[mm]	0,124	0,576	0,576
$D_s^{Nb}$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	4·10 <sup>-11</sup>	4·10 <sup>-11</sup>	4·10 <sup>-14</sup>
$D_s^{Fe}$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	1,5·10 <sup>-9</sup>	1,5·10 <sup>-9</sup>	1,5·10 <sup>-9</sup>
$D_s^O$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	3,8·10 <sup>-9</sup>	3,8·10 <sup>-9</sup>	3,8·10 <sup>-9</sup>
$D_l^i$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	1·10 <sup>-8</sup>	1·10 <sup>-8</sup>	1·10 <sup>-8</sup>

Les cartes de macroségrégation en Nb obtenues dans chaque cas sont comparés à celle obtenue avec la règle du bras de levier (cas (b) dans le §V.2) dans la figure V.15.

Dans le cas (1), la macroségrégation est très proche du cas (b) étant donné que la densité de grains est élevée.

La diminution de  $N_0$  à 10<sup>10</sup> m<sup>-3</sup> montre que la diffusion restreinte des solutés augmente légèrement l'intensité de macroségrégation. Cependant, cette influence est plus faible que celle de l'espacement interdendritique (cf. §V.3).

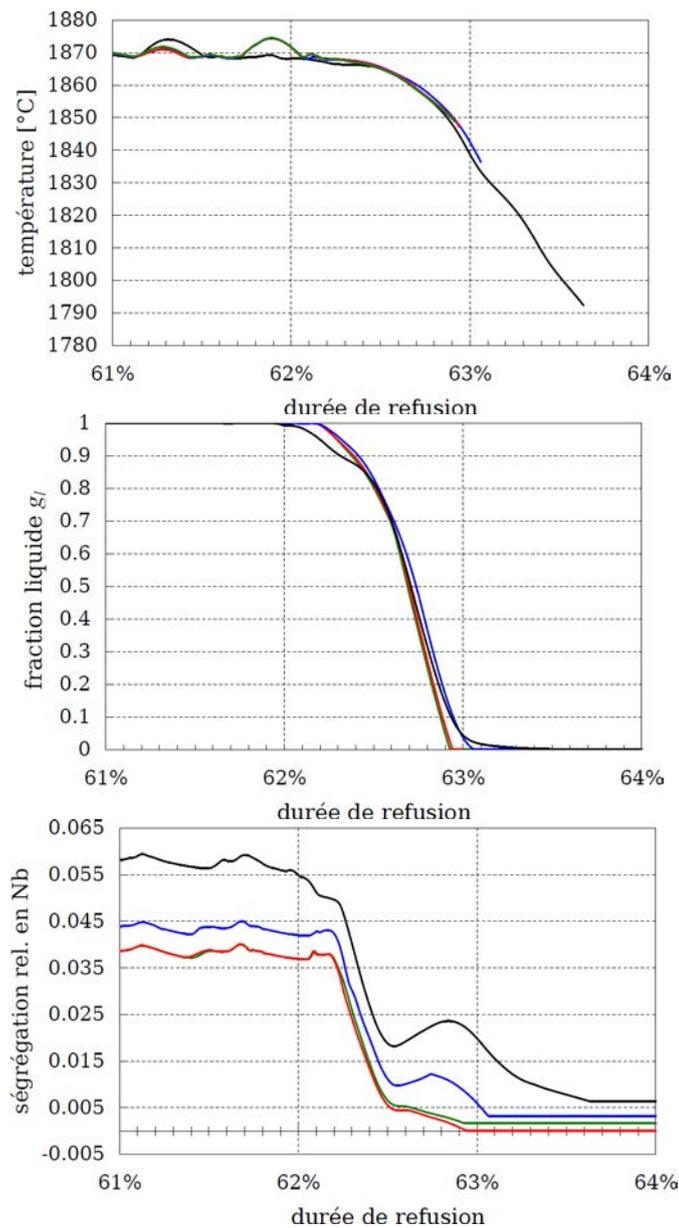


**FIGURE V.15** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : influence de la diffusion restreinte des éléments d'alliage au cours de la solidification sur la macroségrégation en Nb dans le lingot final. Cas (b) : bras de levier ; cas (1) :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  ; cas (2) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et cas (3) :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Nb} = 4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Nous avons enregistré l'évolution de la température, de la fraction liquide et de la ségrégation relative en Nb au cours de la solidification du point A ( $r/R = 0,21$  et  $h/H = 0,54$ ), situé dans la moitié supérieure du lingot (vitesse de fusion faible et brassage alterné). Les trois courbes font l'objet de la figure V.16.

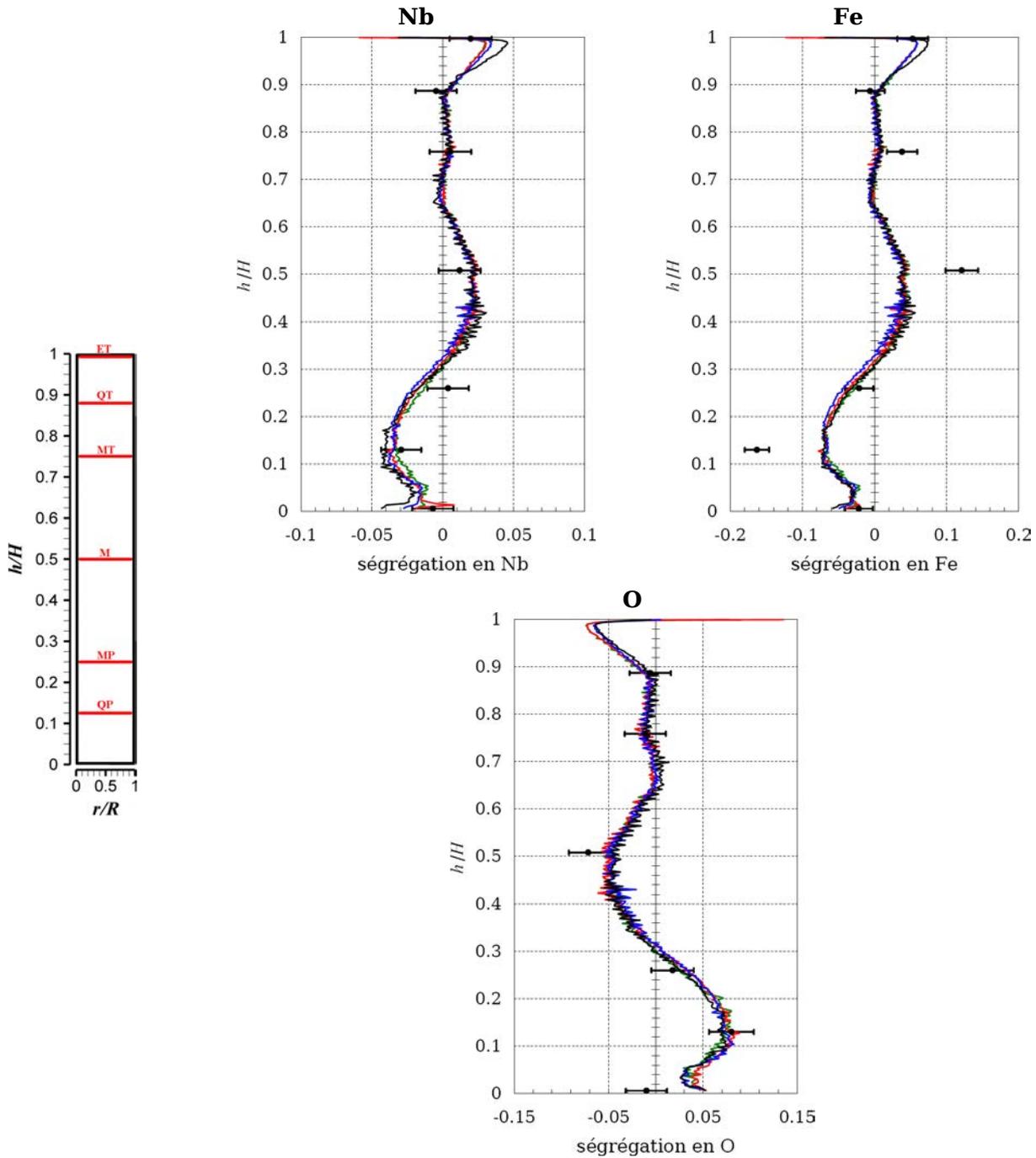
Cette figure confirme qu'avec une densité de germes élevée ( $10^{12} \text{ m}^{-3}$ ), la macroségrégation tend vers celle obtenue en utilisant la règle des bras de levier. En revanche, pour  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$ , la prise en compte de la diffusion restreinte augmente l'intervalle de solidification ce qui a pour conséquence d'accroître légèrement la macroségrégation.

L'augmentation de la ségrégation relative en Nb en fin de solidification est due à l'alternance du brassage, qui cause une inversion du sens d'écoulement dans le plan r-z lorsque les vitesses orthoradiales sont faibles (cf. §V.2.b).

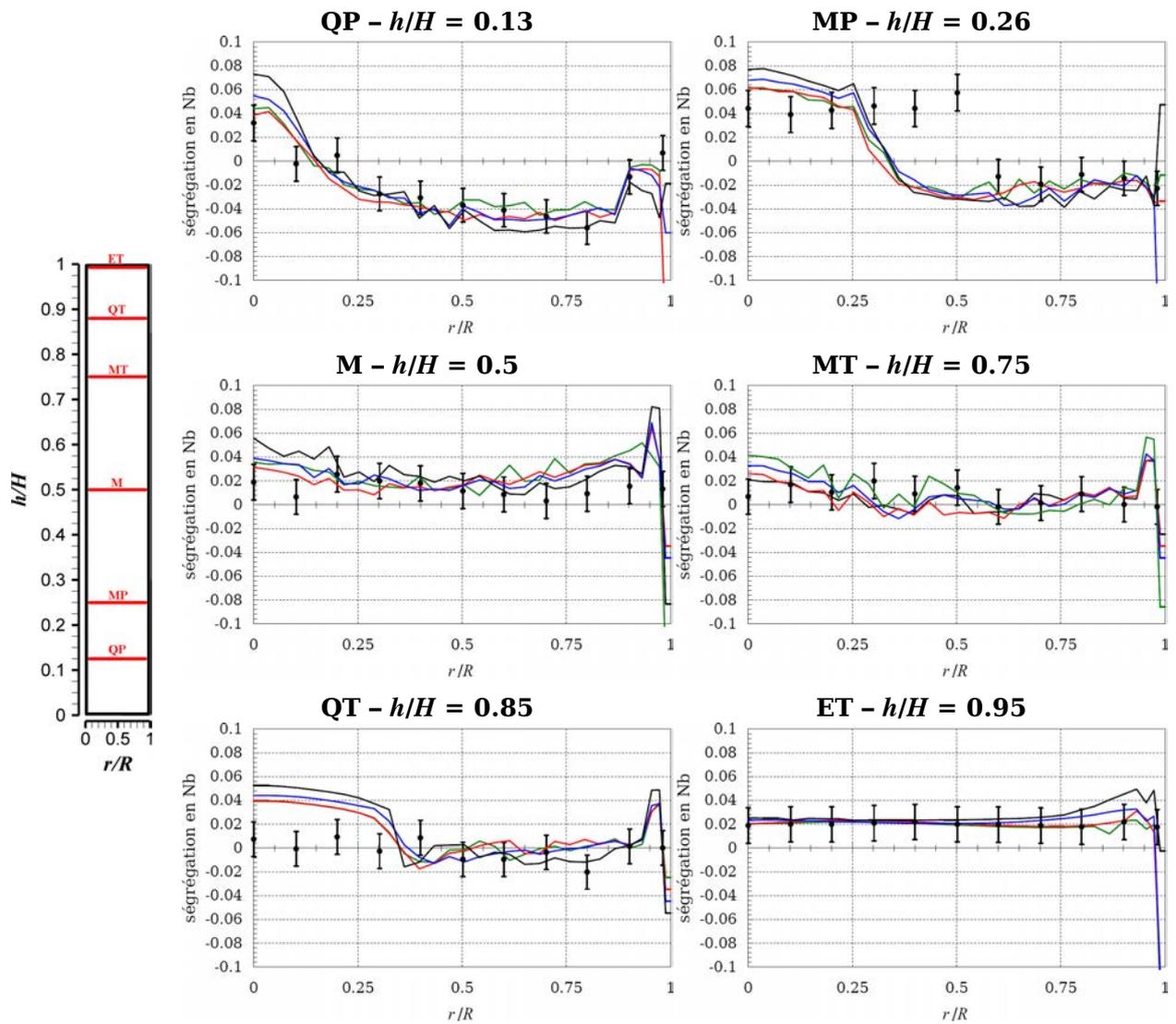


**FIGURE V.16** – Influence de la densité de germes  $N_0$  et du coefficient de diffusion de Nb dans la phase solide  $D_s^{Nb}$  sur l'évolution de la température, de la fraction liquide  $g_l$  et de la ségrégation relative en Sn  $(\bar{\omega}^{Nb} - \omega_0^{Nb})/\omega_0^{Nb}$  au cours de la solidification du point A. — : Bras de levier (cas (b)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Nb} = 4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (g)) (cf. tableau V.2).

Le profil longitudinal (figure V.17) et les profils radiaux (figure V.18) de macroségrégation en Nb montrent que dans les trois cas étudiés, une macroségrégation relativement proche est prédite par le modèle. Ainsi, pour l'alliage M5<sup>®</sup>, la diffusion des solutés au cours de la solidification influe peu sur la macroségrégation. L'utilisation de la règle du bras de levier pour modéliser la microségrégation est une bonne approximation.



**FIGURE V.17** – Refusion de l'alliage M5® : influence de la diffusion restreinte des solutés sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ .  
 — : Bras de levier (cas (b)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)).  
 — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Nb} = 4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (g)) (cf. tableau V.2).



**FIGURE V.18** – Refusion de l’alliage M5<sup>®</sup> : influence de la diffusion restreinte des solutés sur les profils radiaux de ségrégation relative en Nb  $(\omega_m^{Nb} - \omega_0^{Nb})/\omega_0^{Nb}$ .  
 — : Bras de levier (cas (b)). — :  $N_0 = 10^{12} \text{ m}^{-3}$  (cas (e)). — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  (cas (f)).  
 — :  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $D_s^{Nb} = 4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  (cas (g)) (cf. tableau V.2).

## V.5 Influence des conditions thermiques à la limite latérale du lingot

### V.5.a Introduction

Des à-coups de brassage ont été appliqués à plusieurs reprises au cours de la refusion du M5® dans le but de marquer le profil du puits liquide (cf. chapitre III). La comparaison entre les profils mesurés expérimentalement et ceux prédits par le modèle est présentée dans l'annexe B.

Dans cette annexe, trois cas principaux ont été simulés en faisant varier le coefficient de transfert thermique dans la zone de contact lingot/lingotière ( $h_{conlat}$ ), le retrait minimal de début de décollement ( $e_{gap}^{min}$ ) et le retrait de décollement total ( $e_{gap}^{max}$ ). Les paramètres utilisés dans les deux premiers cas, notés (2) et (3), sont donnés dans le tableau V.3. Tous les résultats présentés précédemment ont été obtenus en employant les paramètres du cas (3). Dans le troisième cas, noté \*, les paramètres du cas (2) sont utilisés au cours de la première moitié de la refusion (vitesse de fusion relativement élevée et brassage unidirectionnel) puis les paramètres du cas (3) sont employés au cours de la seconde moitié (vitesse de fusion relativement faible et brassage alterné).

**TABLEAU V.3** – Cas étudiés pour l'évolution du puits liquide au cours de la refusion de l'alliage M5® (cf. annexe B)

			(2)	(3)
Coefficients de transfert thermique				
• surface latérale	$h_{conlat}$	W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	500	400
Largeurs de retrait				
• début de décollement partiel	$e_{gap}^{min}$	m	2,5·10 <sup>-5</sup>	1·10 <sup>-4</sup>
• décollement total	$e_{gap}^{max}$	m	5·10 <sup>-5</sup>	3·10 <sup>-3</sup>

Nous avons constaté que les conditions thermiques à la limite lingot/lingotière étaient déterminantes dans la prédiction du profil de puits liquide (cf. annexe B).

De plus, la hauteur de la zone de contact entre le lingot et la lingotière semble dépendre de la vitesse de fusion et/ou du type de brassage utilisé.

Le cas \* permet d'obtenir numériquement des profils de puits liquide les plus proches de ceux mesurés expérimentalement.

Le but de cette partie est donc d'étudier numériquement l'effet sur la macroségrégation des conditions thermiques à la limite latérale du lingot en comparant les résultats obtenus dans chacun des trois cas. Ces résultats seront ensuite comparés aux mesures expérimentales.

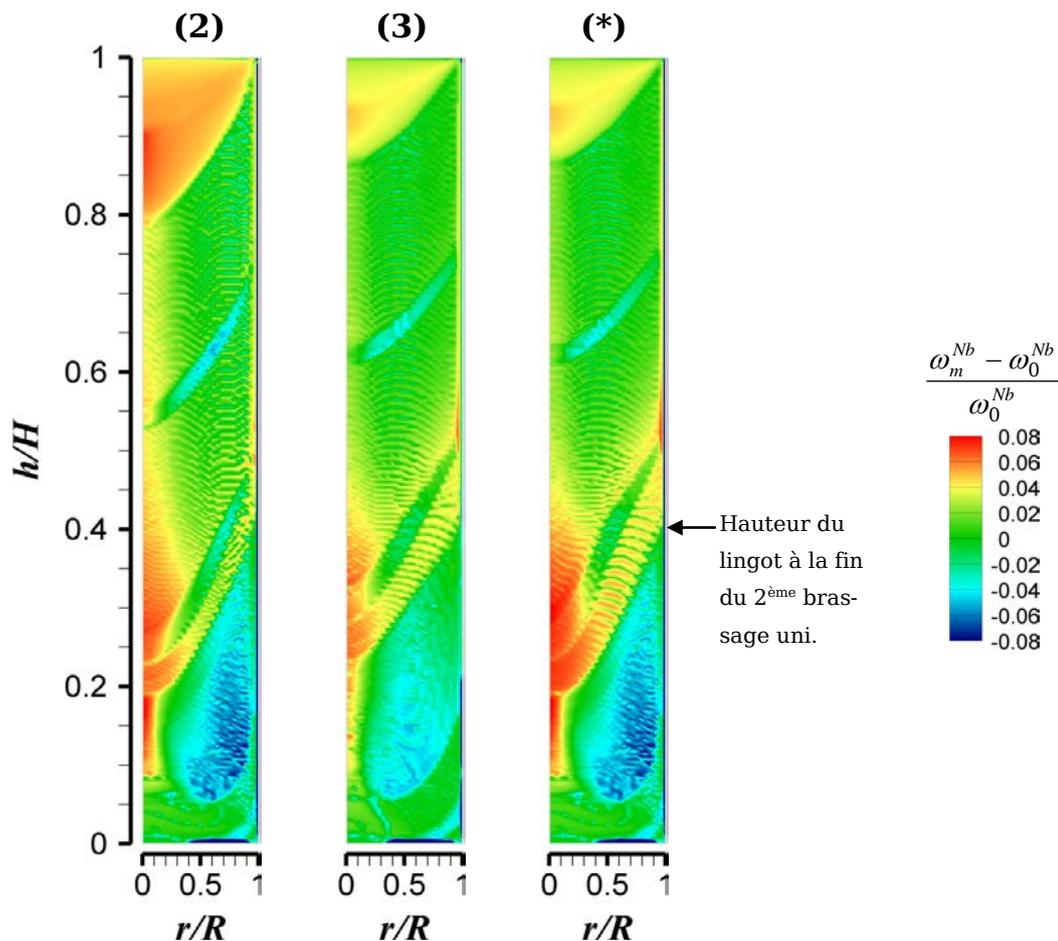
### V.5.b Macroségrégation et comparaison aux mesures expérimentales

Pour les trois cas, les cartes de macroségrégation en Nb dans le lingot final font l'objet de la figure V.19.

L'évolution du puits liquide étant différente, la macroségrégation prédite dans chaque cas est bien évidemment différente. Néanmoins, le même type de macroségrégation est conservé.

Entre les cas (2) et (3), la principale différence réside dans l'intensité de macroségrégation : elle est sensiblement plus marquée dans le cas (3), pour lequel la profondeur du puits liquide est globalement plus importante tout au long de la refusion (cf. annexe B). De plus, la zone enrichie en Nb causée par la réduction de la vitesse de fusion au cours de l'essai est localisée à une hauteur plus faible.

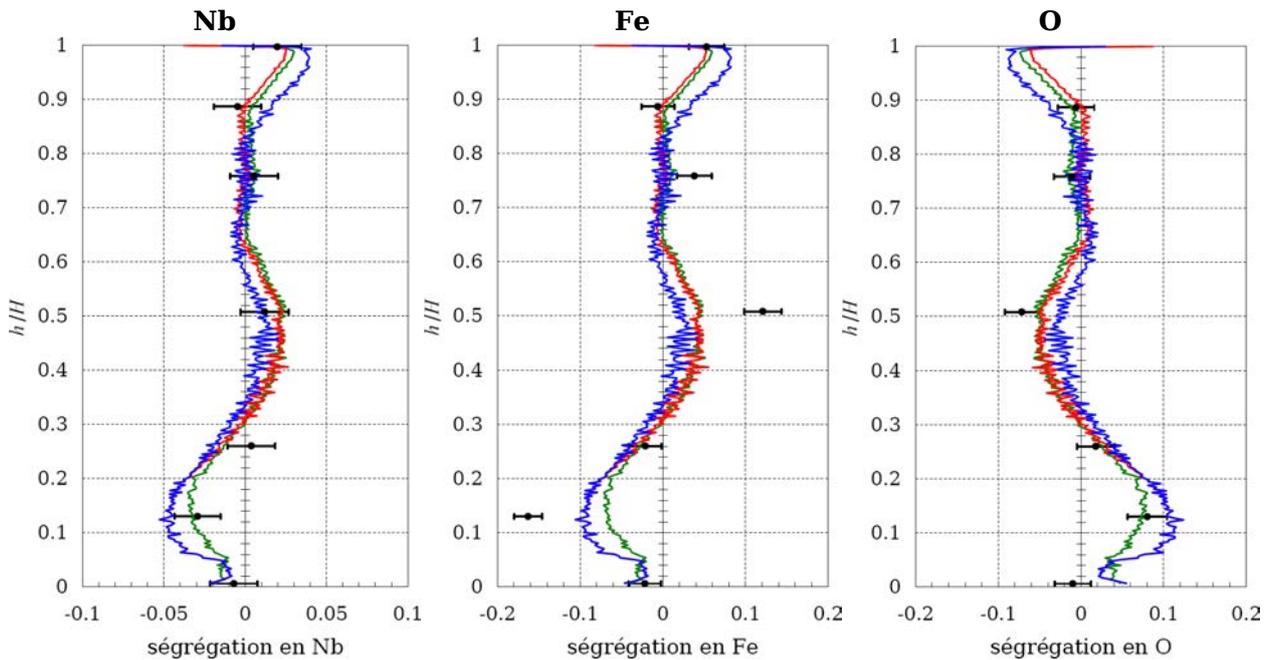
Dans le cas \*, la macroségrégation est identique à celle du cas (3) jusqu'au changement des conditions à la limite qui est intervenu à la fin du deuxième brassage unidirectionnel. Elle est ensuite analogue à la macroségrégation prédite dans le cas (2) pour la moitié supérieure du lingot. Il est intéressant de noter que les effets sur la macroségrégation du changement de conditions de refroidissement se limitent majoritairement à la zone transitoire.



**FIGURE V.19** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : influence du refroidissement latéral lingot/lingotière sur la macroségrégation en Nb dans le lingot final.

Les profils de macroségrégation longitudinale moyennée radialement tracés dans la figure V.20 permettent d'analyser plus précisément l'influence de chaque cas sur la macroségrégation.

Comme nous l'avons noté précédemment, la modélisation du transfert thermique latéral affecte la macroségrégation longitudinale prédite. Par rapport au cas (2), l'augmentation de la profondeur du puits au début de la refusion dans le cas (3) accentue la ségrégation négative eu pied de lingot et réduit la ségrégation positive à mi-hauteur. De plus, la ségrégation positive en tête de lingot est plus marquée. Dans le cas \*, on observe que la répercussion du changement de condition à la limite sur le profil longitudinal est rapide.



**FIGURE V.20** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : Influence du refroidissement latérale lingot/lingotière sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ . — : Cas (2). — : Cas (3). — : Cas \*.

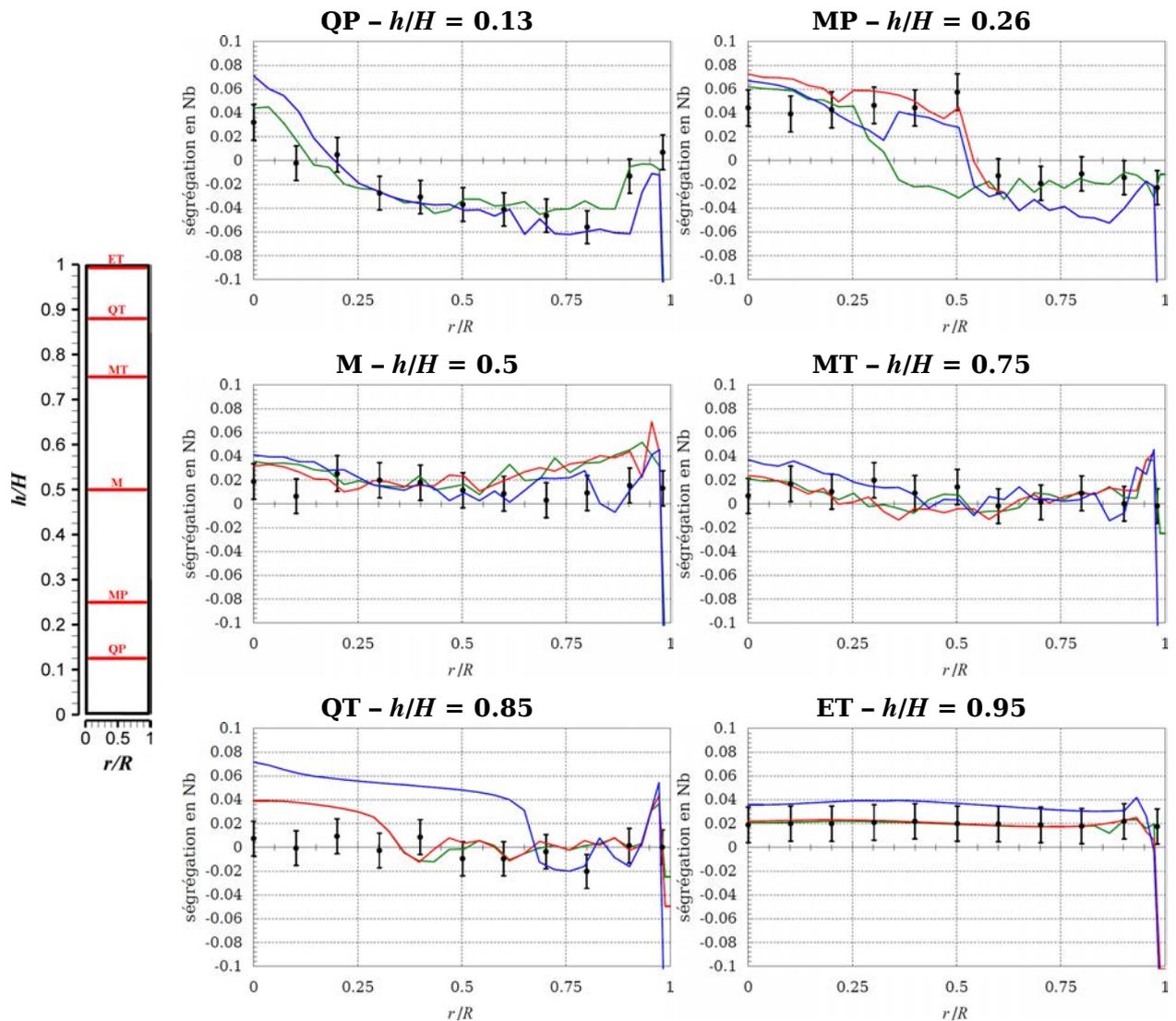
Dans les trois cas, les différences entre les profils prédits sont faibles aux hauteurs  $h/H = 0,13 ; 0,5 ; 0,75 ; 0,95$  (plaques QP, M, MT et ET). Remarquons que pour la plaque QP, les profils des cas (3) et (\*) se superposent logiquement étant donné que la solidification du lingot à cette hauteur s'est déroulée avec des paramètres  $h_{conlat}$ ,  $e_{gap}^{min}$  et  $e_{gap}^{max}$  identiques dans les deux cas.

Les profils radiaux prédits à  $h/H = 0,26$  (plaque MP) sont particulièrement intéressants. La largeur de la zone ségrégée positivement au centre du lingot est liée à la profondeur du puits liquide. Pour les cas (3) et \* pour lesquels le puits est plus profonds lors de la solidification de la plaque MP, le modèle prédit des profils radiaux plus représentatifs de la macroségrégation mesurée expérimentalement.

Par ailleurs, à  $h/H = 0,85$ , on remarque que la région enrichie en Nb au centre du lingot est plus importante dans le cas (3). Cette ségrégation est causée par la solidification du

dernier puits liquide. Il est logique de constater cet écart car le puits à la fin de la refusion est plus profond dans le cas (3) que dans les deux autres cas. Cet enrichissement n'est pas observé expérimentalement.

La comparaison entre la macroségrégation prédite par le modèle dans les différents cas et les analyses chimiques semble confirmer la variation des conditions thermiques entre le lingot et la lingotière au cours de la refusion du M5®. Cela impacte significativement la macroségrégation, à travers la géométrie du puits liquide.



**FIGURE V.21** – Simulation de la refusion de l'alliage M5® : Influence de la convection thermosolutale sur les profils radiaux de ségrégation relative en Nb  $(\omega_m^{Nb} - \omega_0^{Nb})/\omega_0^{Nb}$ . — : Cas (2). — : Cas (3). — : Cas\*.

## V.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes attachés à identifier l'influence de plusieurs éléments sur la macroségrégation d'un lingot VAR en alliage M5<sup>®</sup> :

- la convection naturelle,
- l'espacement interdendritique  $\lambda_{DAS}$ ,
- la rétrodiffusion des solutés,
- et les conditions thermiques à la limite latérale du lingot.

Contrairement aux résultats obtenus pour l'alliage Zy-4 (cf. Chapitre IV), la convection naturelle, d'origine thermique et solutale, n'est pas une cause prépondérante de macroségrégation lors de la refusion de l'alliage M5<sup>®</sup>. Etant donné que l'intervalle de solidification de l'alliage M5<sup>®</sup> est faible comparativement à celui du Zy-4, la convection forcée engendrée par les conditions opératoires du procédé (courant de fusion et brassage électromagnétique) a l'influence la plus importante.

L'augmentation de l'espacement interdendritique dans le calcul de la perméabilité de la zone pâteuse entraîne une intensification de la macroségrégation. Comme pour le Zy-4, c'est un paramètre essentiel dans la prédiction quantitative de la macroségrégation.

La prise en compte de la rétrodiffusion est importante en fin de solidification mais elle modifie peu la macroségrégation.

Les conditions thermiques à la limite latérale du lingot ont un rôle significatif sur la profondeur du puits liquide et, par conséquent, sur la macroségrégation. Le transfert thermique entre le lingot et la lingotière est conditionné par le comportement thermomécanique au niveau de la zone de contact lingot/lingotière (cf. annexe B).

La comparaison modèle/expérience en termes de profils de puits liquide et de macroségrégation tend à montrer que les conditions thermiques à la limite latérale varient en fonction de la vitesse de fusion et/ou du brassage électromagnétique. Pour cet essai, la largeur de la région enrichie en Nb et Fe et appauvrie en O à  $h/H = 0,26$  (plaque MP) est directement liée à ces conditions traduisant l'intensité du refroidissement du lingot.

## V.7 Bibliographie

- [1] T. Ishikawa, P.F. Paradis, Thermophysical properties of molten refractory metals measured by an electrostatic levitator, *Journal of electronic materials*. 34 (2005) 1526–1532.
- [2] P.F. Paradis, T. Ishikawa, S. Yoda, Non-contact measurements of thermophysical properties of niobium at high temperature, *Journal of materials science*. 36 (2001) 5125–5130.
- [3] G. Neumann, C. Tuijn, *Self-diffusion and impurity diffusion in pure metals: handbook of experimental data*, Elsevier, 2008.

## **VI Modélisation et simulation du transport de grains équiaxes lors de la refusion de l'alliage Zircaloy-4**

### **VI.1 Introduction**

Comme nous l'avons déjà abordé (cf. chapitre IV, §IV.5), le transport de grains équiaxes pourrait être la cause de la ségrégation négative (respectivement positive) en éléments métalliques (respectivement en oxygène) qui a été mesurée dans la moitié inférieure du lingot en alliage Zy-4 (cf. chapitre IV). Une grande vitesse de fusion et un brassage de forte intensité et de faible période étaient alors appliqués.

Afin d'identifier l'influence sur la macroségrégation du transport de grains équiaxes, nous avons cherché à le prendre en compte dans le modèle SOLAR. Nous nous sommes logiquement basés sur le modèle SOLID pour y parvenir.

Le modèle SOLID qui est développé par Combeau et son équipe au sein de l'Institut Jean Lamour (École des Mines de Nancy) est dédié à la modélisation de la solidification. Il tient compte du transport de grains équiaxes, qui peuvent être de morphologie globulaire ou dendritique, et de l'écoulement interdendritique de la phase liquide dans la région où les grains sont bloqués. Le couplage entre le transport macroscopique de quantité de mouvement, de chaleur et de solutés, et la croissance des grains à l'échelle microscopique est assuré par le schéma de « splitting » [1,2] présenté dans le chapitre II.

Ce modèle a été utilisé pour simuler la solidification d'un lingot de fonderie de 3,3 tonnes en acier [3] : l'effet sur la macroségrégation de la sédimentation des grains équiaxes a pu être mis en évidence. Ce modèle est similaire à celui développé par Beckermann et son équipe pour simuler la solidification équiaxe de l'alliage Al-4Cu dans une cavité rectangulaire [4]. Založnik [5] a également adopté le même type d'approche pour simuler le procédé de coulée semi-continue d'alliages d'aluminium.

À la suite de cette introduction, nous présentons les modifications apportées aux équations de conservation du modèle décrit dans le chapitre II pour tenir compte du mouvement des grains équiaxes.

Ensuite, la troisième partie de ce chapitre est consacrée à la présentation et à la discussion des résultats obtenus en tenant compte de la solidification équiaxe au cours de la première moitié de la refusion de l'alliage Zy-4.

## VI.2 Révision des équations résolues pour tenir compte du mouvement de grains équiaxes

### VI.2.a Introduction

Du fait de l'application d'un brassage électromagnétique au cours des refusions VAR d'alliages de zirconium, l'écoulement a une composante orthoradiale. Ce mouvement est d'ailleurs la cause principale de la turbulence de l'écoulement.

Ces deux caractéristiques constituent des différences importantes par rapport au modèle SOLID qui considère, lors de la solidification d'un lingot de fonderie, un écoulement uniquement laminaire en deux dimensions.

Cependant, dans l'approche présentée dans ce chapitre, nous n'avons pas modifié le modèle  $k-\varepsilon$  présenté dans le chapitre II. En particulier, le terme source  $P_{kp}$  a été conservé dans l'ensemble de la zone pâteuse bien que la perméabilité  $K$  ne soit plus définie physiquement dans la zone où les grains peuvent bouger librement.

En outre, la morphologie des grains équiaxes de masse volumique constante  $\rho_s$  est supposée globulaire. En effet, le transport de grains équiaxes de morphologie dendritique modifie peu la macroségrégation par rapport au cas où la phase solide est totalement fixe [3].

Les équations de conservation modifiées pour tenir compte de la solidification équiaxe sont :

- l'équation de conservation de la masse totale
- l'équation de conservation de la quantité de mouvement
- l'équation de conservation de l'énergie
- l'équation de conservation de la masse d'un constituant dans la phase solide
- l'équation de conservation de la densité de grains

Notons que pour la prise en compte du mouvement de grains équiaxes, le modèle cinétique de croissance doit être utilisé (cf. chapitre II, §II.3.b). La méthode de résolution ainsi que les conditions aux limites ne sont pas modifiées.

### VI.2.b Conservation de la masse totale

L'équation de conservation de la masse dans la phase  $k$  est (cf. chapitre II, éq. (II.58)) :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_k g_k) + \nabla \cdot (\rho_k g_k \langle \mathbf{u}_k \rangle^k) = \Gamma_k \quad (\text{VI.1})$$

Comme le bilan de matière à l'interface liquide/solide est :

$$\Gamma_l + \Gamma_s = 0 \quad (\text{VI.2})$$

l'équation de conservation de la masse totale obtenue en sommant les équations de continuité pour les phases liquide et solide est :

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \mathbf{u}_l \rangle^l + \rho_s g_s \langle \mathbf{u}_s \rangle^s) = 0 \quad (\text{VI.3})$$

### VI.2.c Conservation de la quantité de mouvement

Comme dans le modèle SOLID, deux régimes d'écoulement sont modélisés :

- Dans la zone où la fraction massique de phase solide  $g_s$  est inférieure à une fraction de blocage prédéfinie  $g_s^c$ , nous considérons l'écoulement comme une suspension de grains équiaxes dans la phase liquide. Les phases solide et liquide ont alors des vitesses différentes.
- Dans la région où  $g_s > g_s^c$ , les grains forment une matrice poreuse rigide. L'écoulement est alors décrit comme un écoulement dans un milieu poreux saturé.

Chaque régime nécessite des équations de conservation de la quantité de mouvement différentes pour les phases liquide et solide.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase liquide est (cf. chapitre II, éq. (II.77)) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \\ = -g_l \nabla \langle \bar{p}^\bullet \rangle^l + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + (\nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l)^T \right] \right\} + g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l \mathbf{g} + g_l \langle \bar{\mathbf{F}}_{el} \rangle^l + \mathbf{M}_l^\tau \end{aligned} \quad (\text{VI.4})$$

où :

$$\mathbf{M}_l^\tau = \frac{1}{V_o} \int_{A_i} \mathbf{n}_l \cdot \left( -\bar{p}^{*\prime\prime} + (\mu_l + \mu_t) 2\bar{\mathbf{s}}_l \right) dS \quad (\text{VI.5})$$

Cette équation est utilisée pour les deux régimes d'écoulement avec, cependant, des modèles de fermeture différents pour  $\mathbf{M}_l^\tau$ .

Dans les deux sections suivantes, nous précisons les équations macroscopiques de conservation de la quantité de mouvement pour la phase liquide dans chaque régime d'écoulement. De plus, nous donnons dans chaque cas, l'équation de conservation de la quantité de mouvement pour la phase solide.

#### Écoulement d'une suspension de grains équiaxes ( $g_s \leq g_s^c$ )

L'équation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase solide a été simplifiée en négligeant le terme visqueux ainsi que l'influence de la turbulence sur le mouvement moyen ( $\mathbf{u}'_s = 0$ ).

En ce qui concerne le terme inertiel, nous avons tenu compte de la force centrifuge afin de considérer l'influence du mouvement orthoradial généré par le brassage électromagnétique.

Par ailleurs, nous supposons que la pression dans la phase solide est égale à celle dans la phase liquide et que les forces de Lorentz appliquées aux phases liquide et solide sont identiques :

$$\langle \bar{p}_s \rangle^s = \langle \bar{p}^\bullet \rangle^l = \bar{p}^\bullet \quad (\text{VI.6})$$

$$\langle \bar{\mathbf{F}}_{el} \rangle^l = \langle \bar{\mathbf{F}}_{el} \rangle^s = \bar{\mathbf{F}}_{el} \quad (\text{VI.7})$$

Ainsi, l'équation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase solide est :

$$-g_s \rho_s \frac{\left(\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \cdot \mathbf{e}_\theta\right)^2}{r} \mathbf{e}_r = -g_s \nabla \bar{p}^\bullet + g_s \rho_s \mathbf{g} + g_s \bar{\mathbf{F}}_{el} + \mathbf{M}_s^\tau \quad (\text{VI.8})$$

où  $\mathbf{e}_r$  et  $\mathbf{e}_\theta$  sont respectivement les vecteurs unitaires radial et orthoradial de la base de coordonnées cylindriques  $(r, \theta, z)$ .

Le terme  $\mathbf{M}_s^\tau$  qui est la somme des contraintes visqueuses moyennes sur les interfaces liquide-solide est modélisé par [1,4] :

$$\mathbf{M}_s^\tau = \frac{3g_s \rho C_d}{4d_g} \left| \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l - \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \right| \left( \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l - \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \right) \quad (\text{VI.9})$$

où :

$$C_d = \frac{48C_{ke}(1-g_l)}{Re} + C_{ie} \quad Re = \frac{\rho g_l d_g}{\mu_l} \left| \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l - \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \right|$$

$$C_{ke} = \begin{cases} \frac{25}{6} & g_l \leq 0,5 \\ \frac{1}{2} \frac{g_l^3}{1-g_l} \frac{1+4,7(1-g_l)}{1-1,83(1-g_l)} & g_l > 0,5 \end{cases} \quad (\text{VI.10})$$

$$C_{ie} = \begin{cases} \frac{7}{3} & g_l \leq 0,5 \\ \frac{24(10^E - 1)}{Re [1 - 0,9(g_l - 0,25)^{1/3} (1-g_l)^{2/3}]} & g_l > 0,5 \end{cases}$$

$$E = 0,261Re^{0,369} - 0,105Re^{0,431} - \frac{0,124}{1 + (\log_{10} Re)^2}$$

Finalement, on obtient l'expression explicite de la vitesse de la phase solide suivante :

$$\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \frac{4d_g^2 g_l}{3C_d \mu_l Re} \left( -\nabla \bar{p}^\bullet + \rho_s \mathbf{g} + g_s \rho_s \frac{\left(\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \cdot \mathbf{e}_\theta\right)^2}{r} \mathbf{e}_r + \bar{\mathbf{F}}_{el} \right) \quad (\text{VI.11})$$

Pour simplifier l'équation de conservation de la quantité de mouvement pour la phase liquide, nous avons additionné à l'équation (VI.4), l'équation de conservation de la quantité de mouvement pour la phase solide (VI.8).

En appliquant, le bilan de quantité de mouvement à l'interface solide/liquide ( $\mathbf{M}_l^\tau = \mathbf{M}_s^\tau$ ), on obtient :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right) + \nabla \cdot \left( \rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right) = -\nabla \bar{p}^\bullet + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + \left( \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \right)^T \right] \right\}$$

$$+ \bar{\rho}_m^b \mathbf{g} + \bar{\mathbf{F}}_{el} + g_s \rho_s \frac{\left(\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \cdot \mathbf{e}_\theta\right)^2}{r} \mathbf{e}_r \quad (\text{VI.12})$$

où :

$$\bar{\rho}_m^b = g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l + g_s \rho_s \quad (\text{VI.13})$$

### Écoulement en milieu poreux

Pour la région où les grains forment une matrice poreuse rigide ( $g_s > g_s^c$ ), les équations de conservation de la quantité de mouvement pour les deux phases restent identiques à celles présentées dans le chapitre II (éqs. (II.63) et (II.83)) :

$$\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s = 0 \quad (\text{VI.14})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\rho_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \\ = -g_l \nabla \bar{p} + \nabla \cdot \left\{ (\mu_l + \mu_p) g_l \left[ \nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l + {}^T (\nabla \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l) \right] \right\} + g_l \langle \bar{\rho}_l^b \rangle^l \mathbf{g} + g_l \bar{\mathbf{F}}_{el} \\ - \left( \frac{g_l^2 \mu}{K} + g_l^3 \frac{\rho F |\langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l|}{K^{1/2}} \right) \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \end{aligned} \quad (\text{VI.15})$$

#### VI.2.d Conservation de l'énergie

En supposant que l'équilibre thermique est atteint dans le VER, i. e.  $\langle \bar{T}_l \rangle^l = \langle \bar{T}_s \rangle^s = \bar{T}$  (cf. chapitre II, §II.3) et que  $\bar{\mathbf{u}}_s = 0$ , il n'est pas nécessaire de modéliser séparément le transport de chaleur dans les deux phases.

L'équation macroscopique de conservation de l'énergie est :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle \bar{h}_l \rangle^l + \rho_s g_s \langle \bar{h}_s \rangle^s) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{h}_l \rangle^l + \rho_s g_s \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \langle \bar{h}_s \rangle^s) = \nabla \cdot [(\lambda + g_l \lambda_t) \nabla \bar{T}] \quad (\text{VI.16})$$

#### VI.2.e Conservation de la masse d'un constituant $i$

Pour les deux régimes d'écoulement, l'équation de conservation de la masse d'un constituant dans la phase liquide reste identique (cf. chapitre II, §II.2.e) :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_l g_l \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l) + \nabla \cdot (\rho_l g_l \langle \bar{\mathbf{u}}_l \rangle^l \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l) = \nabla \cdot \left[ (D_l + D_p) g_l \nabla \langle \bar{\omega}_l^i \rangle^l \right] + J_l^\Gamma + J_l^j \quad (\text{VI.17})$$

Dans la phase solide, nous négligeons la diffusion à l'échelle macroscopique. En revanche, à l'échelle microscopique, elle est prise en compte par le modèle de microségrégation (cf. chapitre II, §II.3.b). Ainsi, l'équation de conservation d'un soluté  $i$  dans la phase solide est :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_s g_s \langle \bar{\omega}_s^i \rangle^s) + \nabla \cdot (\rho_s g_s \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \langle \bar{\omega}_s^i \rangle^s) = J_s^\Gamma + J_s^j \quad (\text{VI.18})$$

### VI.2.f Conservation de la quantité de grains

Comme  $\langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s \neq 0$ , l'équation de conservation de la population de germes devient (cf. chapitre II, §II.2.f) :

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \nabla \cdot (N \langle \bar{\mathbf{u}}_s \rangle^s) = \dot{N} \quad (\text{VI.19})$$

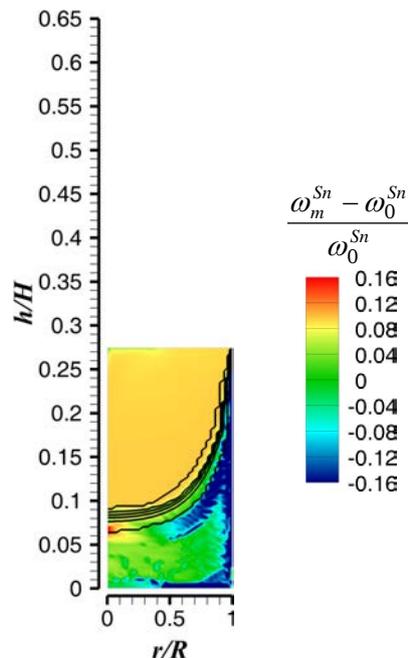
## VI.3 Résultats et discussion

### VI.3.a Introduction

L'effet du mouvement de grains équiaxes sur la macroségrégation a été étudié pour la refusion expérimentale du Zircaloy-4, lors du brassage alterné (première moitié de la refusion) (cf. chapitre III).

La phase solide a été supposée fixe arbitrairement jusqu'à 36 % de la durée totale de la refusion. Dans la figure VI.1, nous avons représenté le lingot à cet instant. Ensuite, le mouvement de grains équiaxes est rendu possible en imposant une fraction de blocage différente de zéro. De plus, le solide est considéré fixe sur la périphérie du lingot à partir de  $r/R = 0,9$ .

Deux fractions de blocage ont été utilisées :  $g_s^c = 0,1$  et  $g_s^c = 0,2$ . Dans toutes les simulations, la densité de grains  $N_0$  a été prise égale à  $10^{10} \text{ m}^{-3}$  et  $\lambda_{DAS} = 134 \text{ }\mu\text{m}$ .



**FIGURE VI.1** – Simulation de la refusion de l'alliage Zy-4 : hauteur et macroségrégation en Sn avant que le mouvement de grains équiaxes soit activé (36 % de la durée de la refusion). Les lignes représentent les isovaleurs de fraction liquide comprises entre 0 et 1 (écart de 0,2 entre deux lignes)

La section suivante est consacrée aux conséquences du mouvement de grains équiaxes sur l'hydrodynamique du puits liquide et de la zone pâteuse avec  $g_s^c = 0,2$ .

L'influence du mouvement de grains équiaxes sur la macroségrégation au cours du brassage alterné fait l'objet de la troisième section.

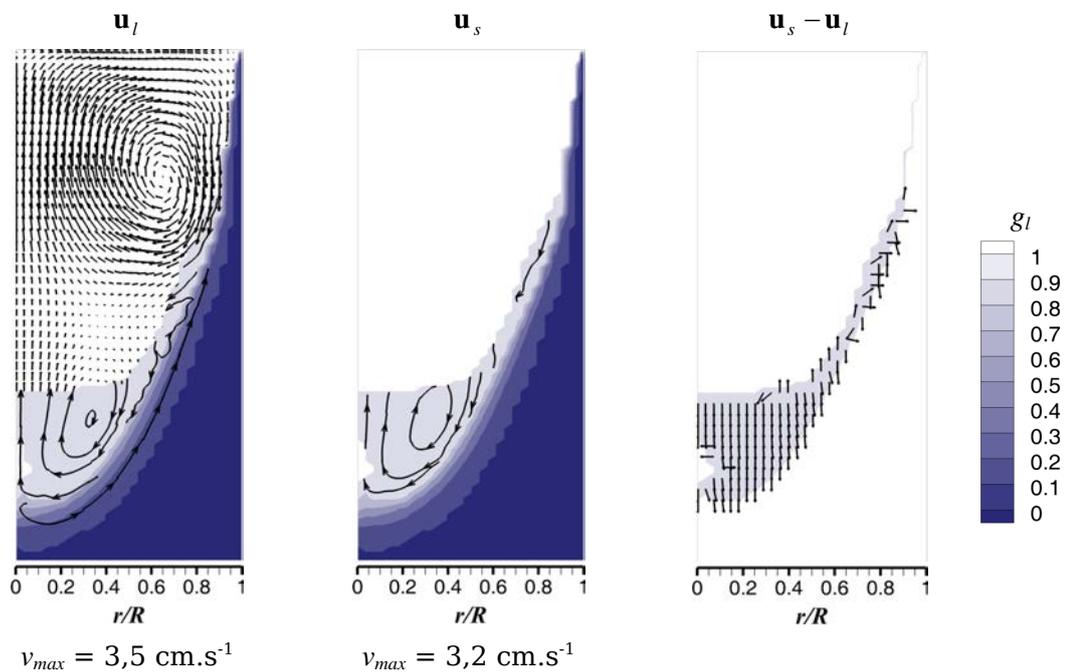
### VI.3.b Comportement hydrodynamique et thermique

Le champ de vitesses des phases liquide et solide est représenté à 54 % de la durée totale de la refusion dans la figure VI.2.

De plus, la vitesse relative de la phase solide dans le plan  $r$ - $z$  est également représentée dans cette figure. Elle permet d'identifier le mouvement relatif des phases solide et liquide. Les vecteurs représentés sont uniformes : leur longueur n'est pas fonction de leur norme.

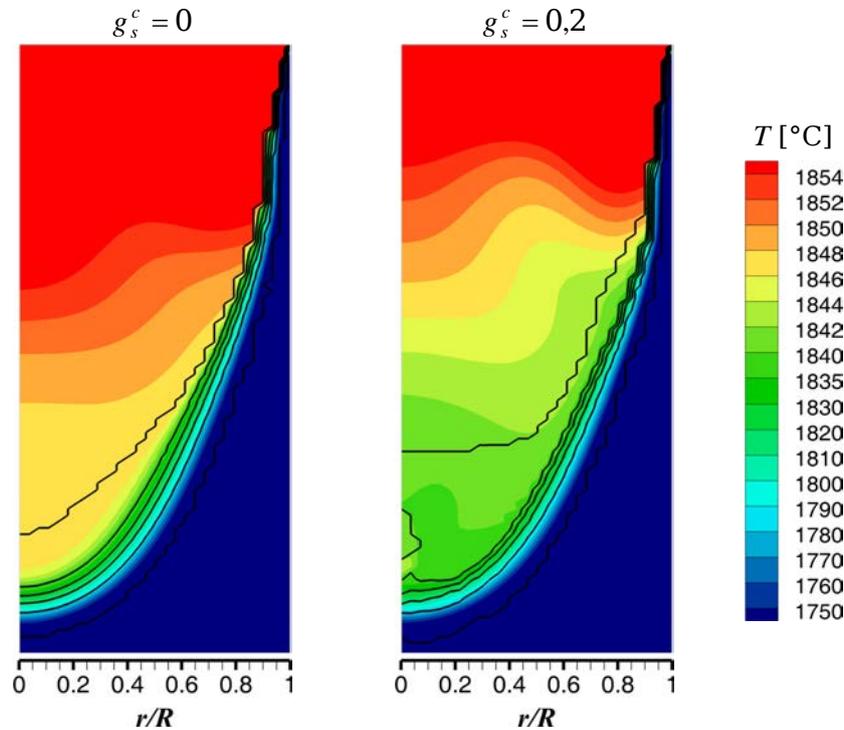
Le champ de vitesse de la phase liquide indique qu'à cet instant, la vitesse orthoradiale est importante étant donné que le sens de la recirculation située dans la partie supérieure du puits est horaire.

La carte des vitesses relatives  $\mathbf{u}_s - \mathbf{u}_l$  montre que, dans la zone centrale, les grains sédimment. En effet, leur masse volumique est supérieure à celle de la phase liquide. Dans la partie externe du lingot, les grains se déplacent radialement vers l'extérieur du lingot sous l'effet du brassage électromagnétique et du fait que  $\rho_s > \rho_l^b$ .



**FIGURE VI.2** – Simulation de la refusion du Zy-4 avec  $g_s^c = 0,2$ . Champs de vitesses à 54 % de la durée totale de la refusion. A gauche : phase liquide ; au milieu : phase solide ; à droite : vitesse relative  $\mathbf{u}_s - \mathbf{u}_l$ . L'écoulement est représenté par des vecteurs dans le puits liquide où les vitesses sont relativement grandes et par des lignes de courant dans la zone pâteuse où les vitesses sont relativement faibles. Pour les vitesses relatives, les vecteurs représentés sont uniformes.

En outre, la prise en compte de la solidification équiaxe cause un refroidissement significatif du puits liquide comme le montre la figure VI.3. La cause de ce refroidissement est la refusion de grains à l'avant du front de solidification. Cela a pour conséquence d'accélérer la solidification dans la zone centrale du lingot.



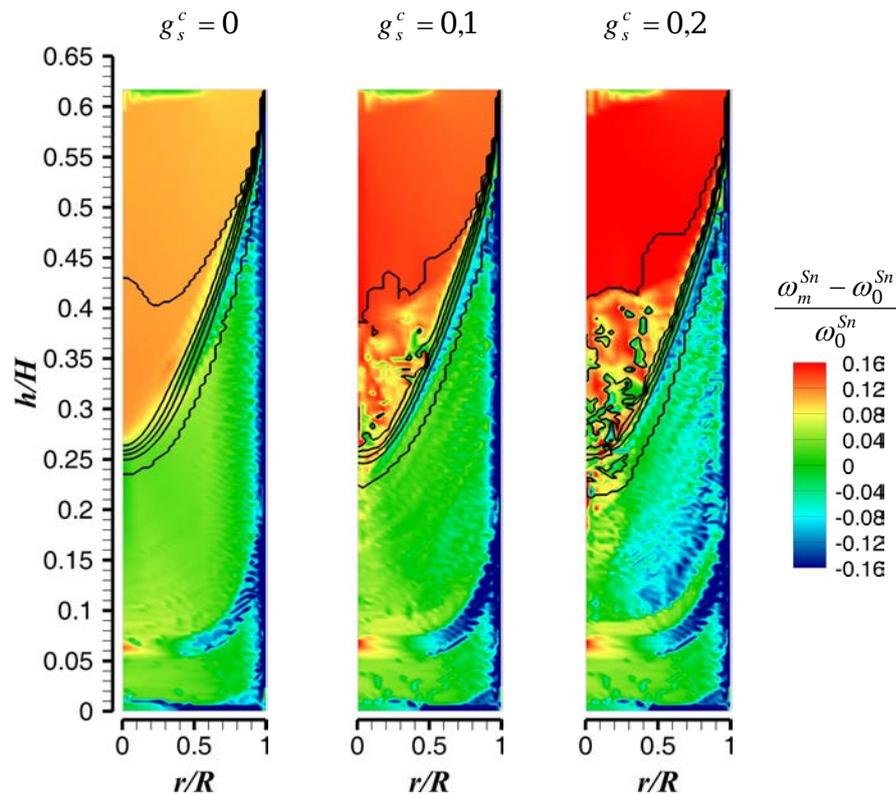
**FIGURE VI.3** – Simulation de la refusion de l'alliage Zy-4 : influence de la solidification sur la thermique dans le puits liquide et la zone pâteuse à 54 % de la durée totale de la refusion (brassage alterné).

### VI.3.c Macroségrégation

La figure VI.4 représente la macroségrégation en Sn à 69 % de la durée de refusion pour deux fractions de blocage ( $g_s^c = 0,1$  et  $0,2$ ) ainsi que celle obtenue lorsque le solide est fixe ( $g_s^c = 0$ ).

La solidification équiaxe cause l'apparition d'une ségrégation négative en Sn dans la zone externe du lingot. L'augmentation de la fraction de blocage favorise cette ségrégation.

Comme nous l'avons montré dans la figure VI.2, les grains sont déplacés vers la partie externe du lingot sous l'effet de la force centrifuge due au brassage. Le liquide enrichi en Sn circule dans la direction inverse et comme la teneur en Sn des grains solides est plus faible que le celle du liquide ( $k_p^{Sn} < 1$ ), la ségrégation de la région externe du lingot est négative. Dans le même temps, la teneur en Sn de la région liquide du lingot augmente.



**FIGURE VI.4** – Simulation de la refusion du Zy-4 : influence de la solidification équiaxe sur la macroségrégation en Sn dans le lingot à 69 % de la durée de la refusion.

Dans la figure VI.5, les profils longitudinaux moyennés radialement de macroségrégation en Sn, Fe, Cr et O ont été tracés pour les trois lingots représentés dans la figure VI.4. La figure VI.6 présente les profils radiaux à  $h/H = 0,25$  (plaque MP).

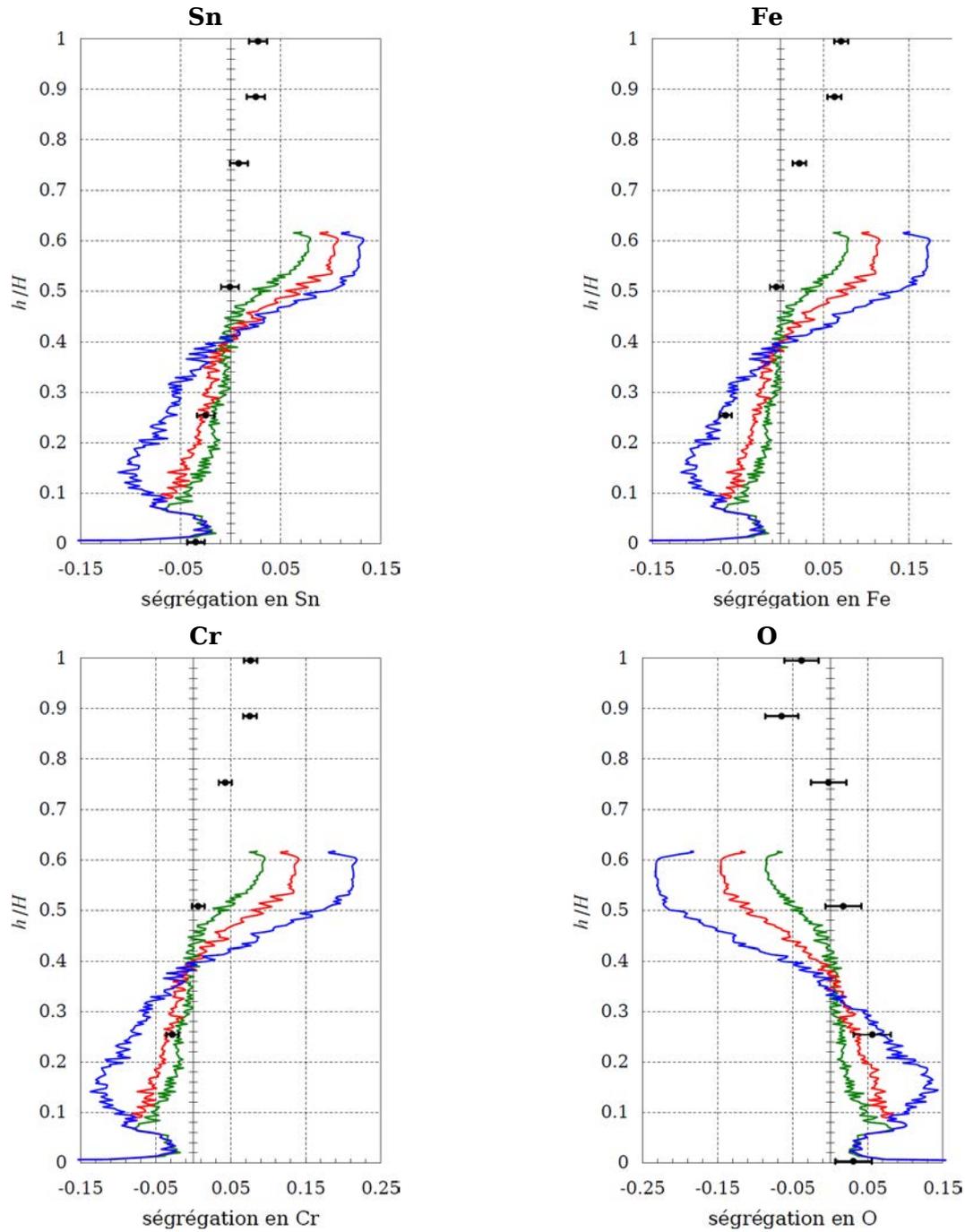
Il faut noter que les profils longitudinaux ont été tracés alors que la refusion n'était pas terminée. Ainsi, l'augmentation des teneurs en Sn, Fe et Cr et la diminution de la teneur en O sont dues au puits liquide à l'instant considéré de la refusion.

Au niveau du pied du lingot, les trois profils se superposent car la solidification équiaxe n'a pas encore été prise en compte quel que soit le cas (cf. §VI.3.a).

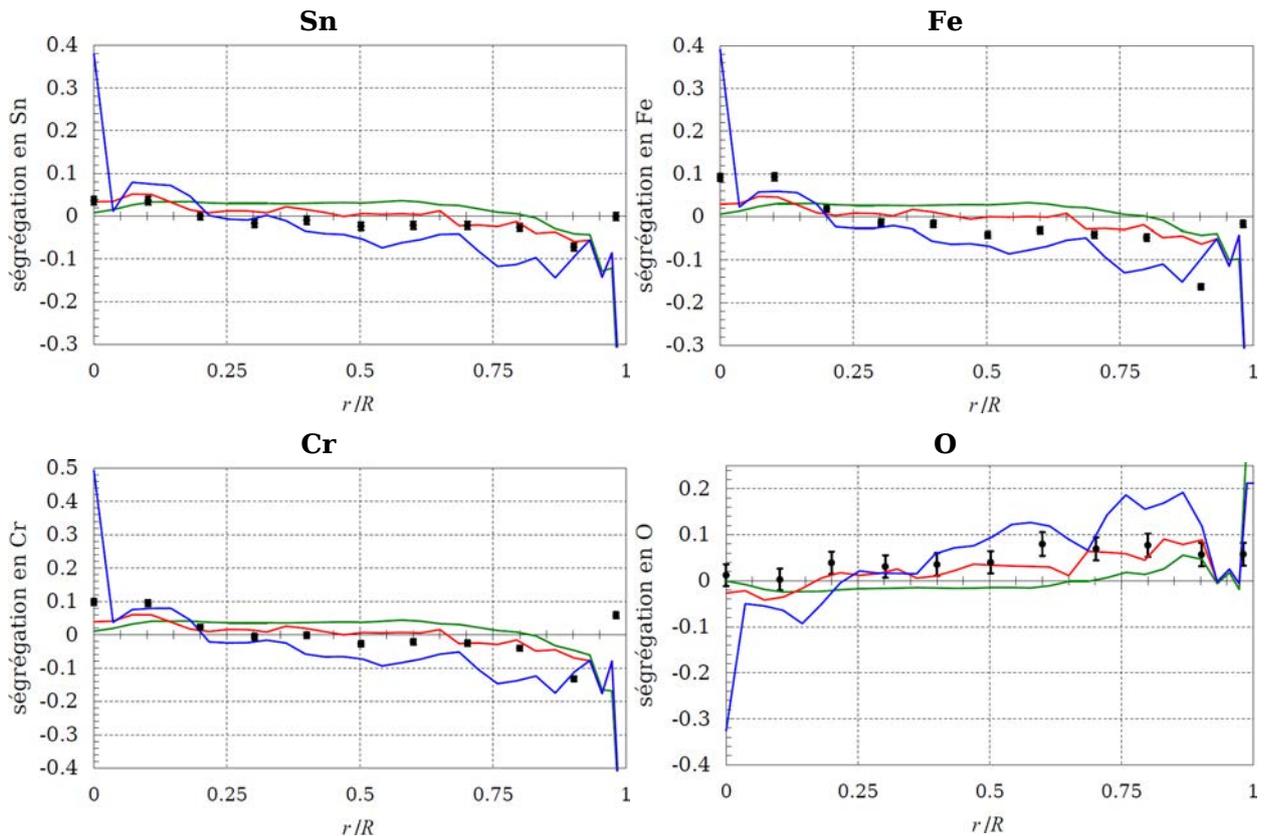
A partir de l'instant où la solidification équiaxe est activée, on note une forte diminution (augmentation) de la teneur en Sn, Fe et Cr (en O). Comme l'a montré la carte de macroségrégation, cette ségrégation est d'autant plus forte que la fraction de blocage est élevée.

Les profils de macroségrégation tracés à  $h/H = 0,25$  (plaque MP) montrent que le transport de grains équiaxes cause, dans la partie externe du lingot, une ségrégation négative en Sn, Fe et Cr et positive en O.

La comparaison entre ces profils et celui obtenu expérimentalement permet de démontrer que le transport de grains équiaxes joue un rôle important lorsque l'intensité du brassage électromagnétique est importante. De plus, plus la fraction de blocage est importante, plus la ségrégation est forte.



**FIGURE VI.5** – Refusion de l'alliage Zy-4 : influence de la solidification équiaxe sur les profils longitudinaux moyennés radialement de ségrégation relative  $(\omega_m^i - \omega_0^i) / \omega_0^i$ . — :  $g_s^c = 0$  (solide fixe). — :  $g_s^c = 0,1$ . — :  $g_s^c = 0,2$ .



**FIGURE VI.6** – Refusion de l’alliage Zy-4 : influence de la solidification équiaxe sur les profils radiaux de ségrégation relative à  $h/H = 0,25$  (plaque MP)  $(\omega_m^i - \omega_0^i)/\omega_0^i$ . — :  $g_s^c = 0$  (solide fixe). — :  $g_s^c = 0,1$ . — :  $g_s^c = 0,2$ .

## VI.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié pour la première fois l’effet de la solidification équiaxe sur la macroségrégation au cours de la refusion de l’alliage Zy-4. Les modifications apportées aux équations constitutives du modèle pour prendre en compte la solidification équiaxe ont été exposées. La modélisation de la turbulence de l’écoulement dans la zone de solidification équiaxe ainsi que son influence sur le mouvement moyen de la phase solide sont des points qui restent à améliorer dans les versions ultérieures du modèle.

Néanmoins, le modèle a permis de mettre en évidence comment le transport de grains équiaxes peut avoir un impact important sur la macroségrégation.

Au cours de la refusion du Zy-4, les grains sont centrifugés vers le bord du lingot sous l’effet du brassage dans la partie externe du lingot. Dans la zone centrale du lingot, les grains sédimentent. Ce transport de grains cause une ségrégation négative en Sn, Fe et Cr et positive en O dans la zone externe du lingot. La solidification équiaxe joue donc prépondérant dans la ségrégation mesurée expérimentalement à  $h/H = 0,25$  (plaque MP).

## VI.5 Bibliographie

- [1] M. Založnik, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part I - Model and solution scheme, *Computational Materials Science*. 48 (2010) 1–10.
- [2] M. Založnik, A. Kumar, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part II - Application of the model, *Computational Materials Science*. 48 (2010) 11–21.
- [3] H. Combeau, M. Založnik, S. Hans, P.E. Richey, Prediction of Macrosegregation in Steel Ingots: Influence of the Motion and the Morphology of Equiaxed Grains, *Metall and Materi Trans B*. 40 (2008) 289–304.
- [4] J. Ni, C. Beckermann, Modeling of Globulitic Alloy Solidification with Convection, *Journal of Materials Processing & Manufacturing Science*. 2 (1993) 217–231.
- [5] M. Založnik, Modeling of macrosegregation in direct chill casting, University of Nova Gorica, 2006.

## VII Conclusion et perspectives

Le travail présenté dans ce manuscrit, mené en étroite collaboration avec CEZUS, a porté sur l'étude et la modélisation de la macroségrégation des alliages de zirconium au cours du procédé VAR. Il s'est déroulé dans le cadre du projet ANR OPERAS (Optimisation des Procédés d'Élaboration par Refusion Arc/Slag) et ainsi, nous avons également utilisé notre modèle pour étudier la macroségrégation des alliages de titane (Ti-6-4 et Ti-17) et d'un acier faiblement allié (cf. annexe C).

Afin d'analyser les causes de macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide, la description de la solidification dans le modèle SOLAR a été affinée (cf. chapitre II) :

- les équations de conservation ont été reformulées suivant la méthode de prise de moyenne volumique ;
- les transports de chaleur et de soluté ont été couplés fortement en adoptant le schéma de « splitting » présenté par Založnik et al. dans [1,2] ;
- en nous appuyant sur le modèle de solidification SOLID, nous avons pris en compte la diffusion des éléments d'alliage dans les calculs de microségrégation [1-3].

Deux refusions industrielles ont été réalisées suivant des consignes de fusion non-standards sur le site de CEZUS à Ugine : l'une de Zircaloy-4 et l'autre de M5<sup>®</sup> (cf. chapitre III). L'originalité de ces essais réside dans l'utilisation de métal recyclé d'une nuance bien identifiée afin de constituer les électrodes et d'assurer leur homogénéité chimique. Les lingots refondus ont été sectionnés ; la structure et la macroségrégation ont été caractérisées.

Leur structure est composée majoritairement de grains  $\text{ex-}\beta$  équiaxes dont la taille est de l'ordre du centimètre. Les analyses chimiques ont montré que les variations des titres massiques en Sn, Fe et Cr pour le Zy-4, et Nb et Fe pour le M5<sup>®</sup>, sont qualitativement similaires. Cependant, les intensités de ségrégation diffèrent : Fe et Cr sont les éléments les plus ségrégeants. Pour les deux alliages, les variations du titre massique en O sont opposées à celles des autres éléments d'addition.

L'utilisation d'une microsonde de Castaing en mode défocalisé pour mesurer la microségrégation due à la solidification n'a pas permis de s'affranchir de l'effet de la transformation de phase à l'état solide  $\beta \rightarrow \alpha$ .

Nous avons distingué suivant deux catégories les conclusions établies à partir des comparaisons entre les résultats de simulation des essais (macroségrégation et profils du puits liquide) et les mesures expérimentales (structure du lingot, marquages du puits liquide et analyses chimiques). La première rassemble les conclusions portant sur le rôle des phénomènes physiques causant la macroségrégation au cours du procédé VAR. La seconde con-

cerne plus spécifiquement certains aspects de modélisation du procédé et de la solidification qui ont un impact sur la prédiction de la macroségrégation.

Premièrement, le rôle joué par la *convection thermosolutale* a été identifié pour chaque alliage: elle influence principalement la macroségrégation radiale.

Pour l'alliage Zy-4, l'effet de la convection solutale est prédominant dans la zone pâteuse ce qui génère un écoulement ascendant et dirigé vers la partie externe du lingot. En effet, l'étain réduit la masse volumique de la phase liquide ; nous avons évalué la valeur du coefficient d'expansion solutale  $\beta_s^{\text{Sn}}$  à  $3 \cdot 10^{-2} \% \text{m}^{-1}$  en supposant l'additivité des volumes entre Zr et Sn. De plus, la convection solutale peut engendrer l'apparition de canaux ségrégés pour une vitesse de fusion relativement élevée et un brassage unidirectionnel de faible intensité. Ces canaux sont causés par la refusion locale de la phase solide due au transport de solutés par la convection solutale. Expérimentalement, les prélèvements effectués suivant le rayon du lingot ne permettent pas d'observer de telles variations de composition. Néanmoins, les canaux ségrégés ou « freckles » sont des défauts de solidification bien connus des élaborateurs de superalliage base nickel [4–8].

L'application du modèle a aussi permis de montrer l'effet dans la zone pâteuse de la convection solutale au cours de la refusion d'un acier faiblement allié (cf. annexe C). À cause de la réduction de la masse volumique de la phase liquide par l'effet du carbone, l'écoulement est ascendant et dirigé vers la partie externe du lingot ce qui limite la macroségrégation.

Pour l'alliage M5<sup>®</sup>, le rôle de la convection thermosolutale est moins important. En effet, l'intervalle de solidification de cet alliage est faible par rapport à celui de l'alliage Zy-4. De ce fait, la zone pâteuse est moins étendue et les phénomènes de transport liés à la convection thermosolutale s'établissent difficilement.

La *convection forcée* causée principalement par le brassage électromagnétique influence également la macroségrégation radiale ; de plus, elle détermine la macroségrégation longitudinale moyennée radialement.

Le brassage alterné de forte intensité appliqué au cours de la première moitié de la refusion de l'alliage Zy-4 entraîne une ségrégation négative (positive) en Sn, Fe et Cr (en O) dans la partie externe du lingot. Le *transport de grains équiaxes* semble jouer un rôle important : dans la partie externe du lingot, les grains sont centrifugés sous l'effet des vitesses orthoradiales importante alors qu'ils sédimentent dans la partie centrale où les vitesses orthoradiales sont faibles du fait de la courte période de brassage.

En revanche, pour le brassage unidirectionnel mais de faible intensité appliqué au cours de la seconde moitié de la refusion, l'effet du transport des grains n'a pas été déterminé. La ségrégation prédite par le modèle en considérant la phase solide fixe est relativement proche des mesures expérimentales à  $h/H = 0,75$ .

Contrairement à l'alliage Zy-4, le mouvement de grains équiaxes ne semble pas être une cause importante de macroségrégation au cours de la refusion de l'alliage M5<sup>®</sup>. En effet, quelles que soient les conditions opératoires employées au cours de l'essai, la macroségrégation prédite par le modèle en supposant la phase solide fixe est relativement proche des mesures expérimentales réalisées. L'intervalle de solidification relativement faible de l'alliage M5<sup>®</sup> doit entraîner un blocage rapide des grains.

L'application d'un fort brassage unidirectionnel au cours de la première moitié de la refusion a causé une forte ségrégation en établissant un écoulement descendant le long du front de solidification et ascendant dans la région centrale du lingot.

La vitesse de fusion relativement faible et l'application d'un brassage alterné de faible intensité au cours de la seconde moitié de la refusion diminue significativement l'intensité de la macroségrégation, en réduisant la vitesse de l'écoulement du métal liquide.

Par ailleurs (cf. Annexe C), l'emploi d'un brassage alterné pourrait permettre de réduire les pertes par volatilisation de certains éléments d'alliage comme le manganèse. Cependant, lors de la refusion d'aciers, un brassage électromagnétique pourrait favoriser l'apparition de grains équiaxes et être ainsi une cause supplémentaire de macroségrégation pour les alliages dont l'intervalle de solidification est relativement important.

Nous détaillons maintenant les conclusions relatives à la modélisation du procédé et de la solidification du lingot. Lorsque la phase solide est supposée fixe, les simulations effectuées ont permis de mettre en évidence l'effet :

- (1) de la diffusion restreinte des solutés au cours de la solidification,
- (2) de l'espacement interdendritique utilisé pour le calcul de la perméabilité de la zone pâteuse,
- (3) des conditions thermiques appliquées à la limite lingot/lingotière.

(1) Les résultats obtenus en appliquant la règle du bras de levier sont considérés dans la suite comme le cas de référence. Pour les alliages de zirconium Zy-4 et M5<sup>®</sup> ainsi que pour un acier faiblement allié (cf. annexe C), la prise en compte de la diffusion restreinte entraîne l'élargissement de la zone pâteuse en diminuant la température de fin de solidification. Le chemin de solidification tend vers celui prédit par le modèle Scheil plus la densité de grains est faible.

Cependant, pour les trois alliages, la macroségrégation prédite par le modèle est peu modifiée que le chemin de solidification soit proche de celui de la règle du bras de levier ou du modèle de Scheil. Le transport macroscopique de soluté a lieu principalement aux faibles fractions solides, c'est-à-dire en début de solidification.

(2) L'espacement interdendritique secondaire influe sur l'intensité de macroségrégation : Pour les alliages Zy-4 et M5<sup>®</sup>, une augmentation de cet espacement favorise l'écoulement, ce qui intensifie le transport de soluté dans la zone pâteuse, et donc la macroségrégation. Les macroségrégations radiale et longitudinale moyennée radialement sont impactées.

Néanmoins, pour le Zy-4, cet effet est moins marqué car l'écoulement dans la zone pâteuse au niveau de la région centrale du lingot est dominé par l'effet de la convection solutale qui tend à limiter la macroségrégation.

(3) Les conditions thermiques appliquées à la limite lingot/lingotière sont déterminantes dans la prédiction du profil du puits liquide. D'après les résultats concernant la refusion de l'alliage M5<sup>®</sup>, elles semblent dépendre des conditions opératoires (cf. annexe B). En particulier, une vitesse de fusion relativement faible et un brassage alterné favoriseraient le contact entre le lingot et la lingotière ce qui améliorerait l'efficacité du refroidissement.

Du fait de leur influence sur le refroidissement du lingot, les conditions thermiques à la limite lingot/lingotière constituent des éléments importants à prendre en compte pour la prédiction de la ségrégation radiale et longitudinale (cf. chapitre V).

### Perspectives

L'étude de la microségrégation au cours de la solidification des alliages de zirconium constitue un axe d'étude à envisager pour valider le modèle de microségrégation à adopter. La microsonde de Castaing en mode défocalisé pourrait se révéler être une technique de caractérisation adaptée si les aiguilles  $\alpha$  étaient plus petites que celles observées sur les deux lingots. Cela nécessiterait un dispositif expérimental qui permette de réaliser une trempe très rapide une fois la solidification terminée afin d'obtenir des aiguilles très fines et de figer ainsi la microségrégation due à la solidification.

Le modèle actuel, en supposant la phase solide fixe, pourra être utilisé pour simuler la refusion d'autres alliages métalliques, par exemple les superalliages de Ni, et étudier dans ce cas la formation des canaux ségrégés en fonction des conditions opératoires.

La modélisation du mouvement des grains équiaxes doit être approfondie, en modifiant notamment le modèle  $k$ - $\varepsilon$  pour tenir compte de la zone où les grains peuvent bouger librement. L'étude du mouvement des grains équiaxes devra également être élargie aux autres conditions opératoires utilisées au cours de la refusion de l'alliage Zy-4. Son effet sur la macroségrégation pourra aussi être déterminé au cours de la refusion d'aciers et d'alliages de titane.

Pour déterminer plus précisément l'effet de la vitesse de fusion et du brassage sur l'efficacité du refroidissement du lingot, de nouveaux essais pourraient être réalisés en marquant le puits liquide pour plusieurs types de conditions opératoires. L'insertion de marqueurs dans l'électrode permettrait certainement d'obtenir des profils de puits plus précis que ceux obtenus en appliquant un à-coup de brassage.

### Bibliographie

- [1] M. Založnik, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part I - Model and solution scheme, *Computational Materials Science*. 48 (2010) 1–10.
- [2] M. Založnik, A. Kumar, H. Combeau, An operator splitting scheme for coupling macroscopic transport and grain growth in a two-phase multiscale solidification model: Part II - Application of the model, *Computational Materials Science*. 48 (2010) 11–21.
- [3] J. Ni, C. Beckermann, Modeling of Globulitic Alloy Solidification with Convection, *Journal of Materials Processing & Manufacturing Science*. 2 (1993) 217–231.

- 
- [4] J.A. Van Den Avyle, J.A. Brooks, A.C. Powell, Reducing defects in remelting processes for high-performance alloys, *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society*. 50 (1998) 22–25.
  - [5] P. Auburtin, T. Wang, S. Cockcroft, A. Mitchell, Freckle formation and freckle criterion in superalloy castings, *Metallurgical and Materials Transactions B*. 31 (2000) 801–811.
  - [6] P. Genereux, C. Borg, Characterization of freckles in a high strength wrought nickel superalloy, dans: *Proc. 9th International Symposium on Superalloys, Minerals, Metals & Materials Soc*, 2000.
  - [7] Z. Long, X. Liu, W. Yang, K. Chang, E. Barbero, Thermodynamic assessment of liquid composition change during solidification and its effect on freckle formation in superalloys, *Mater. Sci. Eng. A-Struct. Mater. Prop. Microstruct. Process*. 386 (2004) 254–261.
  - [8] X. Wang, R.M. Ward, M.H. Jacobs, M.D. Barratt, Effect of Variation in Process Parameters on the Formation of Freckle in INCONEL 718 by Vacuum Arc Remelting, *Metall and Mat Trans A*. 39 (2008) 2981–2989.



## **Annexes**



## A Propriétés thermophysiques de l'alliage Zircaloy-4

Cette annexe présente les propriétés thermophysiques de l'alliage Zircaloy-4 (Zy-4) utilisées pour les simulations. Les coefficients de partage  $k_p^i$  et les pentes de liquidus  $m_L^i$  ont été extraits des diagrammes d'équilibre de phases des systèmes binaires Zr-X de la référence [1].

Notons que les propriétés de l'alliage M5<sup>®</sup> ne peuvent pas être données dans ce mémoire car elles sont hautement confidentielles.

**TABLEAU A.1** – Propriétés thermophysiques de l'alliage Zircaloy-4 (Zy-4).

Température de fusion de Zr pur	$T_m$	[°C]	1855	[2]	<i>réf.</i>
Densité de référence	$\rho_0$	[kg.m <sup>-3</sup> ]	6210	[3]	
Viscosité dynamique	$\mu$	[Pa.s]	4.59·10 <sup>-3</sup>	[3]	
Chaleur spécifique	$c_p$	[J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	435	[4]	
Chaleur latente de fusion	$L_f$	[J.kg <sup>-1</sup> ]	2.42·10 <sup>5</sup>	[5]	
Conductivité thermique	$\lambda$	[W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	36.5	[6]	
Coefficient d'expansion thermique	$\beta_T$	[K <sup>-1</sup> ]	4·10 <sup>-5</sup>	[3]	
Conductivité électrique	$\sigma$	[m <sup>-1</sup> .Ω <sup>-1</sup> ]	6.8·10 <sup>5</sup>	[7]	
Espacement interdendritique	$\lambda_{DAS}$	[m]	134·10 <sup>-6</sup>		
Coefficients de diffusion dans la phase liq.	$D_j^i$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	1·10 <sup>-8</sup>		
<b>Alliage Zircaloy-4</b>					
Composition nominale	Sn	$\omega_0^{Sn}$	[%m]	1.3	
	Fe	$\omega_0^{Fe}$	[%m]	0.2	
	O	$\omega_0^O$	[%m]	0.13	
	Cr	$\omega_0^{Cr}$	[%m]	0.1	
Pentes de liquidus	Sn	$m_L^{Sn}$	[K.%m <sup>-1</sup> ]	-11	[1]
	Fe	$m_L^{Fe}$	[K.%m <sup>-1</sup> ]	-57	[1]
	O	$m_L^O$	[K.%m <sup>-1</sup> ]	147	[1]
	Fe	$m_L^{Cr}$	[K.%m <sup>-1</sup> ]	-26	[1]
Coefficients de partage	Sn	$k_p^{Sn}$	[-]	0.27	[1]
	Fe	$k_p^{Fe}$	[-]	0.25	[1]
	O	$k_p^O$	[-]	2.32	[1]
	Cr	$k_p^{Cr}$	[-]	0.15	[1]

**TABLEAU A.1** – (suite)

					<i>réf.</i>
Coefficients de diffusion dans la phase sol.	Sn	$D_s^{Sn}$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	$4.9 \cdot 10^{-11}$	[8]
	Fe	$D_s^{Fe}$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	$1.5 \cdot 10^{-9}$	[8]
	O	$D_s^O$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	$3.8 \cdot 10^{-9}$	[9]
	Cr	$D_s^{Cr}$	[m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> ]	$1.3 \cdot 10^{-9}$	[8]
Température de fin de solidification		$T_{sol0}$	[°C]	1592	[1]
Coefficients d'expansion solutale	Sn	$\beta_s^{Sn}$	[%m <sup>-1</sup> ]	$3 \cdot 10^{-2}$	
	Fe	$\beta_s^{Fe}$	[%m <sup>-1</sup> ]	0	
	O	$\beta_s^O$	[%m <sup>-1</sup> ]	0	
	Cr	$\beta_s^{Cr}$	[%m <sup>-1</sup> ]	0	

## Bibliographie

- [1] T.B. Massalski, Binary Alloy Phase Diagrams, 2nd Revised edition, ASM International, 1990.
- [2] T.C. Totemeier, W.F. Gale, Smithells metals reference book, 8th éd., Butterworth-Heinemann, 2004.
- [3] T. Ishikawa, P.F. Paradis, Thermophysical properties of molten refractory metals measured by an electrostatic levitator, Journal of electronic materials. 34 (2005) 1526–1532.
- [4] P.-F. Paradis, W.-K. Rhim, Thermophysical Properties of Zirconium at High Temperature, Journal of Materials Research. 14 (1999) 3713-3719.
- [5] V.N. Korobenko, A.I. Savvatimski, K.K. Sevostyanov, Experimental investigation of solid and liquid zirconium, High Temperatures - High Pressures. 33 (2001) 647-658.
- [6] K.C. Mills, B.J. Monaghan, B.J. Keene, Thermal conductivities of molten metals: Part 1 Pure metals, International Materials Reviews. 41 (1996) 209-242.
- [7] V.N. Korobenko, A.I. Savvatimskii, Temperature Dependence of the Density and Electrical Resistivity of Liquid Zirconium up to 4100 K, High Temperature. 39 (2001) 525–531.
- [8] G. Neumann, C. Tuijn, Self-diffusion and impurity diffusion in pure metals: handbook of experimental data, Elsevier, 2008.
- [9] H. Bakker, H.P. Bonzel, C.M. Bruff, M.A. Dayananda, W. Gust, J. Horvath, et al., Diffusion in Solid Metals and Alloys / Diffusion in festen Metallen und Legierungen, 1<sup>er</sup> éd., Springer, 1990.

## **B Validation du modèle : évolution du profil du puits liquide au cours des refusions VAR expérimentales d'alliages de zirconium**

Une méthode couramment utilisée pour valider, au moins d'un point de vue thermique, un modèle de croissance d'un lingot VAR consiste à comparer des profils de puits liquide mesurés expérimentalement avec les profils prédits numériquement. Une telle méthode a déjà été employée avec le code de calcul SOLAR pour simuler des refusions en four pilote d'alliages de titane [1] et de zirconium [2]. De plus, le profil du dernier puits liquide mesuré expérimentalement a été comparé aux résultats de SOLAR pour des refusions à l'échelle industrielle d'aciers spéciaux [3]. Dans ces trois cas, l'accord modèle-expérience était bon. Cette méthode a également été utilisée par différents auteurs et pour d'autres modèles. On peut citer Jackman [4] et Reiter et al. [5] qui ont présenté des comparaisons de profils du dernier puits pour des refusions de superalliage base nickel (alliage 718).

Dans le cadre de cette étude, nous avons également cherché à comparer, pour les deux refusions expérimentales d'alliages de zirconium Zircaloy-4 et M5<sup>®</sup>, les profils de puits liquide mesurés expérimentalement et ceux prédits par le modèle SOLAR incluant les développements présentés dans le chapitre III.

Pour cela, le puits liquide a été marqué à différents instants au cours des refusions par des à-coups de brassage : un brassage unidirectionnel de forte intensité a été appliqué momentanément (cf. chapitre III). Cette technique n'a pas permis de marquer très nettement les puits liquides sur la macrographie longitudinale des lingots. Néanmoins, nous avons pu distinguer deux marquages pour le lingot en Zy-4, et deux marquages ainsi que le dernier puits liquide pour le lingot en M5<sup>®</sup>.

L'objectif de cette annexe est donc de comparer ces profils expérimentaux à ceux prédits par le modèle au cours des refusions de Zy-4 et de M5<sup>®</sup>. L'influence de différents paramètres qui influent sur le transfert thermique entre le lingot et la lingotière a aussi été étudiée.

### **B.1 Présentation des simulations**

La prédiction de l'évolution du profil du puits liquide au cours d'une refusion est très sensible aux conditions aux limites de l'équation de transport de chaleur et, en particulier, celles appliquées sur les surfaces latérales et inférieures du lingot.

La modélisation du transfert thermique entre le lingot et la lingotière dans SOLAR version 4 est décrite en détails dans [3,6,7]. Aucune modification n'a été apportée dans la version actuelle du modèle.

Sur la surface inférieure du lingot, le transfert de chaleur est simulé avec un coefficient de transfert thermique interfacial uniforme et constant, noté  $h_{bot}$ .

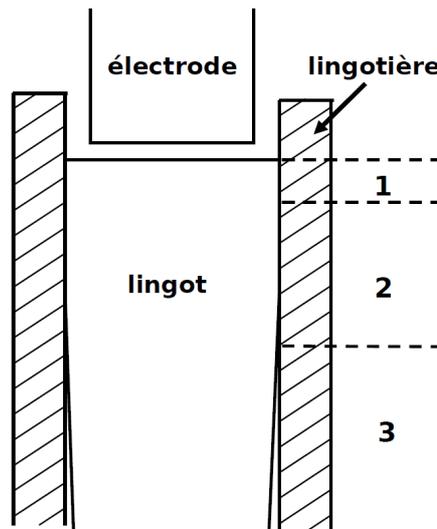
Pour le transfert thermique latéral, deux zones principales sont distinguées (figure B.1). La première zone est située en tête de lingot où le contact thermique entre le lingot et la lingotière est bon. Le transfert de chaleur est alors contrôlé par la conduction, avec un coefficient de transfert thermique interfacial uniforme et constant, noté  $h_{conlat}$ . Pour la seconde zone, il n'y a pas de contact entre le lingot et le creuset à cause de la formation d'un espace de retrait résultant de la contraction du lingot au cours de son refroidissement. Le rayonnement est alors le seul mécanisme de transfert de chaleur dans cette zone. Le coefficient de transfert, noté  $h_{rad}$ , est alors calculé par [6] :

$$h_{rad} = \frac{\sigma(T_{lingot}^4 - T_{lingotière}^4)}{\left(\frac{1}{\varepsilon_{lingot}} + \frac{1}{\varepsilon_{cu}} - 1\right)(T_{lingot} - T_{lingotière})} = \frac{\sigma(T_{lingot}^4 - T_{lingotière}^4)}{\frac{1}{\varepsilon_{eq}}(T_{lingot} - T_{lingotière})} \quad (B.1)$$

où  $\varepsilon_{lingot}$  et  $\varepsilon_{Cu}$  sont les émissivités de la surface latérale du lingot et de la surface intérieure de la lingotière,  $T_{lingot}$  et  $T_{lingotière}$  sont les températures de la surface latérale du lingot et de la surface intérieure de la lingotière et  $\sigma$  est la constante de Stefan-Boltzmann.

Notons qu'au cours des refusions d'aciers et de superalliages, de l'hélium peut être injecté dans cet espace annulaire afin d'améliorer le refroidissement du lingot. Ce transfert conductif supplémentaire peut être pris en compte par le modèle.

De plus, une zone intermédiaire peut aussi être considérée dans le modèle afin de tenir compte d'une perte graduelle de contact entre le lingot et la lingotière (voir réf. [3]).



**FIGURE B.1** – Schéma des trois zones différentes définies pour modéliser les conditions thermiques à la limite latérale du lingot. Zone 1 : contact lingot/lingotière (conduction) ; zone 2 : décollement partiel ; zone 3 : décollement total (rayonnement).

Dans la version 4 de SOLAR, les limites entre les différentes zones peuvent être déterminées suivant deux types de conditions.

Premièrement, les limites peuvent être calculées par rapport à la température de solidus de l'alliage,  $T_{sol}$ , et deux intervalles de température prédéfinis,  $\Delta T_c^1$  et  $\Delta T_c^2$  :

- si  $T_{lingot} > T_{sol} - \Delta T_c^1$ , le lingot et la lingotière sont en contact
- si  $T_{sol} - \Delta T_c^1 > T_{lingot} > T_{sol} - \Delta T_c^2$ , le lingot et la lingotière sont décollés partiellement
- si  $T_{sol} - \Delta T_c^2 > T_{lingot}$ , il n'y a plus de contact entre le lingot et la lingotière

Rappelons que dans la version initiale du modèle, la température de solidus est uniforme dans tout le lingot et qu'il s'agit d'une donnée d'entrée du modèle.

Deuxièmement, les limites peuvent être déterminées par le calcul du retrait,  $e_{gap}$ , sur la hauteur du lingot à partir du champ de température de la section droite [2] [3]. Deux valeurs limites de retrait sont prédéfinies telles que :

- si  $e_{gap} < e_{gap}^{min}$ , le lingot et la lingotière sont en contact (conduction thermique)
- si  $e_{gap}^{min} < e_{gap} < e_{gap}^{max}$ , le lingot et la lingotière sont décollés partiellement (conduction thermique + rayonnement)
- si  $e_{gap}^{max} < e_{gap}$ , il n'y a plus de contact entre le lingot et la lingotière (rayonnement)

Pour simuler les refusions d'alliages de zirconium avec SOLAR version 4, le premier type de conditions était habituellement utilisé par CEZUS avec  $\Delta T_c^1 = \Delta T_c^2 = 50$  °C. Aucune zone de décollement partiel n'était donc prise en compte.

Cependant, à cause du couplage fort entre les équations de transport de chaleur et de solutés dans le modèle actuel, le critère basé sur la température ne peut plus être utilisé tel quel. En effet, la température de solidus n'est plus fixée pour l'ensemble du lingot et nous avons donc choisi d'utiliser le critère basé sur le calcul du retrait pour la version actuelle du modèle.

### B.1.a Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4

L'évolution du puits liquide au cours de la refusion expérimentale de l'alliage Zy-4 a été déterminée numériquement dans trois configurations (tableau B.1).

Dans le cas (1), nous avons simulé l'essai Zy-4 avec SOLAR version 4. Pour les paramètres relatifs aux transferts thermiques lingot/lingotière ( $\varepsilon_{eq}$ ,  $h_{conlat}$ ,  $h_{bot}$ ,  $\Delta T_c^1$  et  $\Delta T_c^2$ ), les valeurs utilisées par défaut par CEZUS ont été conservées. Ces valeurs proviennent de la thèse de Hans [1]. Le chemin de solidification et la température de solidus  $T_{sol}$  ont été calculés par la relation suivante

$$T = T_m + \sum_i \frac{m_i \omega_0^i}{(1 - k^i) g_l + k^i} \quad (\text{B.2})$$

en utilisant les propriétés thermophysiques regroupées dans l'annexe A.

Dans le cas (2), l'évolution du puits liquide a été déterminée par la version actuelle du modèle qui inclut le couplage fort des équations de transport de chaleur et de solutés. La règle du bras de levier a été employée pour modéliser la microségrégation et la phase solide est fixe. Nous avons utilisé le critère basé sur le calcul du retrait et les valeurs de  $h_{conlat}$ ,  $e_{gap}^{min}$  et  $e_{gap}^{max}$  ont été ajustées afin d'obtenir des formes de puits liquide identiques à celles obtenues dans le cas (1).

Dans le cas (3), les épaisseurs de retrait déterminant le décollement,  $e_{gap}^{min}$  et  $e_{gap}^{max}$ , ont été augmentées par rapport au cas (2). Ainsi, les hauteurs des zones de contact lingot-lingotière et de décollement partiel ont été augmentées aux dépens de la hauteur de la zone de décollement, d'où un accroissement du transfert thermique global. Notons que nous avons également diminué le coefficient de transfert dans la zone de contact,  $h_{conlat}$ , afin de conserver la forme de la partie supérieure du dernier puits liquide par rapport au cas (2).

**TABLEAU B.1** – Cas étudiés pour l'évolution du puits liquide au cours de la refusion de l'alliage Zy-4.

		(1)	(2)	(3)
		<i>SOLAR</i>	<i>SOLAR vers.</i>	
		<i>vers. 4</i>	<i>actuelle</i>	
Emissivité équivalente de la surface latérale du lingot (eq. (B.1))	$\varepsilon_{eq}$	0,3	0,3	0,3
Coefficients de transfert thermique				
• surface latérale	$h_{conlat}$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	800	500	400
• surface inférieure	$h_{bot}$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	200	200	200
Température de décollement				
• début de décollement partiel	$\Delta T_c^1$ °C	50	–	–
• décollement total	$\Delta T_c^2$ °C	50	–	–
Largeurs de retrait				
• début de décollement partiel	$e_{gap}^{min}$ m	–	$2,5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
• décollement total	$e_{gap}^{max}$ m	–	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-3}$
Surchauffe des gouttes de métal	$\Delta T_s$ °C	100	100	100

### B.1.b Refusion expérimentale de l'alliage M5®

Pour la refusion de l'alliage M5®, l'évolution du puits liquide a été déterminée numériquement dans cinq cas (cf. tableau B.2).

Les cas (1), (2) et (3) sont identiques à ceux définis précédemment pour l'alliage Zy-4. Deux cas supplémentaires ont été simulés avec la version actuelle du modèle. Dans les cas (4) et (5), nous avons fait varier la surchauffe des gouttes de métal provenant de la fusion de l'électrode : le cas (4) correspond au cas (2) avec une surchauffe plus faible ( $\Delta T_c = 20$  °C) ; le cas (5) correspond au cas (3) avec une surchauffe plus importante ( $\Delta T_c = 150$  °C).

**TABLEAU B.2** – Cas étudiés pour l'évolution du puits liquide au cours de la refusion de l'alliage M5®.

		(1)	(2)	(3)	(4)	(5)
		<i>SOLAR</i> <i>vers. 4</i>	<i>SOLAR vers. actuelle</i>			
Emissivité équivalente de la surface latérale du lingot (eq. (B.1))	$\varepsilon_{eq}$	0,3	0,3	0,3	0,3	0,3
Coefficients de transfert thermique						
• surface latérale	$h_{conlat}$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	800	500	400	500	400
• surface inférieure	$h_{bot}$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	200	200	200	200	200
Température de décollement						
• début de décollement partiel	$\Delta T_c^1$ °C	50	–	–	–	–
• décollement total	$\Delta T_c^2$ °C	50	–	–	–	–
Largeurs de retrait						
• début de décollement partiel	$e_{gap}^{min}$ m	–	$2,5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-4}$
• décollement total	$e_{gap}^{max}$ m	–	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-3}$
Surchauffe des gouttes de métal	$\Delta T_s$ °C	100	100	100	20	150

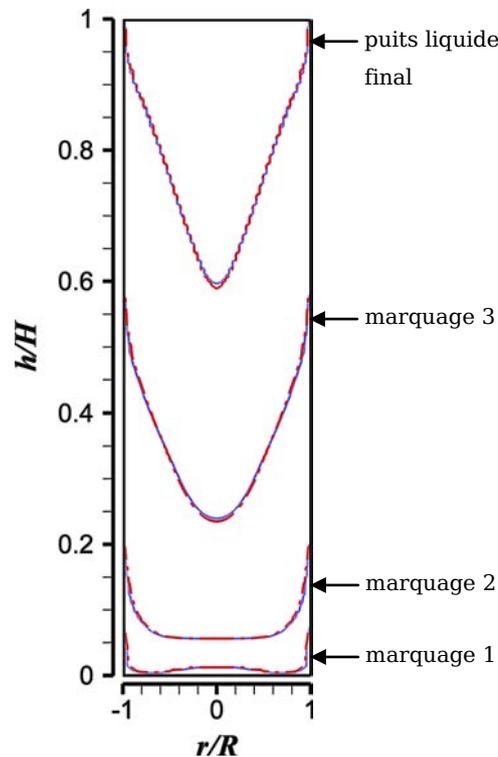
## B.2 Résultats et discussion

### B.2.a Refusion expérimentale de l'alliage Zircaloy-4

La figure B.2 représente l'évolution du puits liquide au cours de la refusion de l'alliage Zy-4 pour les cas (1) et (2) présentés dans le tableau B.1. Les profils de puits liquide tracés correspondent à la position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide à la moitié de l'intervalle de temps pendant lequel le brassage unidirectionnel fort a été appliqué dans le but de marquer le puits liquide.

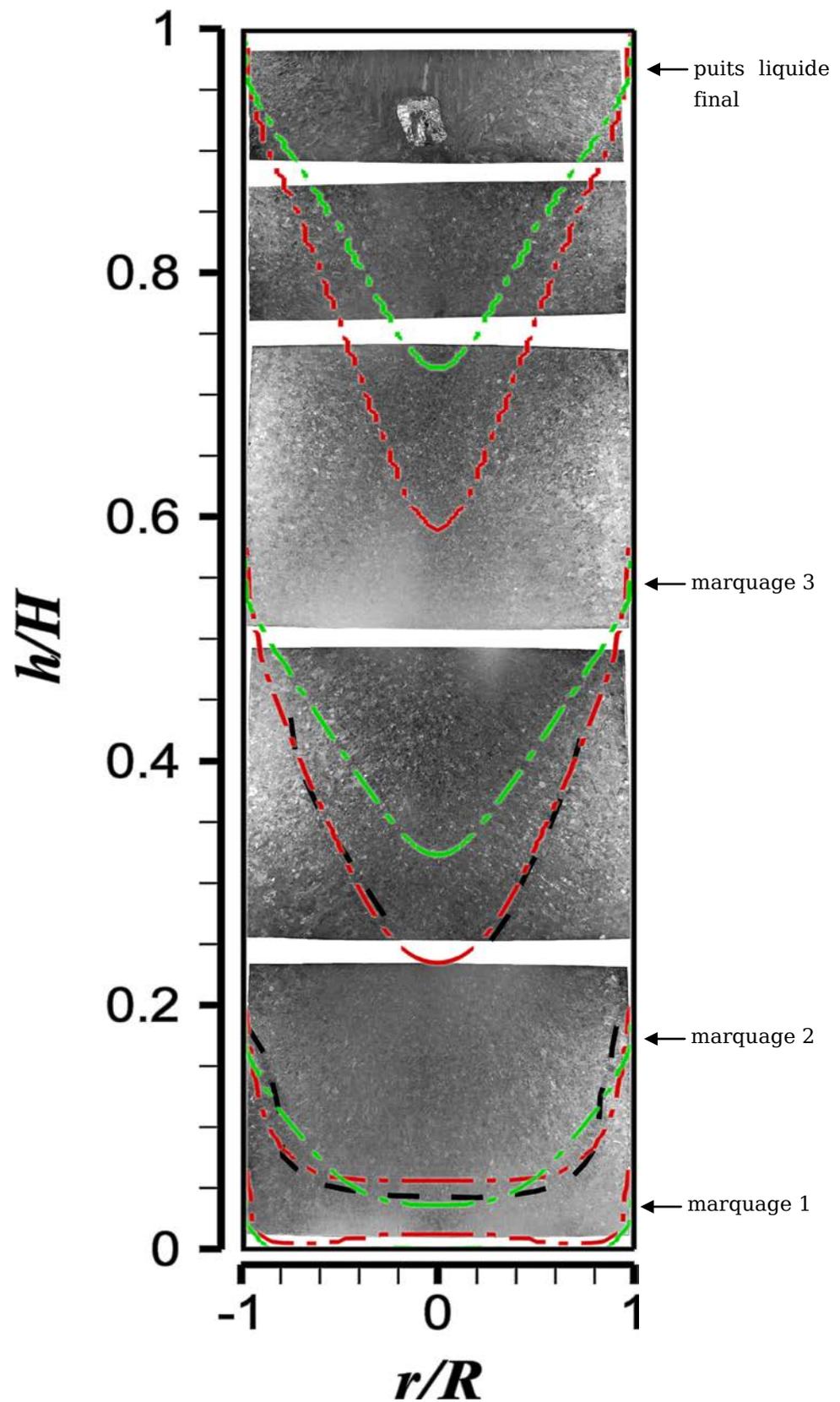
Nous vérifions bien que les profils de puits liquide au cours de la refusion sont identiques dans les deux cas (cf. §B.1.a).

Dans la suite, nous comparons les résultats numériques obtenus dans les cas (2) et (3) aux profils de puits relevés sur les macrographies.



**FIGURE B.2** – Refusion de l'alliage Zy-4 : position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide lors des marquages du puits liquide par l'application d'un brassage électromagnétique fort.  
 — : Cas (1). - - - : Cas (2).

Dans la figure B.3, nous avons superposé à la macrographie longitudinale du lingot Zy-4 les profils de puits liquide prédits par le modèle (position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide à la moitié de l'intervalle de temps pendant lequel le brassage unidirectionnel fort a été appliqué). Les profils expérimentaux du puits au moment des marquages 2 et 3 ont été tracés d'après les changements de structure visibles sur la macrographie.



**FIGURE B.3** – Essai Zy-4 : comparaison entre les profils de puits liquide mesurés expérimentalement et obtenu par le modèle. - - : Mesure expérimentale. - - - : Cas (2). - - - : Cas (3)

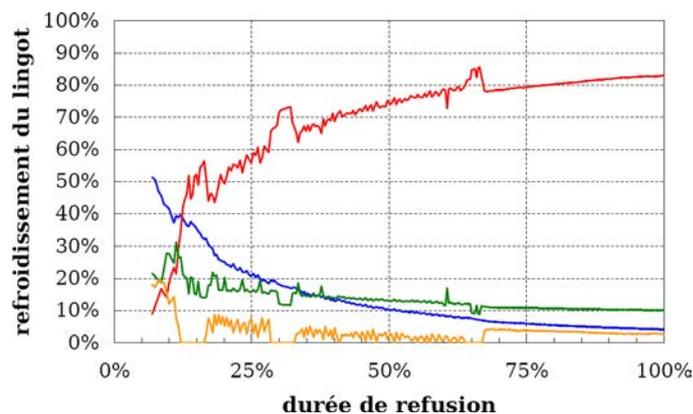
Nous constatons que les deux sets de paramètres employés pour les conditions thermiques à la limite influent significativement sur la profondeur des puits prédits par le modèle.

Dans le cas (2), nous avons un bon accord entre les deux profils de puits liquide expérimentaux et numériques. Le profil de puits obtenus pour le marquage 3 semble montrer que la profondeur du puits liquide est sous estimée dans le cas (3). De plus, pour le marquage 2, la forme du puits liquide obtenu dans le cas (2) est plus représentative du profil mesuré expérimentalement que dans le cas (3).

En outre, les deux profils expérimentaux de puits liquide ont des géométries différentes : une forme « en u » pour le marquage 2 et une forme « en v » pour le marquage 3. Ces formes distinctes sont dues à une répartition différente du refroidissement du lingot entre les surfaces latérale et inférieure du lingot.

Nous avons représenté dans la figure B.4 la répartition du refroidissement du lingot au cours de la refusion. A mesure que le lingot croît, le refroidissement du lingot s'effectue de plus en plus par les zones de décollement partiel et total. Au début de la refusion, comme la hauteur du lingot secondaire est relativement faible, le refroidissement par la surface inférieure du lingot est relativement important ce qui explique la forme « en u » du puits liquide. Cependant, à mesure que la refusion progresse, cette part diminue et le puits liquide évolue vers une forme « en v ».

En conclusion, les profils de puits liquide obtenus dans le cas (2) sont en accord avec les profils mesurés expérimentalement. Rappelons que les marquages de puits liquide ont été effectués lors de la première moitié de la refusion, alors que la vitesse de fusion était élevée et le mouvement angulaire dû au brassage était important.

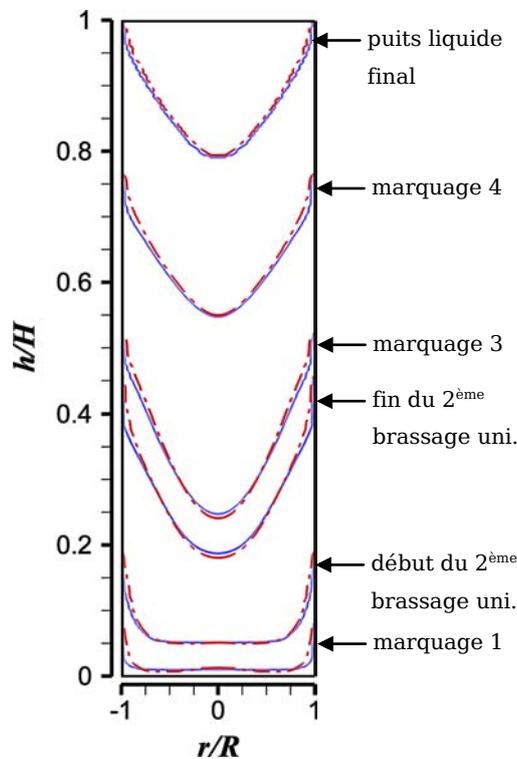


**FIGURE B.4** – Répartition du refroidissement du lingot au cours de la refusion expérimentale de l'alliage Zy-4. — : Zones de décollement et de décollement partiel. — : Zone de contact lingot-lingotière inférieure. — : Zone de contact lingot-lingotière latérale. — : Rayonnement au niveau de la surface libre.

### B.2.b Refusion expérimentale de l'alliage M5®

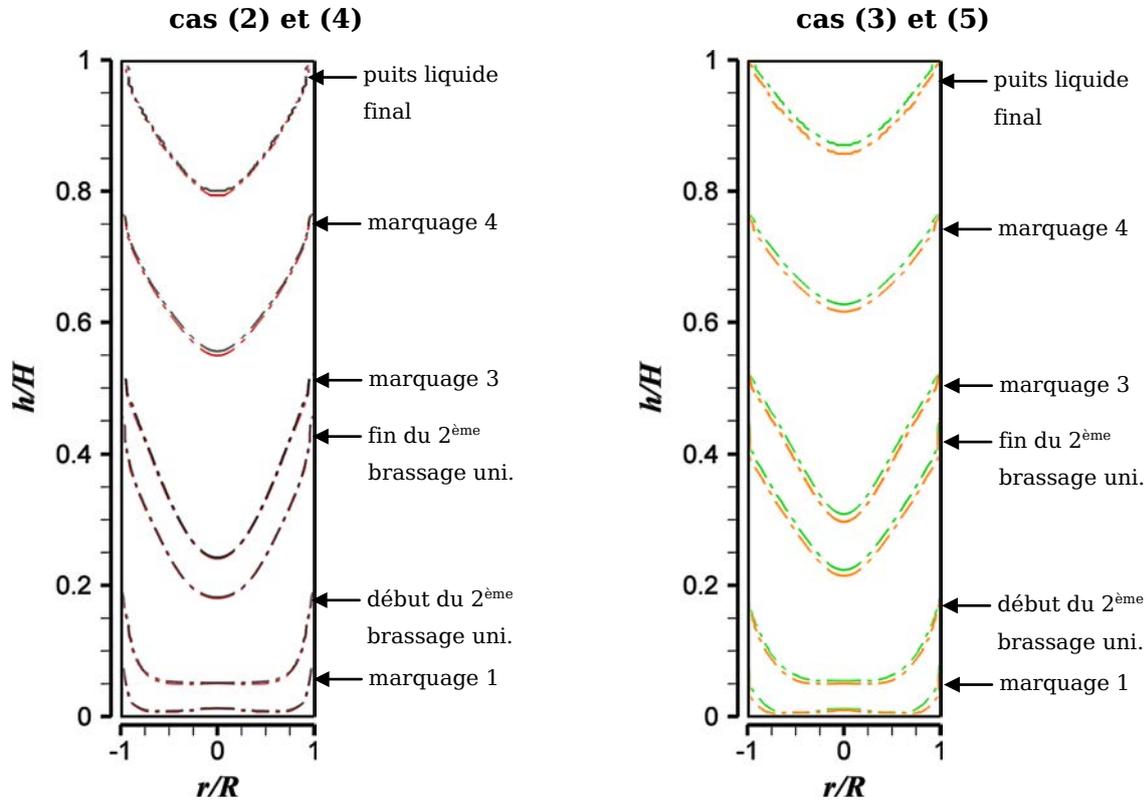
La figure B.5 représente l'évolution du puits liquide au cours de la refusion de l'alliage M5® pour les cas (1) et (2) présentés dans le tableau B.2. Comme pour la refusion de Zy-4, les profils du puits liquide indiqués par le mot « marquage » correspondent à la position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide à la moitié de l'intervalle de temps pendant lequel le brassage unidirectionnel fort a été appliqué. Cependant, comme pour cette refusion la deuxième application du brassage unidirectionnel a duré environ 40 min, nous avons représenté la position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide au début et à la fin de cet intervalle de temps.

Comme pour la refusion de Zy-4, la prédiction de l'évolution du puits liquide est identique avec les deux types de conditions aux limites thermiques associées à chaque modèle.



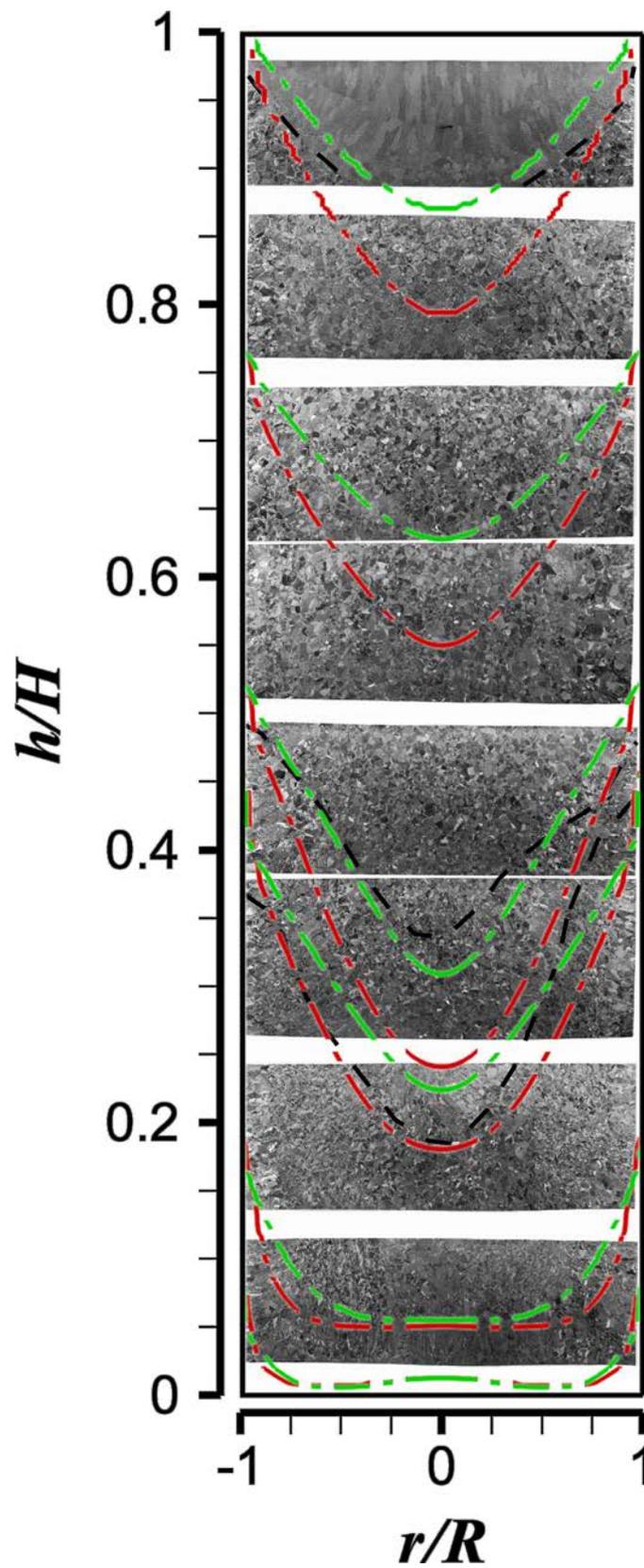
**FIGURE B.5** – Refusion de l'alliage M5® : position de l'isovaleur 0,5 de fraction liquide lors des marquages du puits liquide par l'application d'un brassage électromagnétique fort. — : Cas (1). - - - : Cas (2).

La figure B.6 permet de comparer, pour les mêmes conditions aux limites thermiques, l'influence de la température de surchauffe des gouttes de métal ( $\Delta T_c$ ) sur les profils de puits. Ces résultats montrent que ce paramètre n'a pas un rôle prépondérant dans la prédiction des profils de puits.



**FIGURE B.6** – Influence de la surchauffe des gouttes de métal provenant de la fusion de l'électrode sur l'évolution du puits liquide prédite par le modèle au cours de la refusion du M5<sup>®</sup>. *A gauche* : --- : Cas (2) et - - - : Cas (4). *A droite* : - - - : Cas (3) et - - - : Cas (5).

Dans la figure B.7, nous avons superposé sur la macrographie longitudinale du lingot M5<sup>®</sup>, les profils de puits obtenus dans les cas (2) et (3). Les profils expérimentaux sont représentés par des traits pointillés noirs. Nous rappelons que, du pied au sommet du lingot, le premier profil a été associé à la fin du 2<sup>ème</sup> brassage unidirectionnel appliqué pendant 40 min ; le second correspond au marquage 3 et le dernier, situé au sommet du lingot, indique le dernier puits liquide.



**FIGURE B.7** – Essai M5<sup>®</sup> : comparaison entre les profils de puits liquide mesurés expérimentalement et obtenu par le modèle. --- : Mesure expérimentale. --- : Cas (2). --- : Cas (3)

Le modèle prédit convenablement le profil du puits à la fin du marquage 2 en utilisant les paramètres du cas (2). Comme pour le Zy-4, ce marquage a eu lieu alors que la vitesse de fusion était élevée et le mouvement angulaire relativement important à cause du brassage unidirectionnel.

En revanche, pour le marquage 3 et le dernier puits liquide, les profils prédits par le modèle dans le cas (3) sont plus représentatifs des profils expérimentaux. La vitesse de fusion était alors faible et l'écoulement orthoradial relativement faible car le brassage était alterné et de faible intensité.

La modification des paramètres opératoires au cours de la refusion du M5<sup>®</sup> a eu lieu entre la fin du marquage 2 et le marquage 3. Malgré la prise en compte par le modèle de ce changement de conditions opératoires, la diminution importante de la profondeur du puits liquide entre ces deux instants ne peut pas être expliquée en conservant les paramètres utilisés du cas (2).

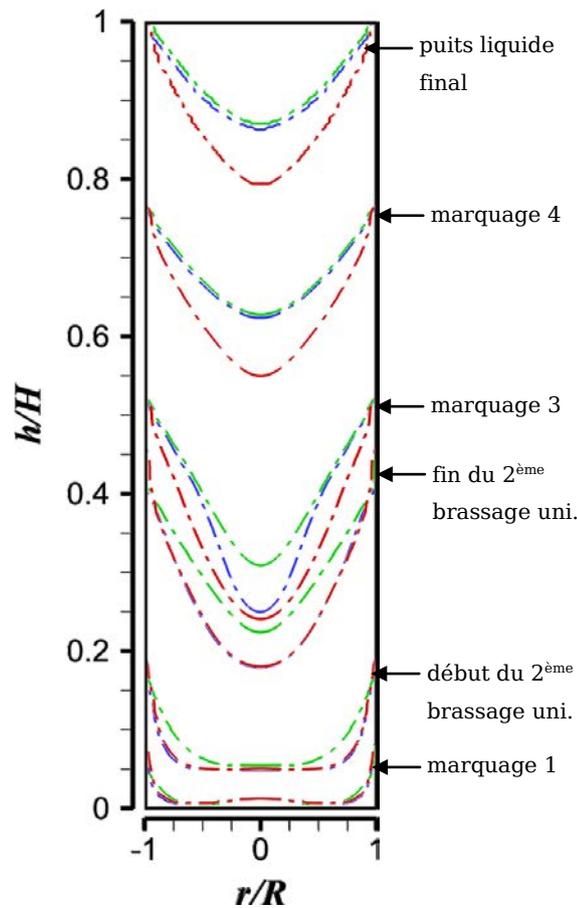
Par conséquent, la comparaison entre les profils expérimentaux et numériques obtenus pour les cas (2) et (3) suggère que la hauteur de la zone de contact entre le lingot et la lingotière dépend des conditions opératoires employées au cours de la refusion. La hauteur de la zone de contact lingot-lingotière serait plus importante pour une vitesse de fusion et un mouvement angulaire faibles que pour une vitesse de fusion élevée et un mouvement angulaire important.

Une nouvelle simulation a été réalisée (cas \*). Jusqu'à la fin du second brassage unidirectionnel (35 % de la refusion), la refusion a été simulée en appliquant les conditions aux limites correspondant au cas (2). La suite de la refusion a ensuite été simulée en utilisant les paramètres du cas (3). L'évolution du puits liquide obtenue grâce à cette simulation est représentée en bleu dans la figure B.8 ; elle est comparée à celle obtenue dans les cas (2) (en vert) et (3) (en rouge).

Dans ce cas \*, les formes de puits liquide prédites au début, respectivement à la fin, de la refusion se superposent bien aux résultats du cas (2), respectivement (3).

Cependant, bien qu'au moment du marquage 3, les paramètres  $h_{conlat}$ ,  $e_{gap}^{min}$  et  $e_{gap}^{max}$  utilisés dans le cas \* correspondent à ceux du cas (3), la forme du puits liquide prédite par le modèle est intermédiaire entre celles des cas (2) et (3). Dans la partie externe du lingot, le profil de puits se superpose à celui du cas (3). En revanche, du fait de son inertie thermique, la profondeur du puits dans la région centrale du lingot est plus élevée et se rapproche de celle du cas (2).

Le modèle ne permet pas de conclure avec certitude sur l'effet des conditions opératoires sur le contact lingot-lingotière. Le comportement thermomécanique au niveau de la zone de contact entre le lingot et la lingotière, ainsi que l'impact des conditions opératoires sur celui-ci, demande à être étudié expérimentalement de manière plus approfondie.



**FIGURE B.8** – Influence des conditions aux limites liées au transfert thermique ligot-lingotière sur l'évolution du puits liquide prédite par le modèle au cours de la refusion du M5<sup>®</sup>. --- : Cas (2). --- : Cas (3). --- : Cas (2) jusqu'à la fin de 2<sup>ème</sup> brassage unidirectionnel, puis cas (3).

### B.3 Conclusion

Pour les deux refusions expérimentales de Zy-4 et de M5<sup>®</sup>, les profils de puits liquides marqués expérimentalement par l'application momentanée d'un brassage unidirectionnel de forte intensité ont été comparés à ceux obtenus par le modèle.

Nous avons mis en évidence le rôle important des paramètres d'entrée du modèle relatifs au transfert thermique lingot-lingotière dans la prédiction de l'évolution du puits liquide. En particulier, les valeurs utilisées pour les retraits qui déterminent les limites entre la zone de contact et les zones de décollement partiel et total sont déterminantes.

Pour la refusion expérimentale du Zy-4, deux profils de puits liquide ont été mesurés expérimentalement lorsque le brassage était alterné (forte intensité et courte période). La valeur des paramètres  $h_{conlat}$ ,  $e_{gap}^{min}$  et  $e_{gap}^{max}$  définie dans le cas (2) (cf. tableau B.1) permet d'obtenir un bon accord modèle-expérience pour les profils de puits.

Pour la refusion expérimentale du M5<sup>®</sup>, les comparaisons entre les profils de puits obtenus numériquement et expérimentalement semblent montrer que les conditions opératoires du procédé, qui variaient fortement au cours de l'essai, influent significativement sur le transfert thermique entre le lingot et la lingotière. Au début de la refusion, lorsque la vitesse de fusion était relativement élevée et le brassage unidirectionnel, les profils obtenus dans le cas (2) sont les plus représentatifs des profils expérimentaux. En revanche, pendant la seconde moitié de la refusion (vitesse de fusion relativement faible et brassage alterné), le cas (3) permet d'obtenir un meilleur accord modèle expérience.

Pour cette refusion, l'effet sur la macroségrégation des conditions thermiques à la limite latérale du lingot a été étudié dans le chapitre V.

Il faut remarquer que l'utilisation d'à-coups de brassage n'a pas permis de marquer précisément le profil de puits liquide sur la macrographie longitudinale des lingots. De ce fait, la comparaison des profils mesurés expérimentalement et ceux obtenus par le modèle ne peut être qu'approximative. De plus, il est impossible de déterminer à quelle fraction liquide correspond chaque profil visible sur la macrographie.

## B.4 Bibliographie

- [1] S. Hans, Modélisation des transferts couplés de chaleur, de soluté et de quantité de mouvement lors de la refusion à l'arc sous vide (VAR) - Application aux alliages de titane, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995.
- [2] A. Jardy, F. Leclerc, M. Revil-Baudard, P. Guerin, H. Combeau, V. Rebeyrolle, Segregation in Vacuum Arc Remelted Zirconium Alloy Ingots, *Journal of ASTM International*. 7 (2010) 1–17.
- [3] T. Quatravaux, Evolution de la modélisation du procédé VAR - Contribution à la description de la dispersion inclusionnaire dans le puits liquide et à la prévention de défauts de solidification, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.
- [4] L.A. Jackman, Specialty metals processing consortium: The perspective of industrial members, *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society*. 50 (1998) 26–29.
- [5] G. Reiter, V. Maronnier, C. Sommitsch, M. Gäumann, W. Schützenhöfer, R. Schneider, Numerical Simulation of the VAR Process with calcosoft®-2D and its Validation, dans: *Proceeding in International Symposium on Liquid Metal Processing and Casting*, Nancy, 2003.
- [6] P. Chapelle, R.M. Ward, A. Jardy, V. Weber, J.P. Bellot, M. Minvielle, Lateral Boundary Conditions for Heat Transfer and Electrical Current Flow during Vacuum Arc Remelting of a Zirconium Alloy, *Metall and Materi Trans B*. 40 (2008) 254–262.
- [7] T. Quatravaux, A. Jardy, D. Ablitzer, S. Hans, Optimisation du procédé de refusion à l'arc sous vide au moyen de la modélisation mathématique, dans: *Matériaux 2002*, Tours, 2002.

## C Simulation de la refusion VAR d'un acier faiblement allié - étude de la macroségrégation

### C.1 Introduction

Le modèle décrit dans le chapitre III a été utilisé pour simuler la refusion VAR d'un acier faiblement allié. L'influence de la diffusion restreinte des solutés sur la prédiction de la macroségrégation a été déterminée. Le rôle de la convection naturelle d'origine solutale ainsi que l'influence de la volatilisation du manganèse, l'un des éléments d'alliage, ont été étudiés.

Des analyses chimiques réalisées sur deux lingots industriels issus d'essais ont permis d'interpréter les résultats du modèle. Cependant, contrairement aux essais de refusion des alliages de zirconium Zircaloy-4 et M5<sup>®</sup> (cf. chapitre III), les électrodes utilisées pour ces essais ne sont pas chimiquement homogènes.

Après avoir présenté rapidement les refusions simulées dans une première partie, nous détaillerons les propriétés thermophysiques utilisées dans notre modèle. Nous décrivons également comment la volatilisation du Mn a été prise en compte dans le modèle.

La troisième partie sera consacrée à la présentation et à la discussion des résultats.

### C.2 Présentation des refusions

Deux refusions expérimentales de l'acier 40CrMoV13-9 ont été réalisées par Aubert & Duval sur le site des Ancizes. Pour chaque refusion, le diamètre de l'électrode ainsi que les dimensions du lingot final sont donnés dans le tableau C.1. Dans la suite, les refusions sont distinguées par les chiffres 1 et 2.

**TABLEAU C.1** – Dimensions des électrodes et des lingots

	essai 1	essai 2
Diamètre de l'électrode	368 mm	368 mm
Diamètre du lingot	432 mm	432 mm
Hauteur du lingot	1,48 m	1,41 m

La composition nominale de cet acier est donnée dans le tableau C.2. Il est faiblement allié et utilisé pour des pièces pour l'industrie aéronautique devant subir des contraintes élevées.

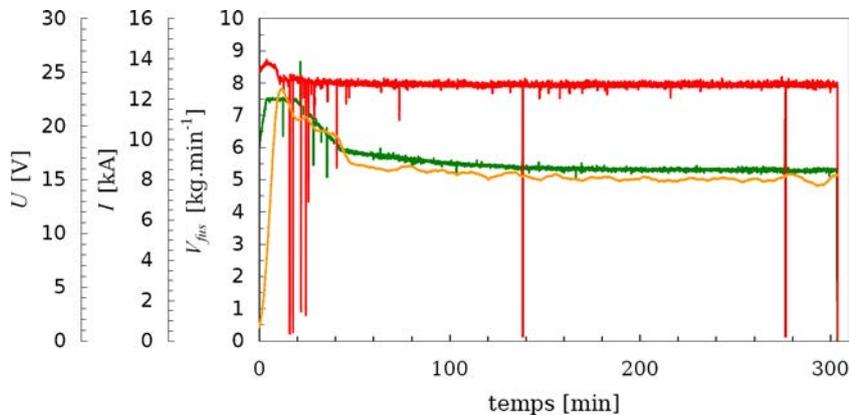
**TABLEAU C.2** – Composition nominale de l'acier 40CrMoV13-9 refondu au cours des deux essais en % massique.

<b>Fe</b>	<b>Cr</b>	<b>Ni</b>	<b>Mo</b>	<b>Si</b>	<b>Mn</b>	<b>V</b>	<b>C</b>
Base	3,25	0,23	0,9	0,2	0,75	0,21	0,38

La tension, le courant et la vitesse de fusion appliqués lors des deux essais étaient identiques et nous avons représenté, dans la figure C.1, l'enregistrement de ces conditions opératoires au cours de l'essai 1. Nous précisons que les paramètres opératoires employés étaient non-standards.

Les refusions se sont déroulées sans brassage électromagnétique et, afin d'améliorer le refroidissement, de l'hélium a été injecté à une pression d'environ 8 mbar dans l'espace annulaire créé par le retrait du lingot. Par ailleurs, les deux refusions n'incluaient pas de masselottage.

Notons que les longueurs d'arc pour les essais 1 et 2 étaient respectivement de 0,7 et 1,1 cm. Cependant, l'influence de cette longueur sur la solidification du lingot secondaire est mal connue, et le modèle ne peut pas prendre en compte directement cette différence.



**FIGURE C.1** – Enregistrement des conditions opératoires lors de l'essai 1 (— : tension  $U$  ; — : intensité  $I$  ; — : vitesse de fusion  $V_{fus}$ ).

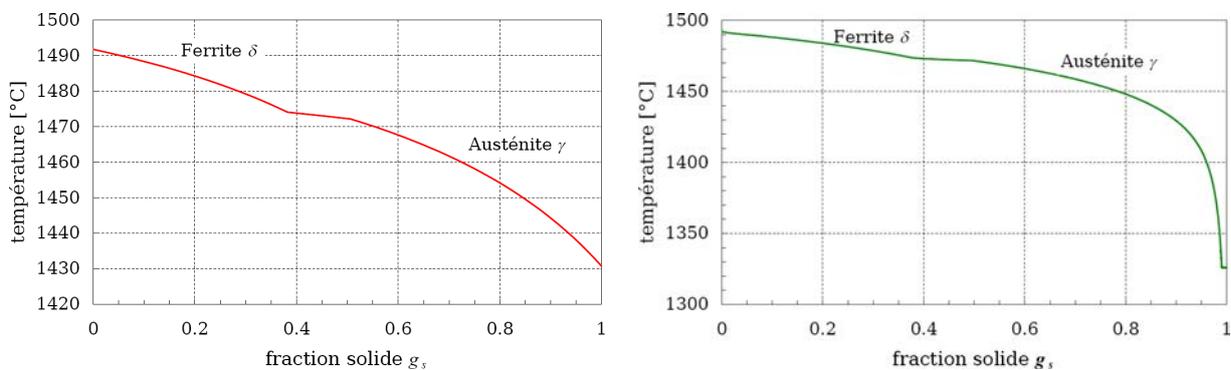
## C.3 Microségrégation et volatilisation du Mn

### C.3.a Microségrégation

Afin de modéliser la solidification de l'acier 40CrMoV13-9, le chemin de solidification de cet alliage à sa composition nominale a été calculé par Aubert & Duval suivant deux configurations grâce au code de calcul thermodynamique Thermo-Calc.

Premièrement, le chemin de solidification obtenu en supposant la diffusion parfaite de tous les solutés dans les phases liquide et solide (règle du bras de levier) est présenté dans la figure C.2 (à gauche). Deuxièmement, le chemin de solidification a été calculé en utilisant le module « Modified-Scheil » de Thermo-Calc : le modèle de Scheil est appliqué pour tous les solutés à l'exception de C pour lequel la diffusion dans les phases liquide et solide est considérée comme suffisamment rapide pour que son potentiel chimique dans chaque phase soit uniforme. Le résultat est présenté dans la figure C.2 (à droite).

La température de liquidus est de 1492 °C et la phase solide thermodynamiquement stable est la ferrite  $\delta$ . La phase austénite  $\gamma$  apparaît à environ 1474 °C. La phase  $\gamma$  est en équilibre avec le liquide jusqu'à une température de solidus de 1430 °C pour la règle du bras de levier. Si le module « Scheil-modified » est utilisé, la température de fin de solidification calculée est de 1325 °C.



**FIGURE C.2** – Chemin de solidification de l'acier 40CrMoV13-9 calculé par Thermo-Calc à sa composition nominale. À gauche : règle du bras de levier. À droite : module « modified-Scheil ».

Pour la modélisation des refusions, nous avons pris en compte les sept éléments d'alliage et considéré que la ferrite  $\delta$  était la seule phase formée au cours de la solidification. Nous n'avons donc pas pris en compte la transformation péritectique. En effet, comme la vitesse relative des phases solide et liquide diminue rapidement à mesure que la fraction solide augmente, la macroségrégation a lieu principalement aux faibles fractions solides pour lesquelles  $\delta$  est stable thermodynamiquement.

Les principales propriétés thermophysiques utilisées pour cet alliage sont regroupées dans les tableaux C.3 et C.4. Les coefficients de partage  $k_p^i$  et les pentes de liquidus  $m_L^i$  que nous avons utilisés sont issus des résultats Thermo-Calc fournis par Aubert & Duval. Les coefficients de diffusion dans les phases solide et liquide proviennent de la réf. [1].

En ce qui concerne la convection solutale, le tableau C.5 regroupe les coefficients d'expansion solutale issus de la réf. [2].

Schneider et Beckermann [1] et Combeau et al. [3] ont montré que les gradients de teneur en carbone est responsable de la plus importante force volumique due à la convection solutale parmi tous les éléments d'alliage des aciers. Cependant, contrairement à la réf. [1], les propriétés thermophysiques des références [2,3] indiquent que  $|m_L^C \beta_T| > |\beta_S^C|$ . Cela signifie que la convection solutale due au gradient de teneur en carbone domine la convection thermique.

**TABLEAU C.3** – Coefficients de partage  $k_p^i$  (Thermo-Calc), pentes de liquidus  $m_L^i$  (Thermo-Calc) et coefficients de diffusion dans les phases liquide et solide (d'après [1]) utilisés pour simuler la refusion VAR de l'acier 40CrMoV13-9.

	unité	Cr	Ni	Mo	Si	Mn	V	C
$k_p^i$		0,9	0,8	0,8	0,71	0,7	0,67	0,15
$m_L^i$	°C.%m <sup>-1</sup>	-1,7	-4,3	-2,5	-11,3	-5,32	-2,9	-87,1
$D_s^i$	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>	1,2·10 <sup>-12</sup>	1,9·10 <sup>-13</sup>	1,8·10 <sup>-13</sup>	5,6·10 <sup>-13</sup>	1,2·10 <sup>-13</sup>	1,2·10 <sup>-12</sup>	5,6·10 <sup>-10</sup>
$D_l^i$	m <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup>	2·10 <sup>-9</sup>						

**TABLEAU C.4** – Propriétés thermophysiques utilisées pour simuler la refusion VAR de l'acier 40CrMoV13-9 (fournies par Aubert & Duval)

$\mu_l$	Pa.s	4,2·10 <sup>-3</sup>
$\rho$	kg.m <sup>-3</sup>	6,94·10 <sup>3</sup>
$c_p$	J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	800
$T_m$	°C	1540
$T_{sol0}$	°C	1325
$\beta_T$	K <sup>-1</sup>	1,2·10 <sup>-4</sup>
$\lambda$	W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>	20
$\lambda_{DAS}$	m	95·10 <sup>-6</sup>
$L_f$	J.kg <sup>-1</sup>	275·10 <sup>3</sup>

**TABLEAU C.5** – Coefficients d'expansion solutale utilisés pour simuler la refusion VAR de l'acier 40CrMoV13-9 (d'après [2]).

	unité	Cr	Ni	Mo	Si	Mn	V	C
$\beta_S^i$	%m <sup>-1</sup>	9,90·10 <sup>-4</sup>	-1,42·10 <sup>-3</sup>	-1,98·10 <sup>-3</sup>	1,23·10 <sup>-2</sup>	1,98·10 <sup>-3</sup>	1·10 <sup>-2</sup>	1,4·10 <sup>-2</sup>

### C.3.b Volatilisation du manganèse

La faible pression imposée dans l'enceinte d'un four VAR (10<sup>-2</sup> à 10<sup>-3</sup> mbar) peut entraîner des pertes d'éléments d'addition importantes par volatilisation. En conséquence, la macroségrégation du lingot final peut être grandement modifiée. Lors des deux essais, Aubert & Duval a constaté des pertes importantes en manganèse dues à la volatilisation.

Dans cette section, nous présentons comment la volatilisation d'un soluté est prise en compte dans le modèle, ainsi que les données d'entrée que nous avons employées pour la simuler dans le cas de la refusion de l'acier 40CrMoV13-9.

### Prise en compte de la volatilisation du manganèse dans le modèle

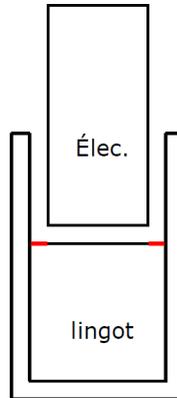
La volatilisation d'un soluté au cours de la refusion est prise en compte à travers la condition à la limite sur la surface libre du lingot.

Deux zones sont distinguées (figure C.3) :

- En face de l'électrode, nous supposons que la quantité d'éléments d'alliage qui se volatilise est intégralement réintroduite dans le lingot à cause de la chute des gouttes de métal liquide. Ainsi, le flux de volatilisation est nul.
- Sur la surface libre annulaire qui n'est pas en face de l'électrode (en rouge), la densité de flux d'évaporation de Mn,  $\varphi_v^{Mn}$  (en  $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ ), est calculé en utilisant la loi de Langmuir :

$$\varphi_v^{Mn} = \frac{f^{Mn}(1-b)M^{Fe}C_l^{Mn}}{\rho_{ref}} \frac{\bar{P}_v^{Mn}}{\sqrt{2\pi M^{Mn}RT_{surf}}} \quad (\text{C.1})$$

où  $f^{Mn}$  est le coefficient d'activité de Mn dans le métal liquide,  $b$  est un coefficient de recondensation,  $M^i$  est la masse molaire de l'élément  $i$  (en  $\text{kg.mol}^{-1}$ ),  $C_l^{Mn}$  est la concentration massique en Mn dans le liquide (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $\rho_{ref}$  est la masse volumique de référence (en  $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $\bar{P}_v^{Mn}$  est la pression de vapeur saturante de Mn (en Pa),  $R$  est la constante des gaz parfaits et  $T_{surf}$  est la température du métal liquide à la surface libre.



**FIGURE C.3** – Schéma de la surface libre annulaire (en rouge) où le flux d'évaporation est non nul dans le modèle

Dans notre modèle, le produit du coefficient d'activité  $f^{Mn}$  par  $(1-b)$  est un paramètre inconnu que nous avons fait varier (cf. §C.4.c). La pression de vapeur saturante de Mn est calculée en fonction de la température grâce à la loi de Dupré suivante, provenant de [4] :

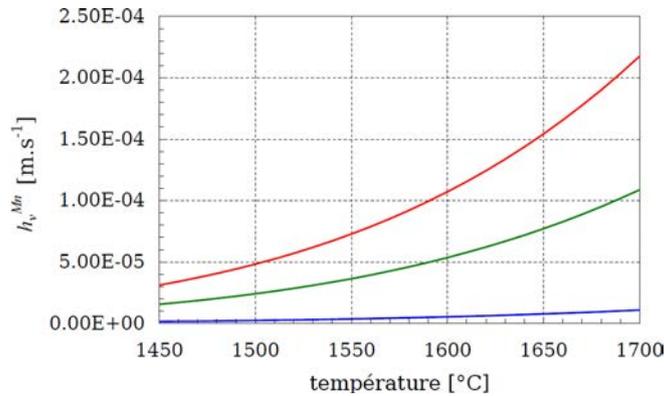
$$\begin{aligned} \log \bar{P}_v^{Mn} &= -\frac{13900}{T} + 17,27 - 2,52 \log T \quad \text{avec } \bar{P}_v^{Mn} \text{ en mmHg} \\ \text{soit } \log \bar{P}_v^{Mn*} &= -\frac{13900}{T} + 19,39 - 2,52 \log T \quad \text{avec } \bar{P}_v^{Mn*} \text{ en Pa} \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

Dans la figure C.4, nous avons tracé le coefficient de volatilisation  $h_v^{Mn}$  défini par :

$$h_v^{Mn} = \frac{f^{Mn}(1-b)M^{Fe}}{\rho_{ref}} \frac{\bar{P}_v^{Mn}}{\sqrt{2\pi M^{Mn} RT_{surf}}} \quad (C.3)$$

en fonction de la température pour  $f^{Mn}(1-b) = 0,01 ; 0,1 ; 0,2$ .

C'est une fonction croissante de la température, par conséquent le flux de volatilisation est d'autant plus important que la température à la surface libre du puits liquide est élevée quelle que soit la valeur de  $f^{Mn}(1-b)$ .



**FIGURE C.4** – Coefficient de volatilisation  $h_v^{Mn}$  en fonction de la température de la surface libre. — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,01$ . — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,1$ . — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$ .

## C.4 Résultats et discussion

Les essais 1 et 2 présentés dans §C.2 ont été simulés. Les enregistrements des paramètres opératoires de chaque refusion ont été utilisés comme données d'entrée du modèle et la modélisation du transfert thermique latéral tient compte de la présence d'hélium dans la zone de retrait [5]. De plus, nous avons supposé que la phase solide était fixe (absence de mouvement de grains équiaxes).

La taille moyenne des volumes de contrôle était  $\Delta r = 7$  mm  $\Delta z = 5$  mm et le pas de temps employé était de  $0,15$  s lorsque la règle des bras de levier était employée, et de  $0,05$  s lorsque nous avons pris en compte la diffusion restreinte des solutés dans la modélisation.

### C.4.a Influence de la diffusion restreinte

Les coefficients de diffusion dans la phase solide regroupés dans le tableau C.3 indiquent que mis à part pour le carbone, l'utilisation de la règle du bras de levier pour modéliser la microségrégation au cours de la refusion de l'acier 40CrMoV13-9 peut être remise en cause.

Ce paragraphe a donc pour objectif de déterminer si la prise en compte de la diffusion restreinte des éléments dans les phases solide et liquide influence la macroségrégation prédite dans le lingot final.

L'essai 1 a été simulé en utilisant le règle du bras de levier d'une part, et le modèle cinétique de croissance avec une densité de germes  $N_0 = 10^{10} \text{ m}^{-3}$  ( $R_g = 288 \text{ }\mu\text{m}$ ) d'autre part (cf. chapitre III, §III.3). Nous avons tenu compte de la convection solutale et supposé que la phase solide était fixe dans tout le lingot.

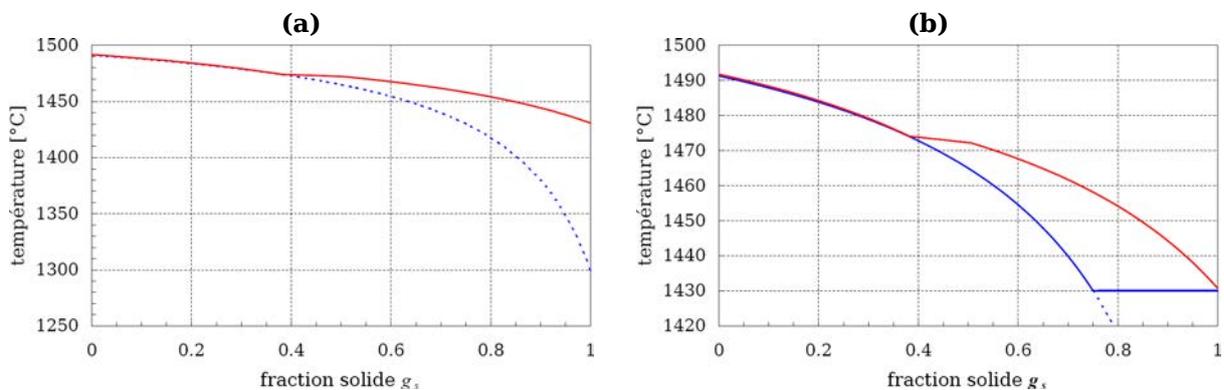
Par ailleurs, en appliquant la règle des bras de levier et grâce aux coefficients de partage et aux pentes de liquidus du tableau C.3, nous avons calculé le chemin de solidification de l'acier à sa composition nominale en utilisant la relation suivante avec  $T_m = 1540^\circ\text{C}$  :

$$T = T_m + \sum_i \frac{m_l^i \omega_0^i}{(1 - k^i)g_l + k^i} \quad (\text{C.4})$$

Rappelons que dans le modèle, la relation (C.4) permet de calculer à chaque pas de temps et pour la composition moyenne locale, les nouvelles fractions liquide et solide ainsi que les nouvelles compositions des phases liquide et solide au cours de la solidification primaire (cf. chapitre III).

Ainsi, nous avons comparé dans la figure C.5.a le chemin de solidification calculé par Thermo-Calc (rouge) (cf. §C.3.a) et celui obtenu par la méthode décrite précédemment (pointillés bleus). Nous constatons que la relation (C.4) sous estime de manière importante la température de solidus. En effet, la transformation de phase  $\delta \rightarrow \gamma$  n'est pas prise en compte dans notre modélisation.

Par conséquent, nous avons imposé, dans le cas où nous appliquons la règle du bras de levier, une température de fin de solidification  $T_{sol0} = 1430 \text{ }^\circ\text{C}$  afin de ne pas surestimer l'intervalle de solidification à l'équilibre thermodynamique (figure C.5.b en bleu).

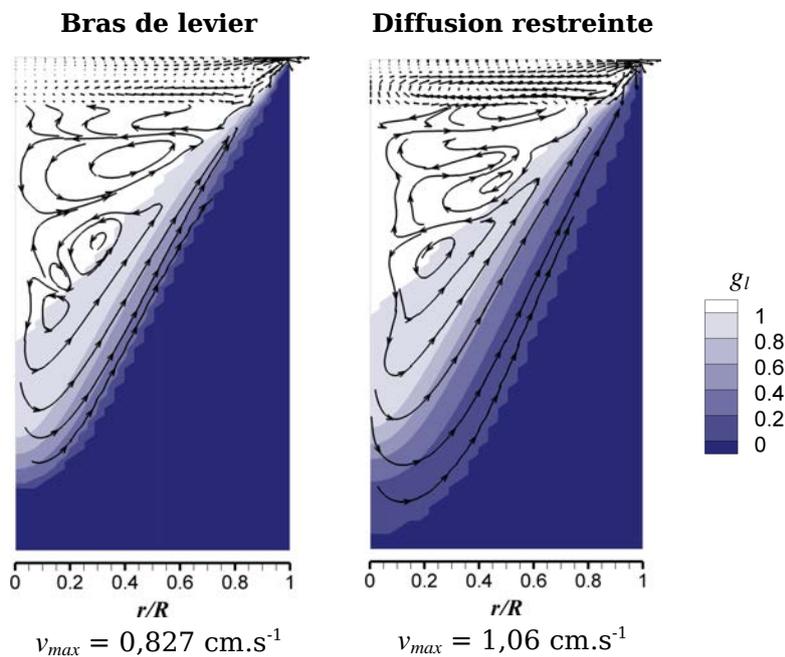


**FIGURE C.5** – Chemins de solidification de l'acier 40CrMoV13-9 à sa composition nominale. — : Thermo-Calc. - - - : Relation (C.4) et tableau C.3 sans température de fin de solidification  $T_{sol0}$ . — : Relation (C.4) et tableau C.3 avec  $T_{sol0} = 1430 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Pour chaque simulation, la carte de fraction liquide et l'écoulement à  $t = 11717$  s ( $\approx 195$  min) font l'objet de la figure C.6.

Par rapport à la règle du bras de levier, la prise en compte de la diffusion restreinte engendre un élargissement de la zone pâteuse au niveau des faibles fractions liquides ( $g_l \leq 0,2$ ). Ainsi, comme nous l'avons montré pour les alliages Zy-4 et M5® (cf. chapitres IV et V), la prise en compte de la diffusion restreinte retarde la fin de solidification prédite.

Dans les deux cas, l'écoulement dans le puits liquide est composé de plusieurs boucles de recirculation, résultant de la compétition entre les forces de volume thermique et les forces électromagnétiques auto-induites causées par le passage du courant. Rappelons qu'aucun brassage n'a été appliqué au cours de la refusion. L'écoulement dans le bain métallique est sensiblement modifié par la prise en compte de la diffusion restreinte du fait de son effet sur la répartition des fractions liquides. En revanche, dans la zone pâteuse, la convection solutale prédomine dans les deux cas (cf. §C.4.b).

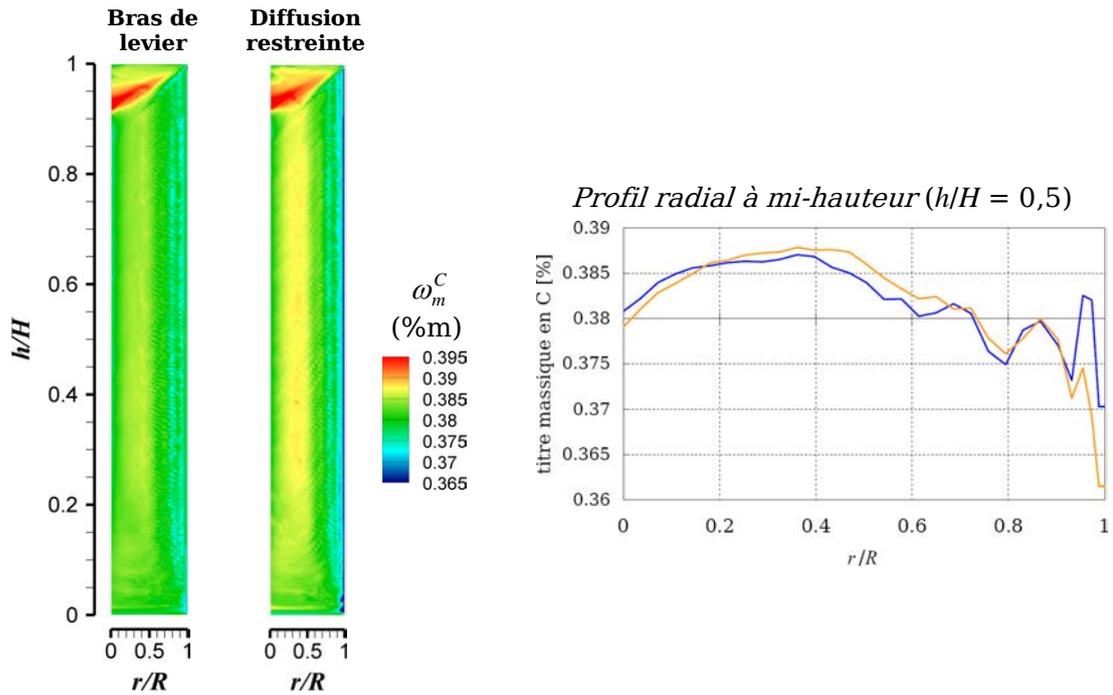


**FIGURE C.6** – Simulation de l'essai 1 : écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t = 11717$  s. L'écoulement est représenté par des vecteurs lorsque les vitesses sont relativement importantes et par des lignes de courant lorsque les vitesses sont relativement faibles.

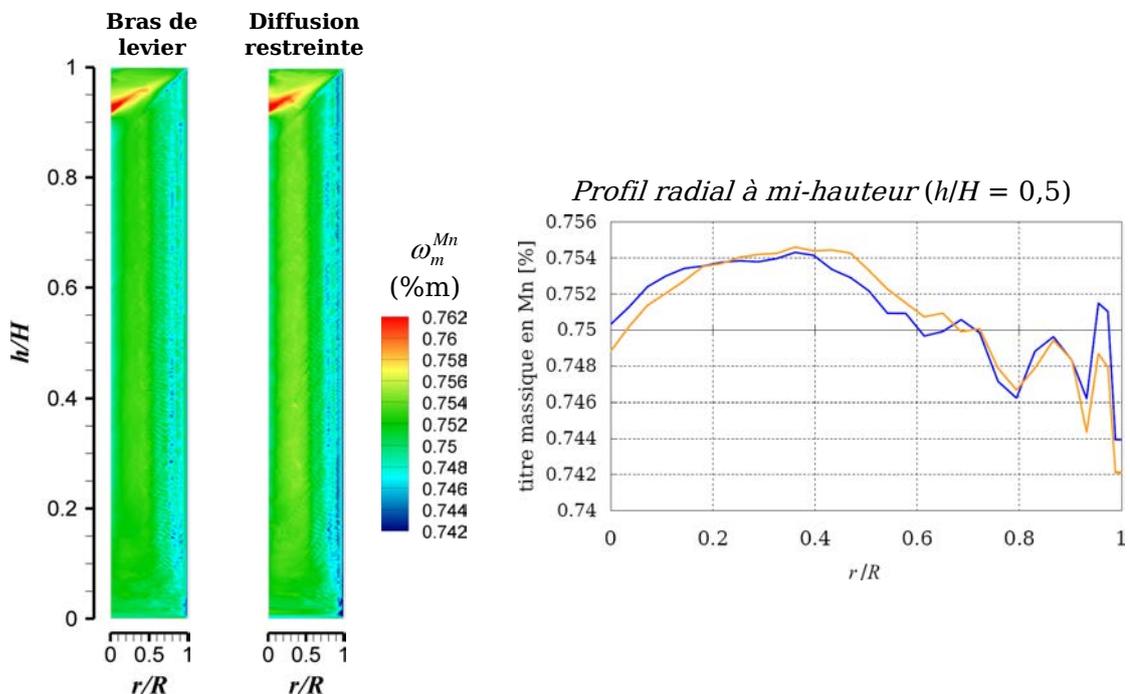
Les cartes de teneur massique en C et Mn dans le lingot final obtenues pour chaque cas sont comparées dans les figures C.7 et C.8. De plus, la macroségrégation radiale à mi-hauteur a été tracée.

La macroségrégation globale du lingot n'est que peu impactée par la prise en compte de la diffusion restreinte, que l'élément d'alliage ait un coefficient de diffusion dans la phase solide relativement élevé, comme pour le carbone ( $D_s^C = 5,6 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ), ou relativement faible, comme pour le manganèse ( $D_s^{Mn} = 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ).

Par conséquent, pour les simulations suivantes, nous avons simplement utilisé la règle du bras de levier pour modéliser la macroségrégation.



**FIGURE C.7** – Simulation de l’essai 1 : influence de la diffusion restreinte des solutés sur la macroségrégation en C prédite dans le lingot final. A gauche : carte de teneur massique en C. A droite : profil radial de ségrégation à mi-hauteur — : bras de levier et — : diffusion restreinte.



**FIGURE C.8** – Simulation de l’essai 1 : influence de la diffusion restreinte des solutés sur la macroségrégation en C dans le lingot final. A gauche : carte de teneur massique en C. A droite : profil radial de ségrégation à mi-hauteur — : bras de levier et — : diffusion restreinte.

### C.4.b Influence de la convection naturelle d'origine solutale

Afin d'étudier l'influence de la convection solutale, les essais 1 et 2 ont été simulés soit en tenant compte uniquement de la convection thermique, soit en associant les convections thermique et solutale. Les trois cas simulés sont résumés dans le tableau C.6. La règle du bras de levier est utilisée pour modéliser la macroségrégation.

**TABLEAU C.6** – Présentation des trois cas étudiés

cas		a	b	c
		essai 1		essai 2
$\beta_T$	$K^{-1}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$
$\beta_S^i$	$(\%m)^{-1}$	0	$1,4 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$
$i_{seg}$	%	1,69	1,02	1,05

Un indice de macroségrégation  $i_{seg}$  représentant l'intensité globale de la macroségrégation dans le lingot final a été calculé par :

$$i_{seg} = \frac{\iiint |\omega^C - \omega_m^C| dV}{\iiint \omega^C dV} \quad \text{avec} \quad \omega_m^C = \frac{\iiint \omega^C dV}{\iiint dV} \quad (C.5)$$

où  $\omega^C$  est le titre massique en carbone et  $\omega_m^C$  est le titre massique moyen en carbone dans le lingot.

Les indices  $i_{seg}$  calculés pour chaque cas (cf. tableau C.6) montrent que l'intensité de la macroségrégation diminue significativement lorsque la convection solutale est prise en compte.

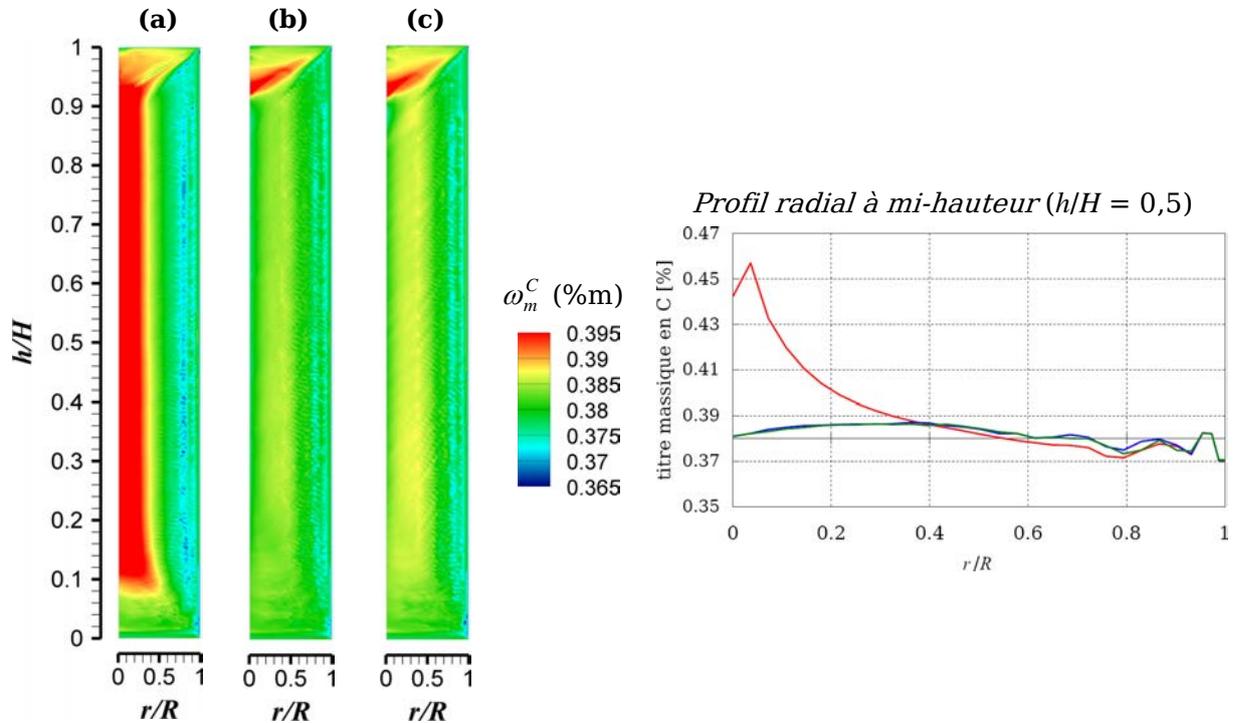
Les cartes de composition en carbone du lingot final ainsi que les profils radiaux à  $h/H = 0,5$  sont représentées dans la figure C.9 pour les cas (a), (b) et (c).

La comparaison des cartes obtenues pour les cas (a) et (b) (essai 1) montre l'influence de la convection solutale sur la macroségrégation. Les différences de composition entre ces deux cas sont particulièrement importantes au centre du lingot.

Sans convection solutale – cas (a), la teneur en C dans la zone centrale du lingot est d'environ 0,45 %m. Le titre massique diminue suivant le rayon et se rapproche de la teneur nominale (0,38 %m) dans la périphérie.

En tenant compte de la convection solutale – cas (b), la teneur en C dans le lingot est beaucoup plus homogène, comme l'indiquait l'indice de macroségrégation (cf. tableau C.6). Mis à part la ségrégation positive due à la solidification du dernier puits liquide en l'absence de masselottage, le titre massique dans le lingot final est compris entre 0,37 %m et 0,39 %m, soit la teneur nominale  $\pm 2,6$  %.

Notons que les macroségrégations prédites par le modèle pour les essais 1 et 2 sont très semblables – cas (b) et (c) – puisque les vitesses de fusion, courants de fusion et tensions d’arc sont proches et que les conditions aux limites appliquées sont identiques bien que les longueurs d’arc étaient légèrement différentes.



**FIGURE C.9** – Influence de la convection solutale sur la macroségrégation en C (carte de titre massique dans le lingot final et profil radial à mi-hauteur). (a) et — : Essai 1 sans convection solutale. (b) et — : Essai 1 avec convection solutale. (c) et — : Essai 2 avec convection solutale (cf. tableau C.5).

Pour les cas (a) et (b) (essai 1), l’écoulement dans le puits liquide et la zone pâteuse au temps  $t = 11717$  s (figure C.10) est représenté dans la figure C.11.

Dans le liquide, l’écoulement est analogue dans les deux cas ; comme aucun brassage électromagnétique n’est appliqué, il est le résultat d’une compétition entre la convection thermique et les forces électromagnétiques auto-induites.

En revanche, les lignes de courants représentées dans la zone pâteuse montrent un écoulement totalement différent entre les deux cas.

Dans le cas (a), la convection thermique engendre un écoulement descendant, à l’origine de la forte ségrégation positive au centre du lingot car le coefficient de partage du carbone est inférieur à 1.

Dans le cas (b), la convection solutale est prédominante et engendre un écoulement ascendant dans la zone pâteuse. La force de volume d’origine solutale est dominée par la concentration locale en C. La teneur en carbone dans la phase liquide augmente avec la fraction solide. Par conséquent, la masse volumique du métal liquide diminue à mesure que la fraction solide augmente ce qui conduit une ascension du liquide plus chargé en soluté.

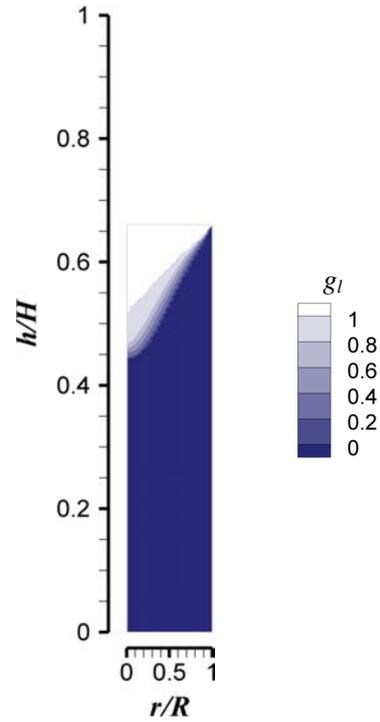


FIGURE C.10 – État du lingot refondu à l'instant  $t = 11717$  s lors de l'essai 1 (cas (b))

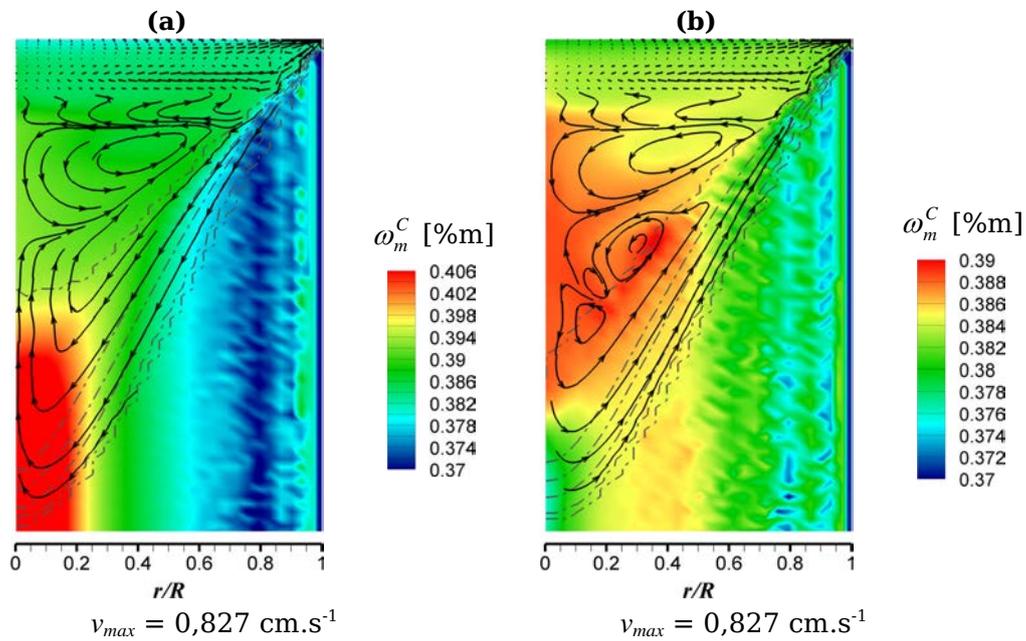
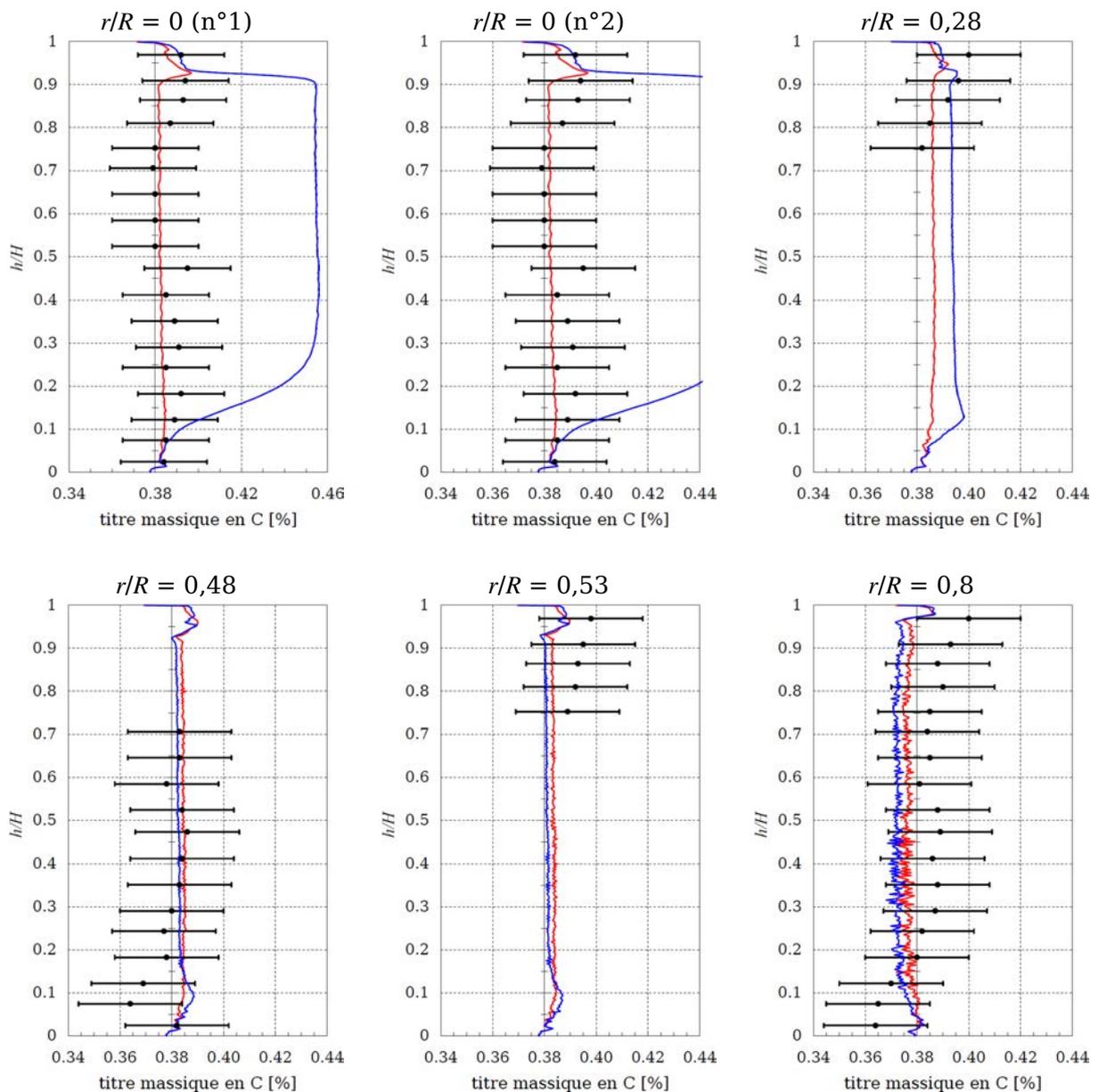
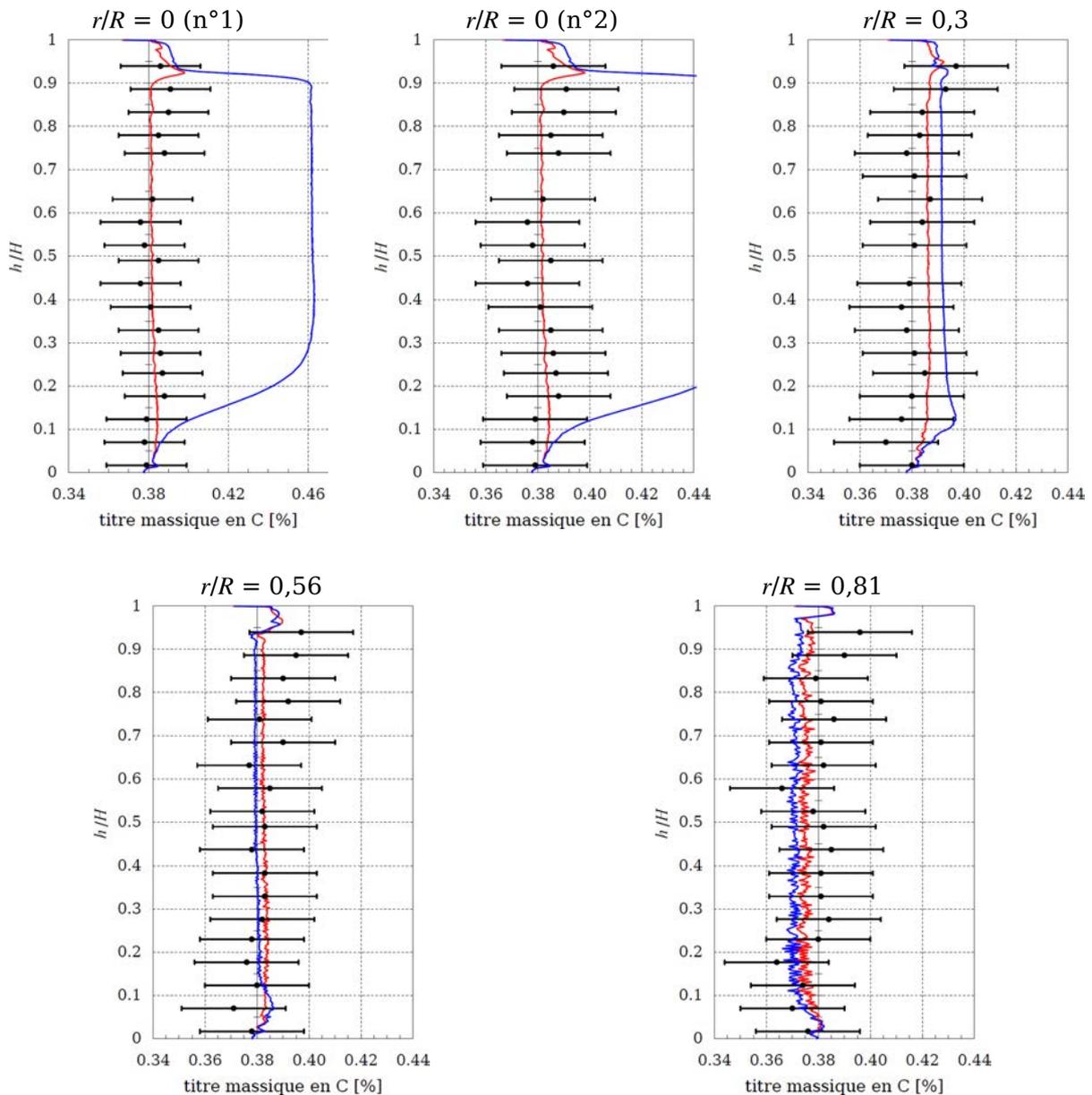


FIGURE C.11 – Simulation de l'essai 1 : écoulement et titre massique moyen en carbone  $\omega_m^C$  dans le puits liquide et la zone pâteuse à  $t = 11717$  s. (a) : sans convection solutale et (b) : avec convection solutale (cf. tableau C.5). L'écoulement est représenté par des vecteurs lorsque les vitesses sont relativement grandes et par des lignes de courant lorsque les vitesses sont relativement faibles.

Nous avons représenté dans les figures C.12 et C.13, les profils longitudinaux de macroségrégation en carbone à plusieurs rayons pour les essais 1 et 2. Les profils obtenus par le modèle ont été tracés dans les cas sans (en bleu) et avec (en rouge) convection solutale. Des analyses chimiques réalisées par Aubert & Duval pour chaque lingot sont également représentées (•).



**FIGURE C.12** – Essai 1 : influence de la convection solutale sur les profils longitudinaux de macroségrégation en C. — : Sans convection solutale – cas (a). — : Avec convection solutale – cas (b). • : Mesures expérimentales. Les profils à  $r/R = 0$  ont été représentés selon deux échelles de titre massique en C.



**FIGURE C.13** – Essai 2 : influence de la convection solutale sur les profils longitudinaux de macroségrégation en C. — : Sans convection solutale. — : Avec convection solutale – cas (c). • : Mesures expérimentales. Les profils à  $r/R = 0$  ont été représentés selon deux échelles de titre massique en C.

Comme nous l'avons montré précédemment, la teneur en C calculée au centre du lingot ( $r/R \approx 0$ ) est fortement influencée par la prise en compte de la convection solutale. En comparant les résultats du modèle aux mesures expérimentales, nous pouvons conclure que la convection solutale joue un rôle prépondérant dans la macroségrégation de la région centrale du lingot. En effet, si seules les forces de volume liées à la convection thermique étaient à l'origine de l'écoulement dans la zone pâteuse, les titres massiques en C dans cette région seraient très supérieurs à ceux mesurés expérimentalement.

Néanmoins, pour les deux essais, les simulations réalisées ne permettent pas d'interpréter les variations longitudinales de composition observées expérimentalement. Une des raisons possibles est que nous avons considéré les électrodes homogènes chimiquement, à la composition nominale de l'alliage. Or, les électrodes utilisées au cours de ces essais ont été coulées en lingotière avant d'être refondues. Au cours de leur solidification en lingotière, des inhomogénéités chimiques importantes à l'échelle macroscopique ont pu se développer [3] et, par conséquent, la macroségrégation observée dans les lingots VAR finaux peut être influencée par ces variations de composition.

#### C.4.c Influence de la volatilisation du manganèse

Afin d'établir le rôle de la volatilisation du manganèse sur la macroségrégation finale d'un lingot en acier 40CrMoV13-9, nous avons réalisé une étude paramétrique de l'influence du coefficient  $f^{Mn}(1-b)$  qui intervient dans l'expression du flux de volatilisation (cf. §C.3.b).

L'essai 1 a été simulé en le faisant varier de 0 (i. e. absence de volatilisation) à 0,2, comme indiqué dans le tableau C.7. Pour les quatre cas étudiés, les profils longitudinaux de macroségrégation en Mn à différents rayons ainsi que les analyses chimiques sont représentés dans la figure C.14. Rappelons que dans nos simulations, nous avons supposé une électrode homogène dont la teneur en Mn est à la composition nominale, soit 0,75 % massique.

**TABLEAU C.7** – Présentation des quatre cas étudiés

cas	<b>a</b>	<b>b</b>	<b>c</b>	<b>d</b>
$f^{Mn}(1-b)$	0	0,01	0,1	0,2

L'augmentation du paramètre  $f^{Mn}(1-b)$  engendre un flux de volatilisation plus important tout au long de la refusion. Ainsi, la teneur moyenne en Mn dans le lingot final diminue des cas (a) à (d) (comme le montre la figure C.14).

Les analyses chimiques effectuées sur le lingot montrent que sa teneur moyenne en Mn est inférieure à la composition nominale de l'acier 40CrMoV13-9 de manière significative. Parmi les simulations, cette teneur moyenne mesurée est approchée par le cas (d), soit  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$ .

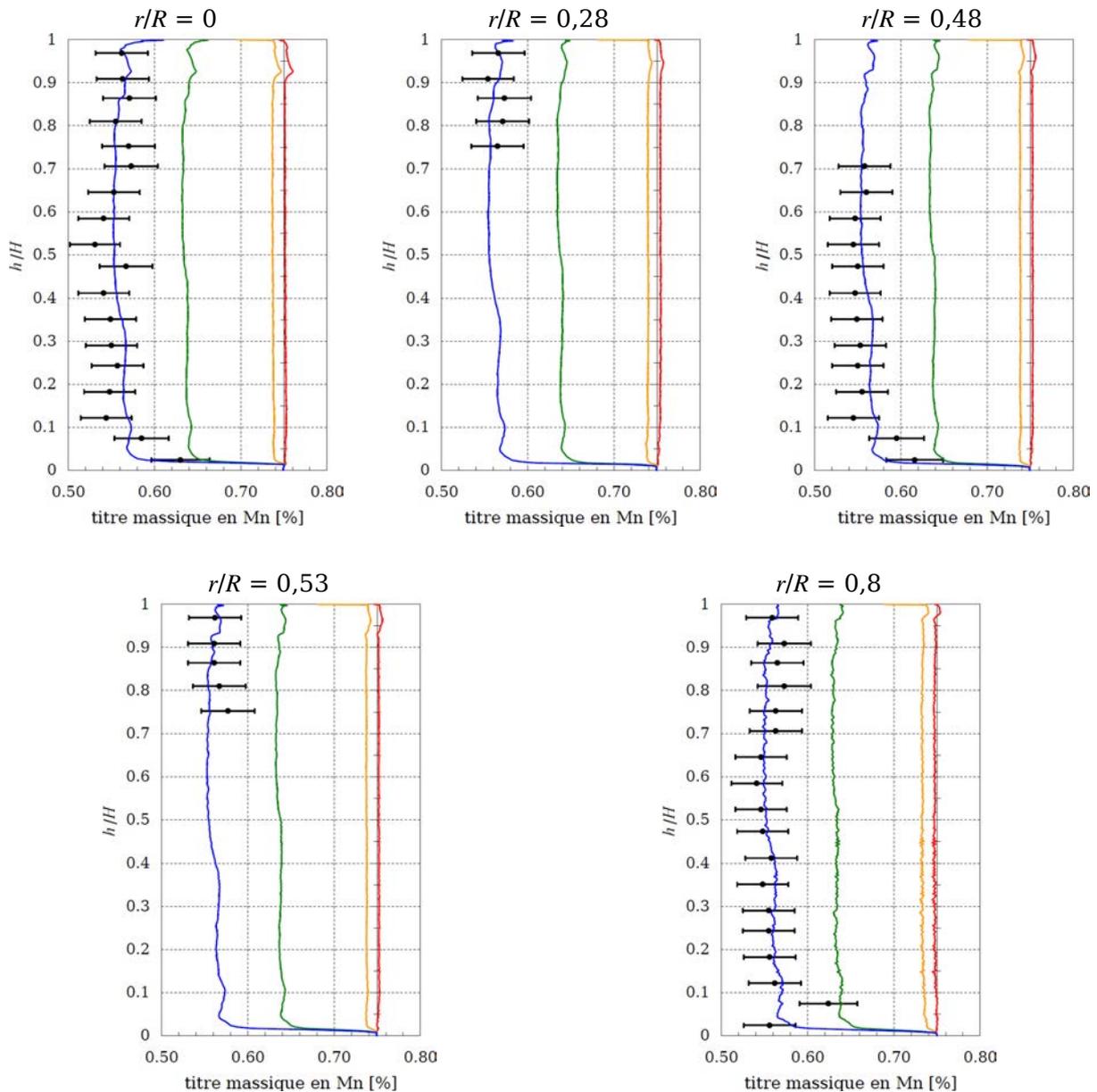
Afin de comparer plus clairement la macroségrégation prédite par le modèle aux analyses chimiques, nous avons tracé dans les figures C.15 et C.16, les profils longitudinaux à différents rayons obtenus avec  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$  pour les essais 1 et 2 respectivement.

Les profils obtenus par le modèle décroissent rapidement au niveau du pied du lingot car au début de la refusion, la vitesse de fusion est faible et le flux de volatilisation est relativement important. Cette forte diminution est également visible sur les mesures expérimentales pour les essais 1 ( $r/R = 0 ; 0,48$ ) et 2 ( $r/R = 0 ; 0,3 ; 0,56 ; 0,81$ ).

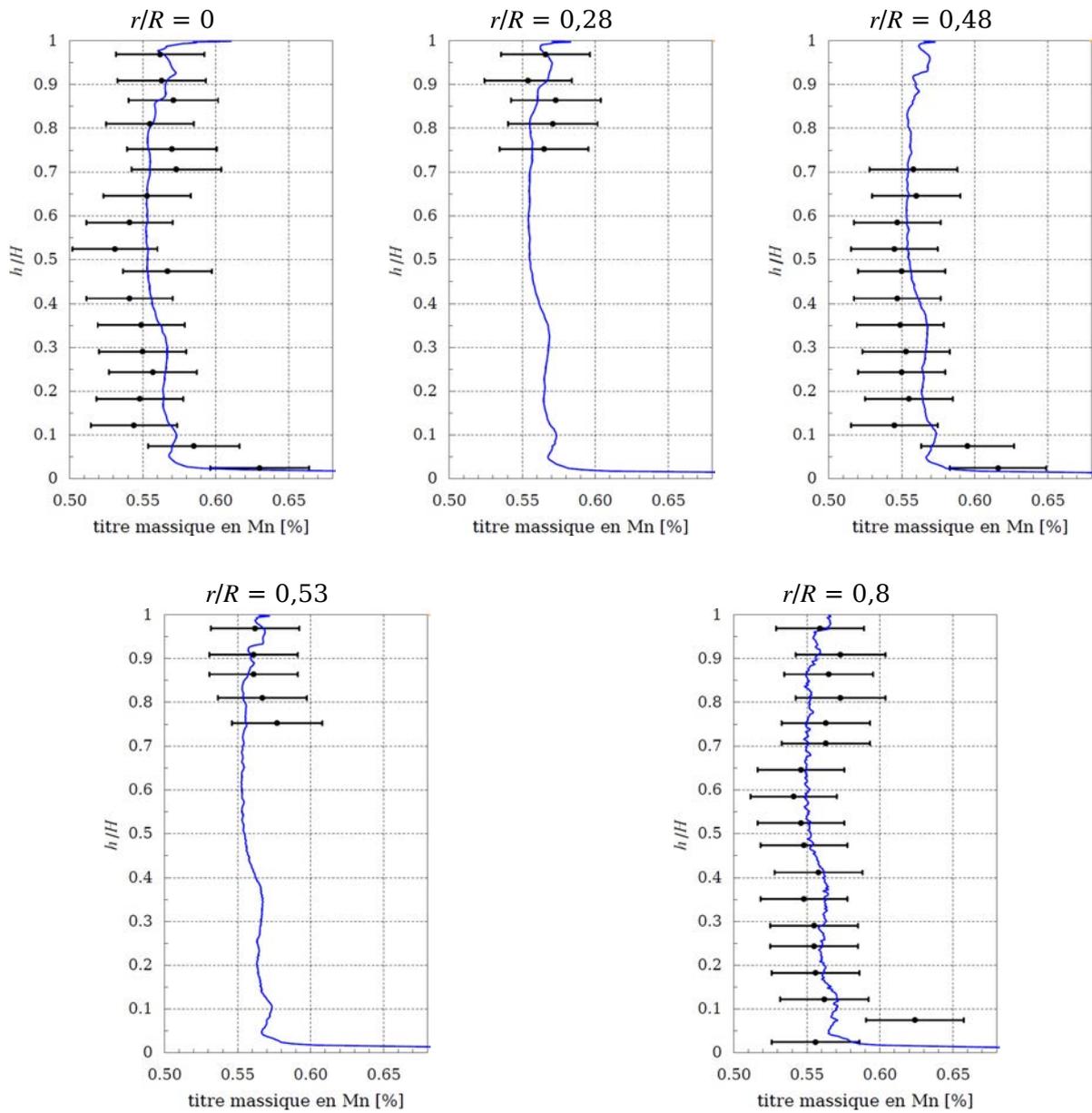
Ensuite, la vitesse de fusion augmente, puis se stabilise à environ  $5 \text{ kg}\cdot\text{min}^{-1}$  (cf. figure C.1). Un équilibre s'instaure entre l'apport de Mn dans le lingot causé par la fusion de l'électrode, et la perte de Mn due à sa volatilisation. Ainsi, le titre massique moyen en Mn dans le lingot se stabilise.

Comparativement à la diminution du titre massique dans le pied du lingot, les variations longitudinales constatées expérimentalement sont de faible amplitude. Elles sont complexes à interpréter en lien avec les résultats du modèle étant donné que, comme pour le carbone (cf. §C.4.b), la macroségrégation en Mn de l'électrode n'est pas connue et que nous avons considéré dans nos simulations une électrode homogène chimiquement.

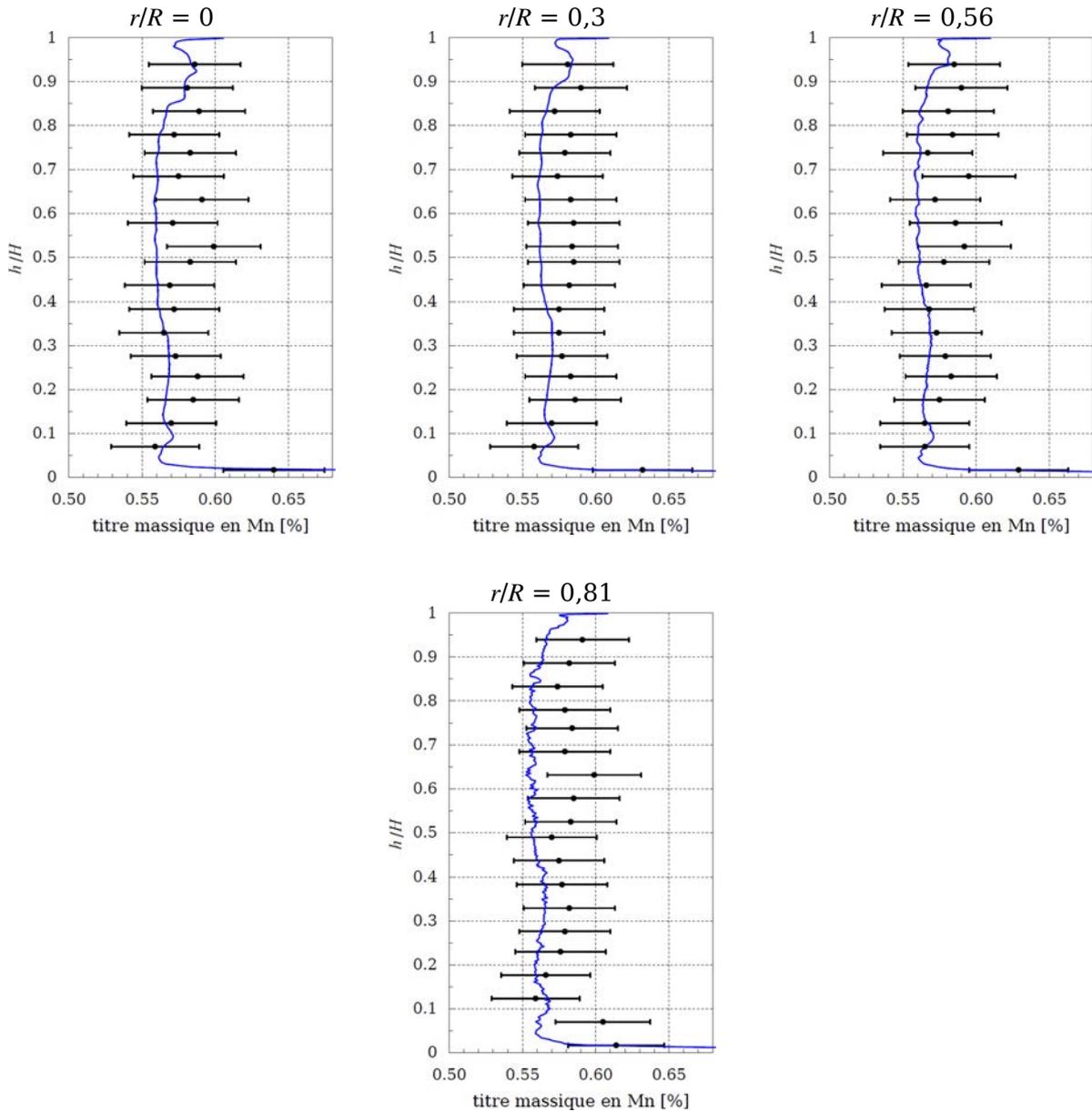
Notons également que les titres massiques en Mn mesurés dans le lingot 2 sont légèrement supérieurs à ceux du lingot 1. Un titre massique moyen supérieur dans l'électrode utilisé pour l'essai 2 et/ou un flux de volatilisation plus faible au cours de la refusion 2 pourraient expliquer cet écart.



**FIGURE C.14** – Essai 1 : influence de la volatilisation sur les profils longitudinaux de macroségrégation en Mn. — :  $f^{Mn}(1-b) = 0$ . — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,01$ . — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,1$ . — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$ . • : Mesures expérimentales.



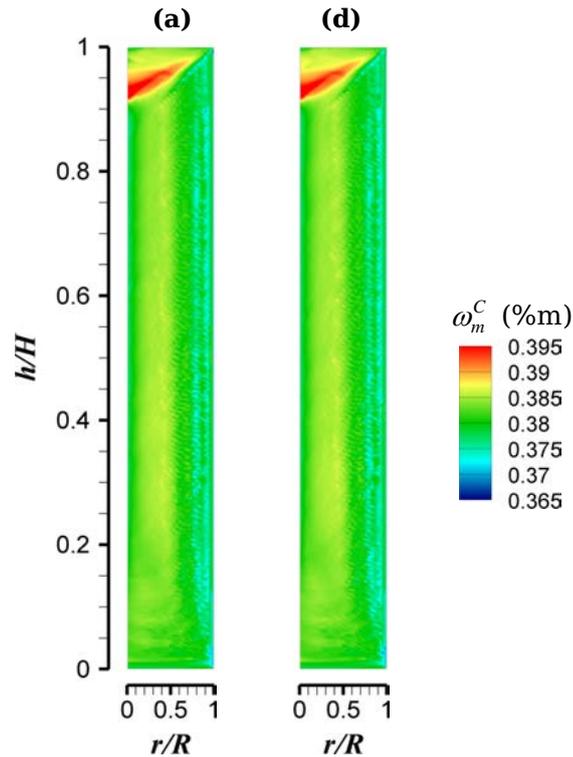
**FIGURE C.15** – Essai 1 : influence de la volatilisation sur les profils longitudinaux de macro-ségrégation en Mn. — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$  - cas (d). • : Mesures expérimentales.



**FIGURE C.16** – Essai 2 : influence de la volatilisation sur les profils longitudinaux de macroségrégation en Mn. — :  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$  – cas (d). • : Mesures expérimentales.

Afin d'identifier l'effet de la volatilisation de Mn sur la macroségrégation en C, les cartes de teneur massique en C obtenues dans les cas (a) et (d) sont représentés dans la figure C.17.

Nous pouvons en déduire que la perte de manganèse au cours de la refusion n'a pas d'effet significatif sur la macroségrégation en carbone.



**FIGURE C.17** – Simulation de l'essai 1 : influence de la volatilisation du Mn sur la macroségrégation en C. cas (a) :  $f^{Mn}(1-b) = 0$  et cas (d) :  $f^{Mn}(1-b) = 0,2$ .

Dans les figures C.19, C.21 et C.23, nous avons représenté, à trois instants de la refusion 1 ( $t = 5360$  s ;  $7149$  s ;  $11717$  s – voir figures C.18, C.20 et C.22 respectivement), l'écoulement et la teneur moyenne en Mn.

A l'instant  $t = 5360$  s de la refusion, la figure C.19 montre que la répartition du manganèse dans le puits liquide est très hétérogène. Une épaisseur de quelques centimètres de métal liquide, située au sommet du lingot, est très chargée en Mn. Le reste du puits liquide est cependant fortement appauvri car le métal liquide entraîné par l'écoulement le long du front de solidification provient de la zone périphérique de la surface libre où les pertes de Mn par volatilisation sont importantes.

Entre  $t = 5360$  s et  $t = 7149$  s, nous constatons une homogénéisation chimique du liquide grâce à une modification de l'écoulement entre ces deux instants qui a probablement entraîné le long du front de solidification du liquide riche en Mn provenant de la zone centrale de la surface libre.

Cependant, à  $t = 11717$  s, l'appauvrissement en Mn au niveau du front de solidification s'est encore accentué.

Par conséquent, nous pouvons conclure que la volatilisation cause un appauvrissement global en Mn dans le lingot car l'écoulement causé par la convection thermosolutale et les forces électromagnétiques auto-induites n'homogénéisent pas suffisamment le titre en Mn dans le puits liquide. Dans la suite, nous avons modifié les conditions opératoires des refusions utilisées par le modèle, dans le but de limiter l'effet de la perte de Mn due à la volatilisation. Grâce au modèle, nous avons pu étudier les effets de cette modification sur la macroségrégation en Mn et en C.

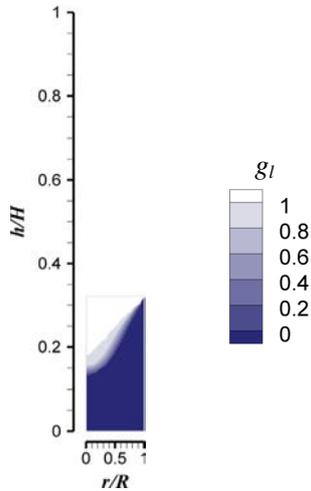


FIGURE C.18 – Simulation de l'essai 1 : état du lingot refondu à  $t = 5360$  s.

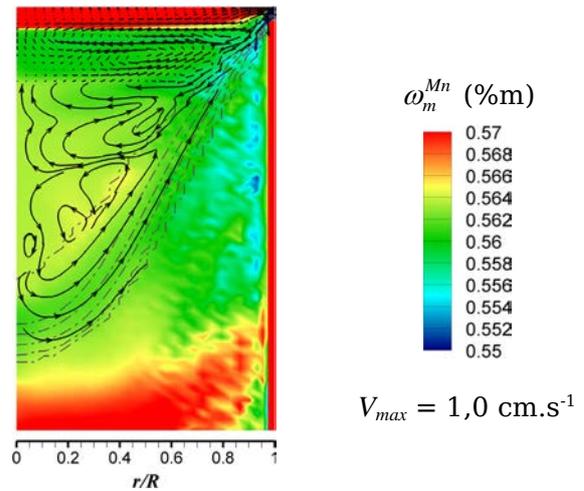


FIGURE C.19 – Simulation de l'essai 1 : titre massique moyen en manganèse à  $t = 5360$  s.

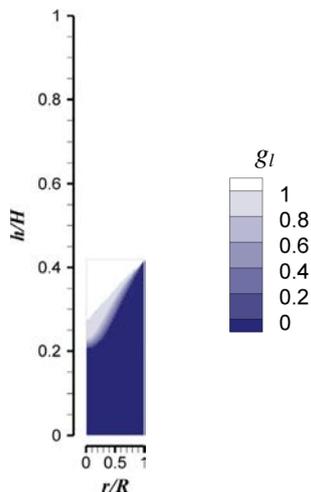


FIGURE C.20 – Simulation de l'essai 1 : état du lingot refondu à  $t = 7149$  s.

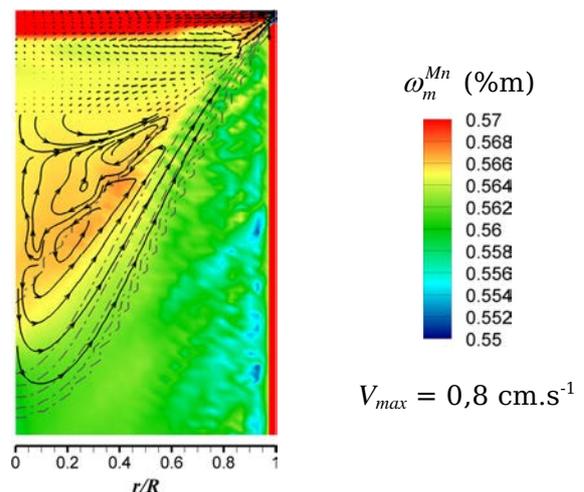


FIGURE C.21 – Simulation de l'essai 1 : titre massique moyen en manganèse à  $t = 7149$  s.

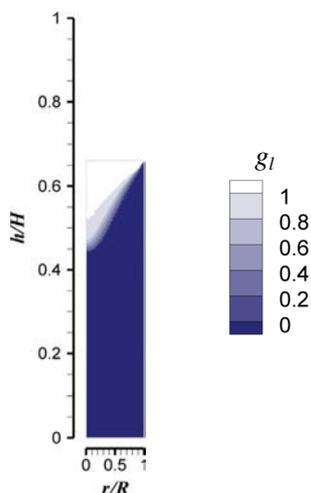


FIGURE C.22 – Simulation de l'essai 1 : état du lingot refondu à  $t = 11717$  s.

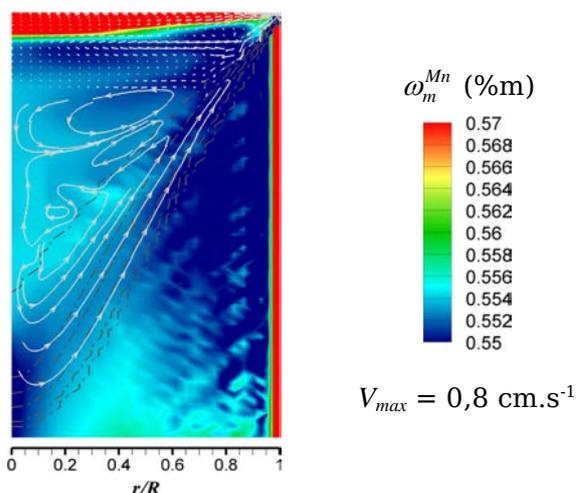
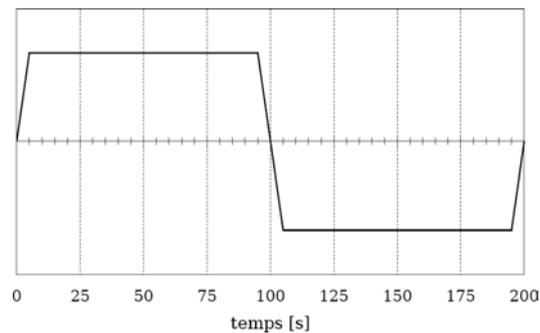


FIGURE C.23 – Simulation de l'essai 1 : titre massique moyen en manganèse à  $t = 11717$  s.

#### C.4.d Modification des paramètres opératoires afin de réduire la perte de Mn due à la volatilisation

Dans le procédé VAR, l'application d'un brassage électromagnétique est un moyen utilisé industriellement, lors des refusions d'alliages de titane et de zirconium en particulier, pour homogénéiser chimiquement le métal liquide. Ainsi, nous avons utilisé le modèle pour étudier l'intérêt d'un tel brassage pour réduire la perte en Mn par volatilisation dans un acier faiblement allié.

Nous avons simulé l'essai 1 en appliquant quatre modes de brassage alterné de période identique mais d'intensités maximales différentes :  $B_{max} = 5, 2,5, 1$  et  $0,75$  G. La période de brassage est de  $200$  s ; elle a été choisie arbitrairement. Le cycle de brassage est représenté schématiquement dans la figure C.24. Nous avons choisi d'appliquer un brassage alterné et non un brassage unidirectionnel car, pour une intensité maximale fixée, la macroségrégation induite par le premier mode de brassage est généralement moins intense que par le second (cf. chapitre IV). Le paramètre  $f^{Mn}(1-b)$  est égal à  $0,2$  pour toutes les simulations.

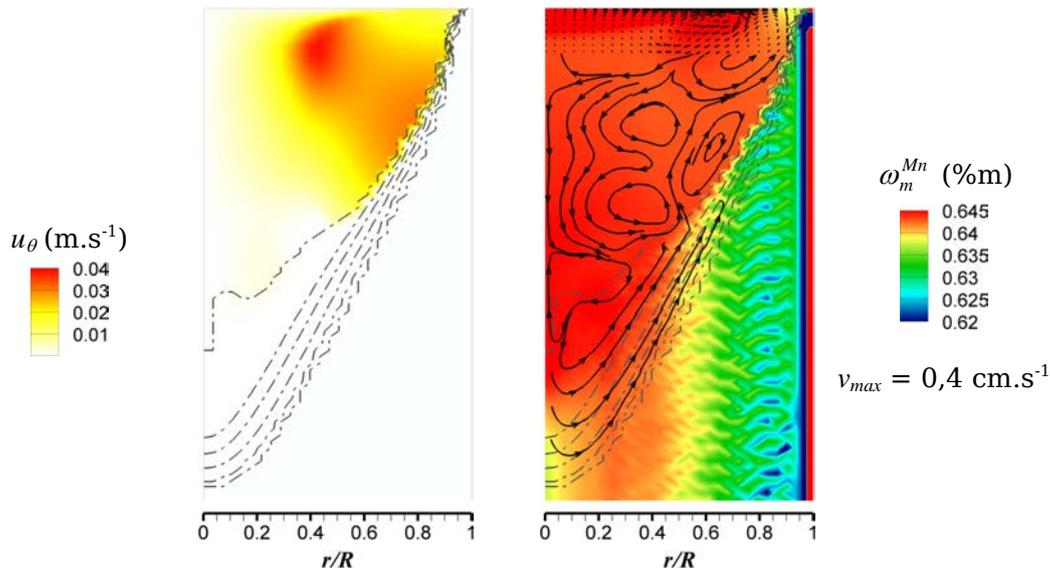


**FIGURE C.24** – Représentation schématique du cycle de brassage électromagnétique appliqué.

La figure C.25 présente l'écoulement selon  $r$ ,  $\theta$  et  $z$  ainsi que le titre massique moyen en Mn dans le puits liquide et la zone pâteuse à l'instant  $t = 12101$  s, pour un brassage alterné de  $2,5$  G.

Par rapport au cas sans brassage électromagnétique (cf. figures C.19, C.21 et C.23), le puits liquide est beaucoup plus homogène chimiquement. De plus, le brassage homogénéise également la température dans le puits liquide et cause ainsi une diminution de cette température sur la surface libre ce qui contribue également à la diminution de la quantité de Mn volatilisée puisque le coefficient de volatilisation  $h_v^{Mn}$  augmente avec la température (cf. figure C.4).

Néanmoins, cette homogénéisation thermique conduit à une augmentation du volume du puits liquide : la profondeur des isovaleurs  $g_l = 0$  et  $g_l = 1$  a augmenté d'environ  $5$  cm au centre du lingot.



**FIGURE C.25** – Écoulement selon  $r$ ,  $\theta$  et  $z$  et titre massique en Mn à l'instant  $t = 12101$  s de la refusion 1 pour le brassage électromagnétique alterné de 2,5 G.

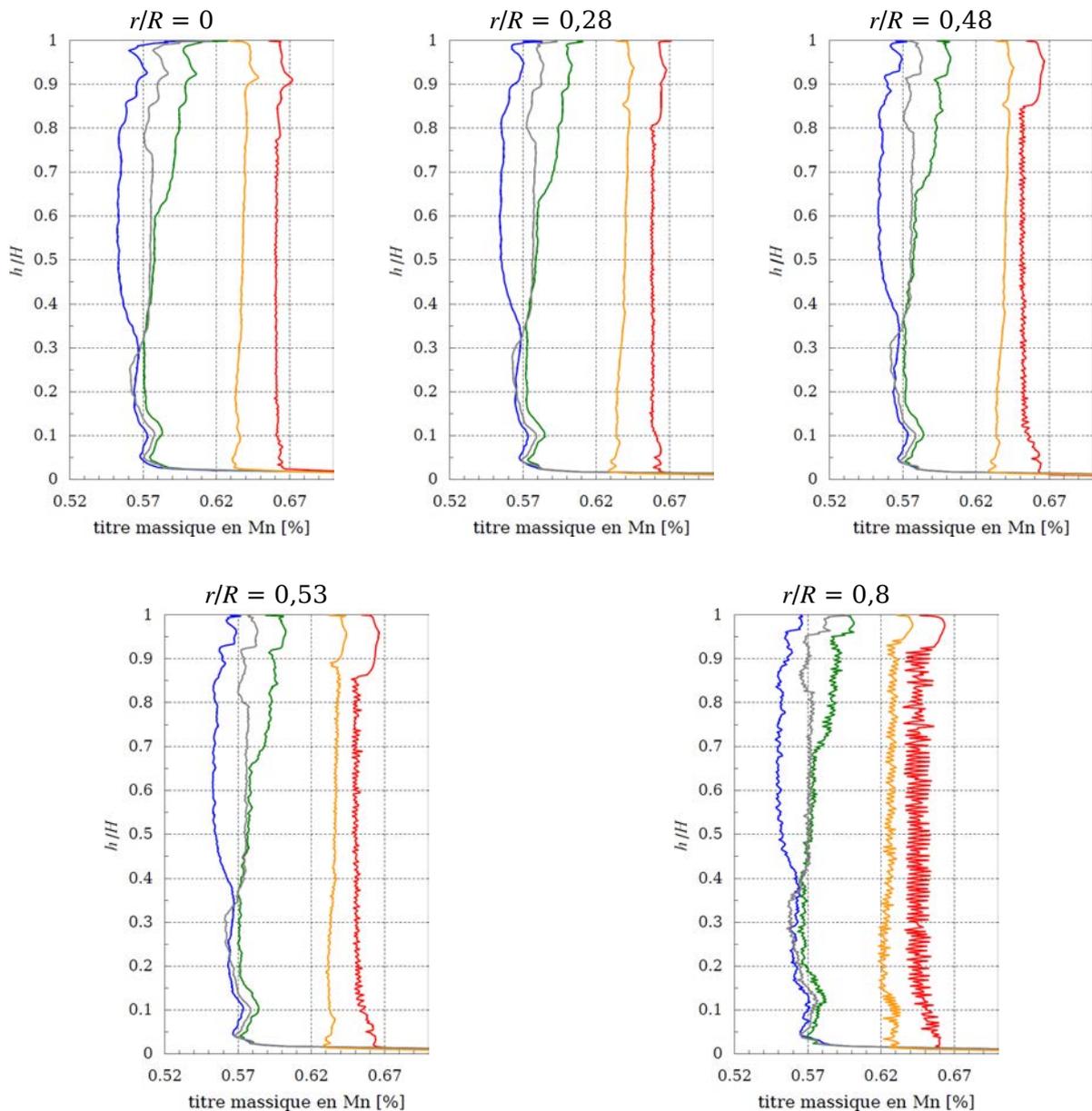
La figure C.26 présente les profils longitudinaux de macroségrégation en Mn obtenus en l'absence de brassage électromagnétique et pour les quatre intensités de brassage alterné.

L'utilisation d'un brassage électromagnétique alterné au cours de la refusion réduit la perte de manganèse dans le lingot. Parmi les modes de brassage étudiés, celui dont l'intensité est la plus élevée (5G) est le plus efficace pour réduire l'effet de la volatilisation.

Concernant l'influence du brassage sur la macroségrégation en C, les indices de macroségrégation pour les différentes intensités de brassage font l'objet du tableau C.8 : le brassage appliqué accentue la macroségrégation en C, et cela d'autant plus que son intensité est grande.

**TABLEAU C.8** – Influence du brassage électromagnétique alterné sur l'intensité globale de macroségrégation en C

$B_{max}$ [G]	0	0,75	1	2,5	5
$i_{seg}$ [%]	1,02	1,3	1,66	2,24	3,11



**FIGURE C.26** – Essai 1 : influence du brassage électromagnétique sur les profils longitudinaux de macroségrégation en Mn. — : Pas de brassage. — : Brassage alterné 0,75 G. — : Brassage alterné 1 G. — : Brassage alterné 2,5 G. — : Brassage alterné 5 G. • : Mesures expérimentales.

Les cartes de composition en C du lingot final (figure C.27) et les profils radiaux de macroségrégation à mi-hauteur (figure C.28) confirment cet effet. L'augmentation de l'intensité du brassage exacerbe la macroségrégation en C. Sous l'effet du brassage, la zone centrale du lingot s'enrichit en C au dépend de la zone périphérique.

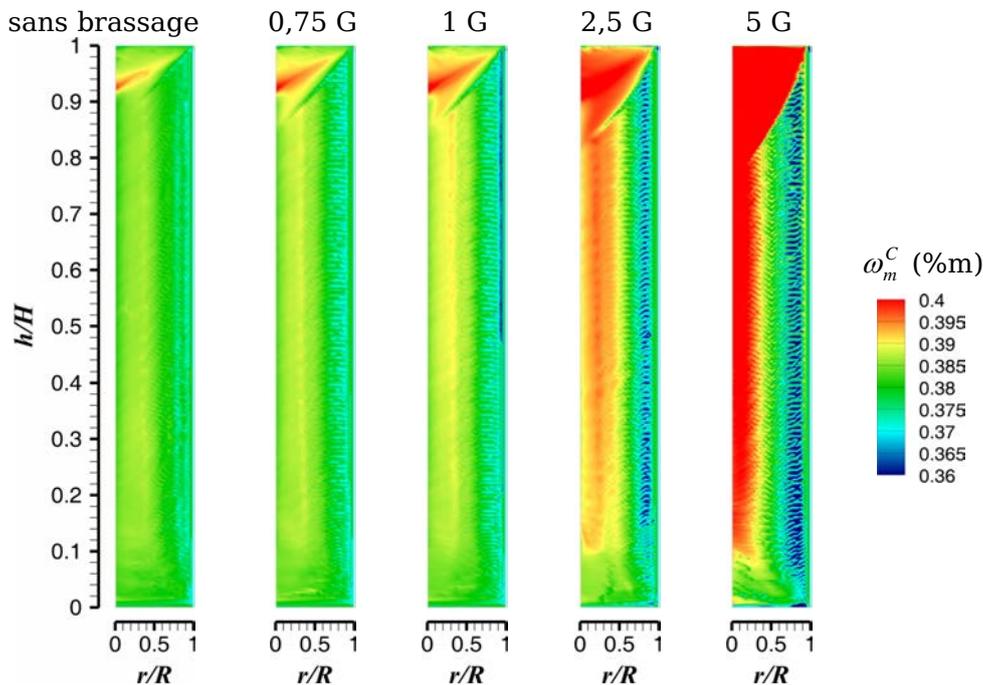
Mis à part la région du lingot où le dernier puits liquide s'est solidifié, le titre massique en C est compris :

- sans brassage, entre 0,37 et 0,39 % massique, soit la teneur nominale  $\pm 2,6$  % ;

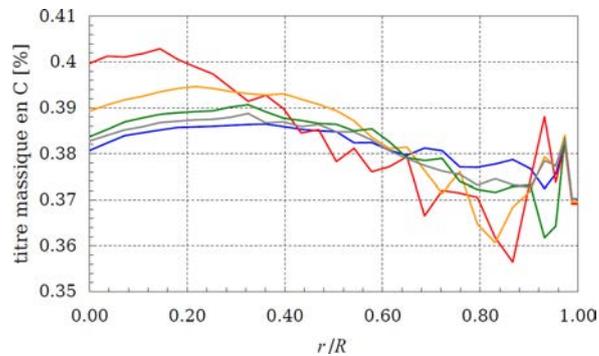
- pour le brassage alterné dont l'intensité est maximale (5 G), entre 0,36 et 0,4 % massique, soit la teneur nominale  $\pm 5,2$  %.

Par conséquent, l'intensité optimale d'un tel brassage devrait être choisie en tenant compte du fait que l'intensité de macroségrégation des autres éléments d'alliage serait certainement également modifiée.

De plus, l'application d'un brassage entrainerait certainement une modification des structures de solidification dans le lingot, en favorisant l'apparition de grains équiaxes. La macroségrégation pourrait en être aussi profondément modifiée.



**FIGURE C.27** – Simulation de l'essai 1 : influence du brassage alterné sur la macroségrégation en C dans le lingot final.



**FIGURE C.28** – Simulation de l'essai 1 : influence du brassage alterné sur le profil radial à mi-hauteur de macroségrégation en C ( $h/H = 0,5$ ). — :  $B_{max} = 0$  G. — :  $B_{max} = 0,75$  G. — :  $B_{max} = 1$  G. — :  $B_{max} = 2,5$  G. — :  $B_{max} = 5$  G.

## C.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié numériquement l'influence de la diffusion restreinte des solutés, de la convection solutale et du coefficient de recondensation du Mn sur la volatilisation du Mn et la macroségrégation (C et Mn) d'un lingot VAR en acier faiblement allié.

La prise en compte de la diffusion restreinte influe peu la macroségrégation prédite par le modèle

Nous avons montré qu'au cours de la refusion VAR de l'acier 40CrMoV13-9 (acier faiblement allié), l'influence de la convection naturelle d'origine solutale sur la macroségrégation est prépondérante dans la région centrale du lingot.

Les pertes de Mn dues à la volatilisation sont conséquentes. L'utilisation d'un brassage électromagnétique alterné pourrait permettre de réduire les pertes de manganèse par volatilisation en homogénéisant chimiquement et thermiquement le métal liquide. Les pertes sont d'autant plus faibles que le brassage est intense. Néanmoins, l'augmentation de l'intensité du brassage accroît significativement la macroségrégation des autres éléments d'alliage. Il serait par conséquent nécessaire pour les élaborateurs de trouver un compromis afin de réduire les pertes en Mn tout en conservant des variations de composition à l'échelle du lingot acceptables. De plus, l'utilisation d'un brassage au cours de la refusion favoriserait l'apparition de grains équiaxes, ce qui aurait des conséquences sur la macroségrégation.

La comparaison de nos résultats aux mesures expérimentales a montré que l'analyse détaillée de la macroségrégation des lingots élaborés suite aux deux essais nécessiterait de connaître quantitativement les hétérogénéités de composition de l'électrode.

## C.6 Bibliographie

- [1] M. Schneider, C. Beckermann, Formation of macrosegregation by multicomponent thermosolutal convection during the solidification of steel, *Metallurgical and Materials Transactions A*. 26 (1995) 2373–2388.
- [2] I. Vannier, Modélisation de la solidification des lingots d'acier, Institut National Polytechnique de Lorraine, 1995.
- [3] H. Combeau, M. Založnik, S. Hans, P.E. Richy, Prediction of Macrosegregation in Steel Ingots: Influence of the Motion and the Morphology of Equiaxed Grains, *Metall and Materials Transactions B*. 40 (2008) 289-304.
- [4] T.C. Totemeier, W.F. Gale, *Smithells metals reference book*, 8th éd., Butterworth-Heinemann, 2004.
- [5] T. Quatravaux, Evolution de la modélisation du procédé VAR - Contribution à la description de la dispersion inclusionnaire dans le puits liquide et à la prévention de défauts de solidification, Thèse, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.



**AUTORISATION DE SOUTENANCE  
DU DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE**

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur GOYEAU Benoît, Professeur, Ecole Centrale de Paris,  
Monsieur FAUTRELLE Yves, Professeur, SIMAP, Saint Martin d'Hères.**

Le Président de l'Université de Lorraine, autorise :

**Monsieur REVIL-BAUDARD Mathieu**

à soutenir devant un jury de l'UNIVERSITE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

**"Modélisation et étude de la macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide.  
Application aux alliages de zirconium"**

en vue de l'obtention du titre de :

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE**

Intitulé du doctorat : **"Sciences des Matériaux - Science et Ingénierie des Matériaux et  
Métallurgie"**

Fait à Vandoeuvre, le **22 juin 2012**

Le Président de l'Université de Lorraine,

Pierre MUTZENHARDT





# **Modélisation et étude de la macroségrégation au cours de la refusion à l'arc sous vide**

## **Application aux alliages de zirconium**

### **Résumé**

Le procédé VAR (Vacuum Arc Remelting ou refusion à l'arc sous vide en français) est employé dans la production d'alliages à haute performance pour les industries aéronautique (aciers spéciaux, superalliages et alliages de titane) et nucléaire (alliage de zirconium). Comme pour tous les procédés de fonderie, la maîtrise de l'homogénéité chimique et de la structure métallurgique des lingots coulés par le procédé VAR constitue un enjeu industriel important. Les travaux présentés dans ce mémoire visent à identifier, pour les alliages de zirconium en particulier, les effets de la convection naturelle et de la convection forcée due au brassage électromagnétique sur la macroségrégation.

Dans ce but, un modèle numérique a été développé. Il est basé sur la résolution couplée des équations de conservation d'énergie, de quantité de mouvement et de solutés, dans des conditions d'écoulement laminaire ou turbulent. La modélisation de la solidification tient compte du couplage fort entre le transport d'énergie et de solutés dans la zone pâteuse. Afin de décrire la macroségrégation, la diffusion restreinte des solutés dans les phases liquides et solides peut être prise en compte. Parallèlement, deux électrodes chimiquement homogènes d'alliages Zircaloy-4 et M5<sup>®</sup> ont été spécialement refondues dans un four VAR industriel sur le site de CEZUS à Ugine (Savoie, France). La macroségrégation des lingots obtenus a été caractérisée.

La comparaison entre les mesures expérimentales et les résultats de simulation a montré que pour un alliage dont l'intervalle de solidification est important (comme l'alliage Zircaloy-4), la convection solutale dans la zone pâteuse peut avoir une influence essentielle sur la macroségrégation de la région centrale du lingot. Par ailleurs, le mouvement de grains équiaxes lors de l'application d'un brassage électromagnétique de forte intensité semble accentuer significativement la macroségrégation dans la région externe du lingot. Pour un alliage dont l'intervalle de solidification est faible (comme l'alliage M5<sup>®</sup>), nous avons montré que la macroségrégation dépend plus spécifiquement de la convection forcée due au mode de brassage électromagnétique appliqué au cours de la refusion.

Mots clés : refusion à l'arc sous vide – procédé VAR – alliage de zirconium – acier – solidification – macroségrégation – modélisation mathématique – transferts couplés.

# **Modeling and Study of the Macrosegregation during Vacuum Arc Remelting**

## **Application to Zirconium Alloys**

### **Abstract**

Vacuum Arc Remelting (VAR) is used to produce high performance alloys for the aeronautic (special steels, superalloys, titanium alloys) and nuclear (zirconium alloys) industries. As for all casting processes, the control of the chemical homogeneity and the metallurgical structure in VAR ingots is an important industrial issue. The goal of this thesis is to identify, for zirconium alloys in particular, the effects of the natural convection and the forced convection due to the electromagnetic stirring on macrosegregation.

To this purpose, a numerical model has been developed. It is based on the solution of the coupled transient energy, momentum and solute transport equations, under laminar or turbulent flow conditions. The solidification modeling accounts for a full coupling between energy and solute transport in the mushy zone. The finite diffusion of solutes in both solid and liquid phases can be taken into account to describe microsegregation. In addition, chemically homogeneous Zircaloy-4 and M5<sup>®</sup> electrodes have been specially remelted in an industrial VAR furnace at the CEZUS plant in Ugine (Savoie, France). The macrosegregation of the ingots has been measured.

The comparison between the experimental measurements and the simulation results showed that for an alloy with a large solidification interval (like Zircaloy-4), the solutal convection in the mushy zone could have an essential influence on the macrosegregation in the inner part of the ingot. Furthermore, the motion of equiaxed grains caused by a strong stirring seems to seriously intensify macrosegregation in the outer part of the ingot. For an alloy with a small solidification interval (like M5<sup>®</sup>), we have shown that the macrosegregation depends more specifically on the forced convection due to the type of stirring applied during the remelting.

Keywords: Vacuum arc remelting – zirconium alloy – steel – solidification – macrosegregation – mathematical modeling – coupled transfers.

