

THÈSE DE DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Spécialité :

Mécanique–Energétique

Présentée par :

Patrick BOUSQUET–MÉLOU

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Sujet de la thèse :

**MODÉLISATION MACROSCOPIQUE
ET SIMULATION NUMÉRIQUE
DE LA SOLIDIFICATION DES MÉLANGES BINAIRES**

soutenue le 11 Décembre 2000 devant le jury composé de :

- | | | |
|-----|-----------------|---|
| M. | Yves FAUTRELLE | EPM–MADYLAM, ENSHMG–INPG, Grenoble
(Professeur) : Rapporteur |
| M. | Florian FICHOT | IPSN, Cadarache (Ingénieur) : Encadrant |
| Mme | Renée GATIGNOL | LMM–UPMC, Paris (Professeur) |
| M. | Dominique GOBIN | FAST–UPMC, Orsay (D.R.) : Directeur de Thèse |
| M. | Benoît GOYEAU | FAST–UPMC, Orsay (M.C.) : Encadrant |
| M. | Marc PRAT | IMFT–INPT, Toulouse (D.R.) : Rapporteur |
| M. | Michel QUINTARD | IMFT–INPT, Toulouse (D.R.) : Encadrant |

Table des Matières

Liste des Figures	v
Liste des Tables	vii
Nomenclature	ix
Chapitre I : Introduction	1
I.1 Le contexte de la sûreté nucléaire	2
I.2 La solidification des mélanges	5
I.3 Etat de l'art de la modélisation macroscopique	8
I.4 Limites des approches actuelles	11
I.5 Motivations et choix de la méthode	12
I.6 Objectifs de la thèse	13
Chapitre II : Etablissement du modèle physique	17
II.1 Position du problème à l'échelle des microstructures	17
II.1.1 Hypothèses physiques	17
II.1.2 Equations de conservation	19
II.1.3 Contraintes géométriques	21
II.2 Equations de quantité de mouvement et de continuité de la phase liquide .	23
II.2.1 Introduction	23

II.2.2	Prise de moyenne volumique	25
II.2.3	Fermeture de l'équation macroscopique de quantité de mouvement	27
II.2.4	Forme fermée de l'équation macroscopique de quantité de mouvement	38
II.2.5	Conclusion	42
II.3	Equations de conservation des espèces	44
II.3.1	Prise de moyenne volumique	44
II.3.2	Fermeture locale	46
II.3.3	Forme fermée des équations macroscopiques de conservation des espèces	55
II.4	Equation de l'énergie	58
II.4.1	Prise de moyenne volumique	58
II.4.2	Fermeture locale	63
II.4.3	Forme fermée de l'équation macroscopique de l'énergie	67
II.5	Résumé du modèle macroscopique complet	71
II.5.1	Equations de conservation	71
II.5.2	Propriétés de transport effectives	72
II.6	Simplification du modèle macroscopique	75
II.6.1	Discussion sur les termes non classiques du modèle	75
II.6.2	Résumé du modèle simplifié	77
II.7	Conclusion	79
Chapitre III : Mise en œuvre numérique		83
III.1	Introduction	83
III.2	Discrétisation du modèle macroscopique	85
III.2.1	Cadre physique de l'étude	85
III.2.2	Choix des inconnues	86
III.2.3	Méthode et schémas numériques	88

III.2.4	Algorithme de résolution	88
III.2.5	Refusion et solidification eutectique	95
III.3	Validation de la méthode numérique en convection naturelle	97
III.4	Solidification des mélanges binaires en cavité	99
III.4.1	Solidification du mélange NH_4Cl (10%) – H_2O	99
III.5	Conclusion	112
Chapitre IV : Conclusion		115
Annexes		119
Annexe A		
	La méthode de prise de moyenne volumique	121
Annexe B		
	Modèles de perméabilité des zones dendritiques colonnaires	125
Annexe C		
	Coefficients d'échange massique des modèles de solidification dendritique	129
1	Modèles diphasiques	129
2	Modèles triphasiques	130
Annexe D		
	Prise de moyenne du flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse	135
Annexe E		
	Propriétés des mélanges binaires usuels et d' UO_2	137
Annexe F		
	Schémas utilisés dans la méthode numérique	139
Annexe G		
	Validation de la méthode numérique en convection naturelle	143
1	Convection naturelle de l'air en cavité carrée	143
2	Convection naturelle en cavité poreuse	146
Bibliographie		157

Liste des Figures

I.1	<i>Diagramme de phase d'un mélange binaire</i>	2
I.2	<i>Configuration du réacteur nucléaire de Three Mile Island à l'issue de l'accident, Broughton et al. (1989)</i>	4
I.3	<i>Illustration des différentes zones et échelles mises en jeu</i>	7
II.1	<i>Zone dendritique colonnaire et volume de prise de moyenne associé</i>	22
II.2	<i>Schématisation du V.E.R. pour la résolution des problèmes de fermeture</i>	38
II.3	<i>Représentation de l'équilibre thermodynamique dans le modèle macroscopique</i>	72
III.1	<i>Cas test de Voller et al. (1989)</i>	99
III.2	<i>cellule unité et coefficient d'échange massique calculé</i>	102
III.3	<i>Microségrégation : relation entre ε_s et C_s^*</i>	104
A.1	<i>Volume Elémentaire Représentatif d'un système diphasique ℓ-s</i>	121
C.1	<i>Modélisation triphasique des zones dendritiques colonnaires ou équiaxes</i>	133
F.1	<i>Volumes de contrôles (\mathcal{V}) et nœuds scalaires (P) dans la direction x</i>	140
G.1	<i>Description du cas-test de de Vahl Davis (1983)</i>	143
G.2	<i>Cas-test de convection naturelle en cavité poreuse</i>	146

Liste des Tables

1	<i>Système d'équations de conservation microscopiques</i>	20
2	<i>Influence de τ sur les relations entre les échelles de longueur</i>	21
3	<i>Modèle macroscopique complet</i>	73
4	<i>Propriétés de transport effectives</i>	74
5	<i>Modèle macroscopique simplifié</i>	78
6	<i>Version simplifiée du modèle macroscopique pour l'application numérique</i> . .	93
7	<i>Algorithme de résolution du modèle macroscopique</i>	94
8	<i>Données du cas-test de Voller et al. (1989)</i>	101
9	<i>Calculs effectués sur le cas-test de Voller et al. (1989)</i>	105
10	<i>Cas-test de Voller et al. (1989) : évolution de la porosité au cours du temps</i>	108
11	<i>Cas-test de Voller et al. (1989) : influence de β_s sur l'écoulement</i>	109
12	<i>Cas-test de Voller et al. (1989) : isovaleurs du champ $\frac{\langle C \rangle}{C_0} - 1$</i>	110
13	<i>Cas-test de Voller et al. (1989) : influence du maillage sur les champs de porosité et de lignes de courant</i>	111
C.1	<i>Coefficients d'échange massique en régime de diffusion : modèle de Wang (1994)</i>	131
E.1	<i>Propriétés des mélanges binaires usuels et d'UO_2</i>	137
G.1	<i>Résultats du cas-test de convection naturelle de l'air</i>	153
G.2	<i>Convection naturelle de l'air : isothermes et lignes de courant</i>	154
G.3	<i>Résultats du cas-test de convection naturelle en cavité poreuse</i>	155

Nomenclature

a	largeur de cavité, m
A	aire de $A_{\ell s}$, m ²
$A_{\ell e}$	surface des entrées et sorties pour la phase ℓ aux frontières du système macroscopique, m ²
$A_{\ell s}$	interface entre les phases ℓ et s contenue dans le volume élémentaire représentatif (V.E.R.), m ²
A_v	$\frac{A}{V}$, surface spécifique, m ⁻¹
b	hauteur de cavité, m
\mathbf{b}	vecteur qui représente $\tilde{\mathbf{p}}_\ell$ lorsque les effets d'inertie microscopique sont négligeables, m ⁻¹
\mathbf{b}_ℓ	vecteur qui relie \tilde{C}_ℓ à $\nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$, m
\mathbf{B}	tenseur d'ordre 2 qui représente $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ lorsque les effets d'inertie microscopique sont négligeables
\mathbf{c}	vecteur qui représente la contribution des effets d'inertie à $\tilde{\mathbf{p}}_\ell$, m ⁻¹
\mathbf{C}	tenseur d'ordre 2 qui représente la contribution des effets d'inertie à $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$
C_0	concentration massique nominale
C_ℓ	concentration massique dans la phase ℓ
C_ℓ^i	concentration massique de l'espèce i (α ou β) dans la phase ℓ
C_ℓ^*	concentration massique interfaciale (ou d'équilibre) de l'espèce α dans la phase ℓ
C_ℓ^{i*}	concentration massique interfaciale de l'espèce i (α ou β) dans la phase ℓ
C_ℓ^0	concentration massique initiale du liquide
C^{eut}	concentration massique au point eutectique

- $\langle C \rangle$ concentration massique totale de l'espèce α dans le mélange binaire
- $C_{p\ell}$ capacité calorifique de la phase ℓ : $\frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle T_\ell \rangle^\ell}$, $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
- \mathbf{d}_ℓ coefficient de transport pour $(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)$, m.s^{-1}
- D_ℓ diffusivité massique de la phase ℓ , $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
- \mathbf{D}_ℓ tenseur effectif de diffusion massique dans la phase ℓ , $\text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$
- \mathbf{e}_ℓ vecteur qui relie \tilde{T}_ℓ à $\nabla \langle T \rangle$, m
- \mathbf{F} tenseur d'ordre 2 qui représente la correction de Forchheimer
- \mathbf{g} accélération de la pesanteur, m.s^{-2}
- g_ℓ équation du liquidus du mélange binaire ($C_\ell = g_\ell(T_\ell)$)
- g_s équation du solidus du mélange binaire ($C_s = g_s(T_s)$)
- Gr_s $\frac{\beta_s g (C_0 - C^{eut}) a^3}{\nu_\ell^2}$: nombre de Grashof solutal
- Gr_T $\frac{\beta_T g (T^{ini} - T^{eut}) a^3}{\nu_\ell^2}$: nombre de Grashof thermique
- $h_{m\ell}$ coefficient d'échange massique de la phase ℓ , s^{-1}
- $h_{m\ell}^*$ $\frac{\lambda_1^2}{D_\ell} h_{m\ell}$: coefficient d'échange massique adimensionné
- $\bar{h}_{m\ell}$ $\varepsilon_\ell^{-1} h_{m\ell}$, s^{-1}
- H_ℓ enthalpie massique de la phase ℓ , J.kg^{-1}
- H^i enthalpie massique de l'espèce i , J.kg^{-1}
- $\langle H \rangle$ $(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_s \rho_s \langle H_s \rangle^s) / \langle \rho \rangle$: enthalpie massique totale du mélange binaire, J.kg^{-1}
- \mathbf{J}_ℓ^i flux microscopique de diffusion de l'espèce i (α ou β) dans la phase ℓ , $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
- k C_s / C_ℓ : coefficient de ségrégation du mélange binaire
- \mathbf{K} tenseur de perméabilité, m^2
- K_0 constante de Kozeny–Carman ou perméabilité de référence, m^2
- ℓ_i vecteurs de base, m
- ℓ_ℓ longueur caractéristique des variations des grandeurs microscopiques dans la phase ℓ , m

L	longueur caractéristique des variations des grandeurs moyennes, m
L_v	longueur caractéristique des variations de $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$, m
L_ε	longueur caractéristique des variations de la porosité, m
\mathcal{L}	$(C_{ps} - C_{p\ell})T^{eut} + \left(\langle H_\ell \rangle^\ell - \langle H_s \rangle^s \right) \Big _{T^{eut}}$: enthalpie de référence J.kg ⁻¹
m_ℓ	pente du liquidus des diagrammes de phase linéarisés ($1 / M_\ell$), K
\mathbf{m}	vecteur qui représente \tilde{p}_ℓ , m ⁻¹
\dot{m}_ℓ	taux de fusion, kg.m ⁻³ .s ⁻¹
\dot{m}_s	taux de solidification, kg.m ⁻³ .s ⁻¹
\mathbf{M}	tenseur d'ordre 2 qui représente $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$
M	nombre de mailles dans la direction x
M_s	$\frac{dg_s}{d\langle T \rangle} \Big _{\langle T \rangle}$: pente du solidus, K ⁻¹
M_ℓ	$\frac{dg_\ell}{d\langle T \rangle} \Big _{\langle T \rangle}$: pente du liquidus, K ⁻¹
N	$\frac{Gr_s}{Gr_T}$: rapport des forces volumiques
N	nombre de mailles dans la direction y
\mathbf{n}	vecteur unitaire normal à une face de d'un volume de contrôle (volume fini)
$\mathbf{n}_{\ell s}$	vecteur unitaire normal à l'interface, orienté de la phase ℓ vers la phase s
P ou $\langle p_\ell \rangle^\ell$	pression moyenne de la phase ℓ , Pa
p_ℓ	pression de la phase ℓ , Pa
Pe_c^s	nombre de Péclet solutal de cellule
Pe_c^s	$\langle v_\ell \rangle^\ell \lambda_1 / D_\ell$: nombre de Péclet solutal de cellule
Pe_ℓ^s	$\frac{\ \mathbf{v}_\ell \ \ell_\ell}{D_\ell}$: nombre de Péclet solutal de pore
\mathbf{q}_ℓ	flux microscopique de diffusion de chaleur, kg.m ⁻² .s ⁻¹
\dot{Q}_ℓ	puissance générée par unité de masse dans la phase ℓ , W.kg ⁻¹

$\langle \dot{Q} \rangle$	$\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \dot{Q}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_s \rho_s \langle \dot{Q}_s \rangle^s \right) / \langle \rho \rangle$ puissance massique de mélange, W.kg^{-1}
\mathbf{r}	vecteur position, m
r_0	rayon d'un V.E.R. sphérique, m
t	temps, s
t^*	temps caractéristique des variations des grandeurs moyennes, s
\tilde{t}	temps caractéristique des variations des fluctuations spatiales, s
$\mathbf{t}_{\ell s}$	vecteur unitaire tangent à l'interface
T ou $\langle T \rangle$	température de mélange, K
T_ℓ	température de la phase ℓ , K
T^{eut}	température eutectique, K
T_1	température froide imposée sur une paroi, K
\mathbf{u}_ℓ	coefficient de transport de $\langle C_\ell \rangle^\ell$, m.s^{-1}
U_ℓ	$\varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell$: concentration massique superficielle dans la phase ℓ
\mathbf{v}_ℓ	vitesse de la phase ℓ , m.s^{-1}
\mathbf{V} ou $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$	vitesse moyenne de la phase ℓ , m.s^{-1}
$\langle v_\ell \rangle^\ell$	norme de $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$, m.s^{-1}
V	V.E.R., m^3
V_ℓ	volume occupé par la phase ℓ dans V , m^3
$\mathbf{w}_{\ell s}$	vitesse d'interface, m.s^{-1}
\mathbf{w}_c	$\mathbf{n}_{s\ell} \cdot \mathbf{w}_{\ell s}$: vitesse de croissance, m.s^{-1}
\bar{w}_n	$\frac{1}{A} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \mathbf{w}_{\ell s} dA$: vitesse de croissance moyenne, m.s^{-1}
\mathcal{V}	volume de contrôle dans la méthode numérique (volume fini)
V_Ω	mesure de \mathcal{V} , m^3
x	abscisse, m
\mathbf{x}	vecteur position du centre du V.E.R., m

y ordonnée, m

$\mathbf{y} = \mathbf{r} - \mathbf{x}$: vecteur position relativement au centre du V.E.R., m

Lettres grecques

α, β constituants du mélange binaire

α_ℓ scalaire qui relie \tilde{C}_ℓ à $(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)$

β_s coefficient d'expansion solutale

β_T coefficient d'expansion thermique, K^{-1}

γ_ℓ indicateur de la phase ℓ

$\delta = 1 - \frac{\rho_s}{\rho_\ell}$: paramètre de contraction

ΔH_f chaleur latente de fusion du corps pur, J.kg^{-1}

ε_ℓ^α fraction volumique de l'espèce α dans la phase ℓ

ε_ℓ fraction volumique de la phase ℓ

λ_1 espacement des branches primaires de dendrite, m

λ_2 espacement des branches secondaires de dendrites, m

λ_ℓ conductivité thermique de la phase ℓ , $\text{W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$

$\mathbf{\Lambda}_t$ tenseur effectif de conductivité thermique, $\text{W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$

μ_ℓ viscosité dynamique de la phase ℓ , Pa.s

μ_ℓ^α potentiel chimique de l'espèce α dans la phase ℓ , J.mol^{-1}

ν_ℓ viscosité cinématique de la phase ℓ , $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$

ρ_ℓ	densité de la phase ℓ , kg.m^{-3}
ρ_0	densité de référence, kg.m^{-3}
ρ_ℓ^α	densité du corps pur α dans la phase ℓ , kg.m^{-3}
$\bar{\rho}_\ell^\alpha$	$\varepsilon_\ell^\alpha \rho_\ell^\alpha$: densité partielle de l'espèce α dans la phase ℓ , kg.m^{-3}
$\langle \rho \rangle$	$\varepsilon_\ell \rho_\ell + \varepsilon_s \rho_s$ densité du mélange binaire, kg.m^{-3}
$(\rho C_p)_m$	capacité calorifique volumique de mélange, $\text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$
χ_ℓ	$\frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle C_\ell \rangle^\ell}$, $\text{J.kg}^{-1}.\%^{-1}$
Ψ	fonction de courant, $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
$\langle \psi_\ell \rangle$	moyenne volumique d'une grandeur physique ψ dans la phase ℓ
$\langle \psi_\ell \rangle^\ell$	moyenne intrinsèque volumique d'une grandeur physique ψ dans la phase ℓ
$\tilde{\psi}_\ell$	fluctuation spatiale d'une grandeur physique ψ dans la phase ℓ
Ω	domaine d'étude (cavité)

Indices

ℓ phase liquide

s phase solide

Exposants

α, β constituants d'un mélange binaire

ini valeur initiale

Chapitre I

Introduction

Chapitre I

Introduction

Les écoulements et les échanges de chaleur et de masse, au cours d'un processus de changement de phase dans un mélange, interviennent dans beaucoup de domaines. L'évaporation ou la condensation de l'eau à la surface des océans, la fonte des icebergs, et la solidification des laves volcaniques sont des exemples de phénomènes naturels qui mettent en jeu de tels échanges (Beckermann, 1987). Dans le domaine industriel, outre les procédés de fabrication des alliages, verres ou plastiques, ces phénomènes interviennent aussi dans la croissance de cristaux isolés (Kurz & Fisher, 1989), ainsi que dans les procédés de soudure ou de trempe. De plus, la solidification se trouve au carrefour d'un grand nombre de disciplines scientifiques, telles que la science des matériaux, la mécanique des fluides et des transferts, la mécanique du solide, la physico-chimie ou la modélisation numérique.

La figure I.1 donne la représentation générale d'un type particulier de diagramme de phase de mélange binaire, caractérisé par un palier eutectique (Adda *et al.*, 1987). Conformément à ce diagramme, les phases solide et liquide peuvent coexister, en équilibre, dans une gamme de température qui dépend de la composition du mélange. L'existence de régions biphasées, ou *zones pâteuses*, est une conséquence fondamentale de cette plage de température, qui distingue le changement de phase des mélanges de celui des corps purs.

Cette thèse se propose de contribuer à la description des phénomènes macroscopiques de transfert de chaleur et de masse, dans des mélanges binaires en cours de solidification, caractérisés par la croissance d'une zone pâteuse.

Dans cette introduction, nous précisons d'abord le contexte de la recherche en sûreté nucléaire, dans lequel la thèse s'inscrit. Après une description générale du phénomène de solidification des mélanges, nous présentons l'état de l'art de sa modélisation macroscopique. Nous évoquons, ensuite, certaines de ses limites actuelles, auxquelles la thèse entend proposer une solution. Nous expliquons enfin les motivations et les objectifs précis de la thèse.

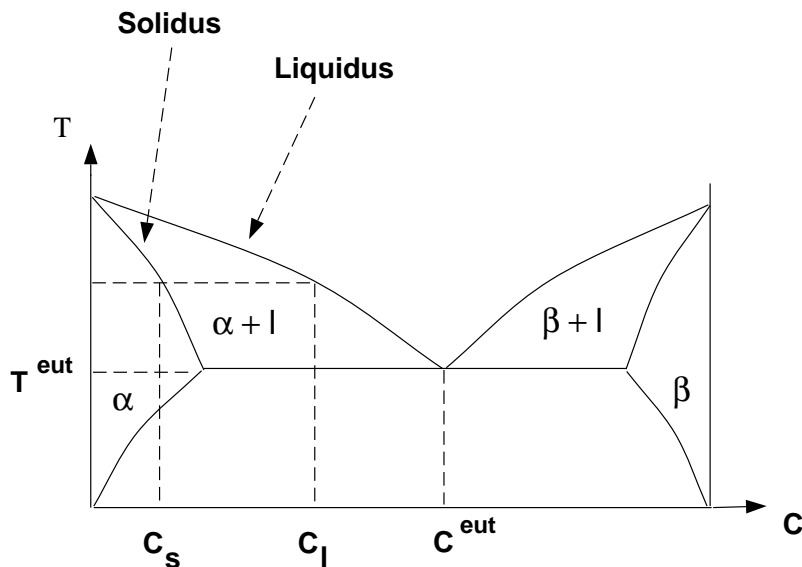


Figure I.1: Diagramme de phase d'un mélange binaire

I.1 Le contexte de la sûreté nucléaire

Depuis plusieurs années, la recherche en sûreté nucléaire s'intéresse à la modélisation des accidents de réacteurs. A partir de données et d'observations, faisant suite à l'accident de Three Mile Island (Etats-Unis) (Broughton *et al.*, 1989), ainsi que d'expériences analytiques (Wright, 1996), on admet comme très probable la séquence d'événements suivants : à la suite d'une perte de réfrigérant dans le circuit primaire de refroidissement, un assèchement partiel ou complet du cœur se produit. Dans ce cas, la puissance résiduelle dégagée au sein du combustible ne peut plus être évacuée. Cela entraîne un échauffement important, une oxydation des gaines contenant le combustible (pastilles d' UO_2) et une fusion progressive du cœur.

Un bain de matériaux fondus (*corium*), constitué principalement d'oxydes (UO_2 , ZrO_2) et de métaux (Zr), ainsi qu'un lit de débris se forment alors, soutenus par une croûte solide métallique (Wright, 1996). Après une rupture partielle de cette croûte à la périphérie du bain, le corium s'écoule progressivement vers le fond de la cuve du réacteur. Les matériaux fondus forment alors un bain, situé au fond de la cuve, dans lequel les produits de fission (PF) génèrent une puissance thermique importante. Dans le cas réel de l'accident de Three Mile Island, une injection d'eau sous pression a permis de confiner le bain à l'intérieur de la cuve du réacteur. La figure I.2 représente la configuration de ce réacteur, observée à l'issue de l'accident. On distingue nettement la présence des deux bains de corium solidifiés, localisés dans la région du cœur et dans le fond de la cuve.

Le nombre de Rayleigh thermique de ce bain, construit sur sa hauteur et la puissance dégagée, peut atteindre 10^{16} , ce qui correspond à un régime turbulent (Wright, 1996). La connaissance des transferts de chaleur sur les frontières du bain, et du phénomène de *solidification du corium au contact des parois de la cuve*, est primordiale si l'on veut prévoir l'évolution ultérieure du corium, et les possibilités de le refroidir pour assurer son

confinement.

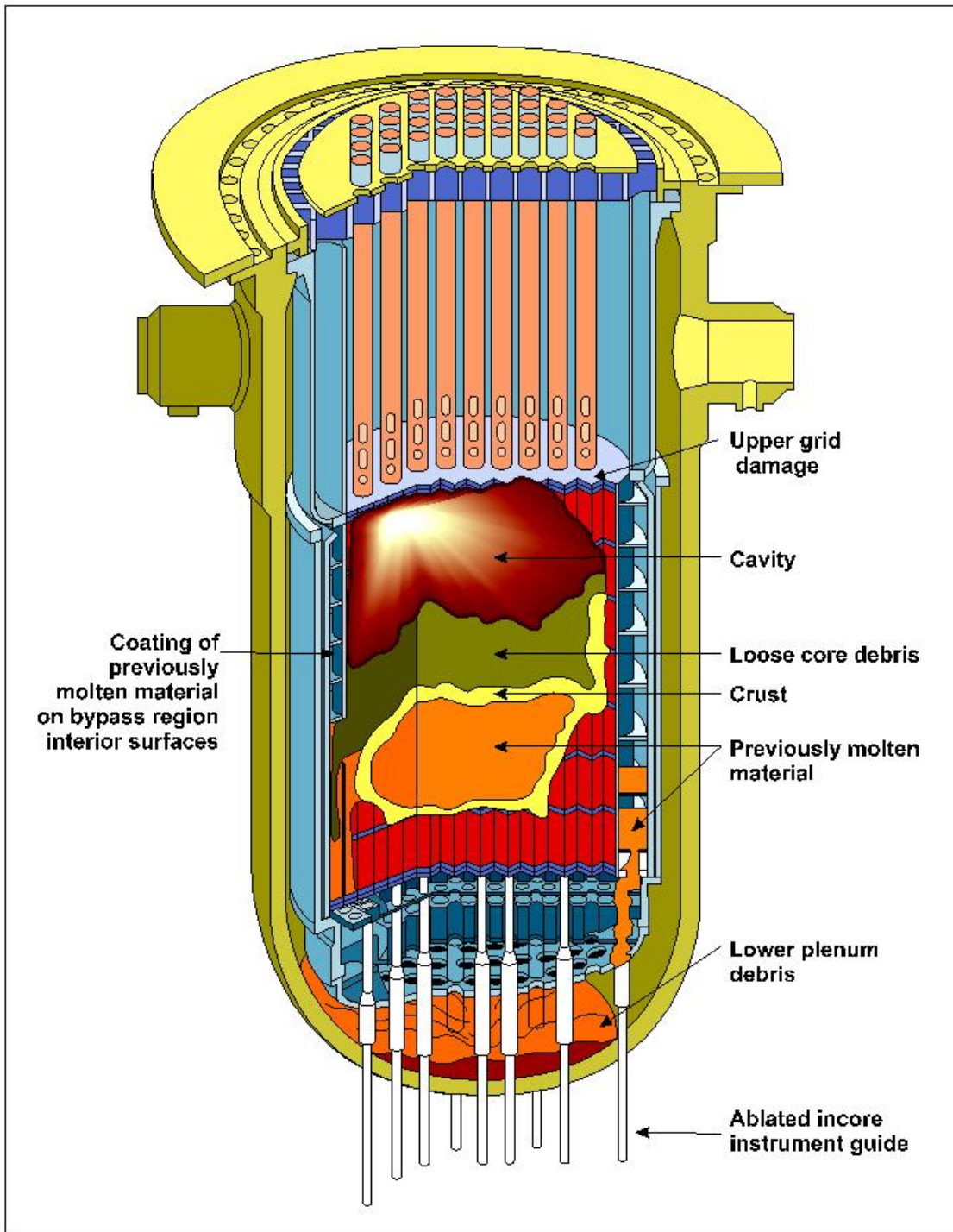
Des expériences analytiques sont actuellement réalisées en Russie par l'Institut Kurchatov : le programme RASPLAV étudie en effet la phénoménologie du bain de corium dans la cuve. Outre des expériences à grande échelle réalisées avec des matériaux réels (UO_2 , Zr) inactifs, des études à plus petite échelle ont également été faites en utilisant un sel binaire comme fluide simulant (Asmolov *et al.*, 1998). Différents régimes de transfert de chaleur ont été étudiés : la génération interne de chaleur, dans le bain, a été simulée à l'aide de techniques de chauffage par induction ou en volume. De plus, des conditions variables de refroidissement de la paroi extérieure de la cavité ont été imposées. Ces différentes conditions ont permis de comparer le transfert de chaleur, en présence ou non de la formation d'une croûte solide au voisinage des parois. L'un des régimes étudiés est caractérisé par la croissance d'une zone solide-liquide, ou *zone pâteuse*. Selon les mesures effectuées, la répartition du champ de température, et des flux de chaleur locaux, sont différents dans ce régime et dans les situations de fronts plans de solidification.

Comme nous l'avons déjà précisé, le sujet de la thèse porte justement sur la modélisation de la solidification d'un mélange binaire, en présence d'une telle région biphasée. Dès lors, les expériences RASPLAV en sel binaire, qui mettent en jeu la croissance d'une zone pâteuse, fournissent une base de données intéressante pour l'exploitation et la validation du modèle établi dans cette thèse. Néanmoins, les résultats du modèle pourront tout de même être comparés aux autres régimes de solidification de ces expériences, bien qu'ils mettent en jeu la progression de fronts plans, ou des réactions eutectiques.

Dans une perspective à *plus long terme*, la modélisation pourra être étendue aux mélanges multi-constituants, et au phénomène de turbulence, qui caractérisent le problème de la solidification du corium. Ainsi, la modélisation pourra contribuer au développement physique du code de calcul ICARE-CATHARE (Fichot *et al.*, 2000), qui simule les différentes phases de la dégradation accidentelle d'un réacteur. En effet, il est prévu de calculer les transferts couplés dans le bain de corium de fond de cuve, en présence d'une génération interne de chaleur, et d'une formation de croûtes solides au voisinage des parois.

La solidification du corium, au cours de son *étalement* hors de la cuve, est également un domaine possible d'application des résultats théoriques de la thèse. Le modèle établi pourra être adapté et utilisé pour le développement du code CROCO (Piar *et al.*, 1999) qui simule ce phénomène important des scénarios d'accident.

Dans l'état actuel des connaissances, des incertitudes importantes demeurent quant aux propriétés des matériaux, et sur la modélisation du phénomène de turbulence. Confrontés, de plus, à un manque de résultats expérimentaux au début de la thèse, nous nous sommes intéressés à des mélanges plus connus de la littérature. Cependant, la simulation des expériences RASPLAV, qui mettent en jeu un sel binaire, fera partie des applications *très prochaines* de la thèse.



DCS/95 9486/LP

Figure I.2: Configuration du réacteur nucléaire de Three Mile Island à l'issue de l'accident, Broughton et al. (1989)

I.2 La solidification des mélanges

Structures cristallines

Les interfaces solide–liquide, au cours des solidifications non eutectiques des mélanges, possèdent en général une morphologie très irrégulière, qualifiée de dendritique. La zone double–phase est constituée du liquide et d’un ensemble de *dendrites colonnaires*, qui possèdent un axe de symétrie, ou de *grains équiaxes* (ou dendrites équiaxes, à symétrie sphérique, figure I.3). Si une région de la zone biphasée est formée d’une phase solide consolidée, non transportée par le liquide, cette région constitue la *zone pâteuse* du mélange.

La croissance de dendrites colonnaires apparaît lorsqu’un refroidissement est imposé à un système, par l’une de ses extrémités. La zone pâteuse colonnaire prend naissance au voisinage de cette extrémité, et progresse d’une manière directionnelle dans le sens opposé à celle du flux de chaleur. La croissance de grains équiaxes, en revanche, se produit au sein d’un liquide surfondu (plus froid que le solide du grain), et la chaleur latente est libérée dans le liquide avoisinant. Plusieurs théories ont été proposées pour expliquer la naissance de grains équiaxes. Il est admis que ces grains peuvent provenir de fragments de dendrites colonnaires (Gu *et al.*, 1997). Des expériences suggèrent que cette fragmentation est provoquée par la dissolution du solide dendritique, par du liquide enrichi en soluté (Pollock & Murphy, 1996). La fragmentation peut aussi résulter des contraintes mécaniques, exercées par l’écoulement du liquide, sur les dendrites colonnaires (Flemings, 1991). D’autres théories suggèrent que la nucléation des grains se fait directement au sein de zones liquides surfondues, au voisinage de la région des sommets de dendrites colonnaires (Wang & Beckermann, 1994).

Les structures dendritiques existent notamment dans les alliages métalliques. Dans certains moulages industriels, les grains équiaxes sont favorisés, car associés à une macroségrégation réduite, et des propriétés mécaniques plus isotropes (Beckermann & Wang, 1995). Le brassage électromagnétique dans les coulées continues, entre autres techniques, permet d’affiner la taille de grains, en augmentant l’intensité de la convection du liquide, et en favorisant ainsi la fragmentation (mécanique ou par dissolution) des dendrites colonnaires (Flemings, 1991). Dans d’autres produits, tels que les matériaux magnétiques, les dendrites colonnaires, unidirectionnelles, sont préférées (Wang, 1994).

En réalité, un phénomène d’instabilité des interfaces lisses (*instabilité morphologique*) est à l’origine de la morphologie dendritique (Caroli *et al.*, 1991 ; Coriell & McFadden, 1993). Des études analytiques de ce phénomène ont été réalisées pour la solidification des mélanges binaires, dans le cas des régimes de diffusion thermique et solutale (Mullins & Sekerka, 1964 ; Trivedi & Kurz, 1986). Cette instabilité a également été étudiée pour la solidification en présence de convection naturelle, par des approches analytiques (Hurle *et al.*, 1982 ; Caroli *et al.*, 1985 ; Misbah, 1985) ou numériques (Coriell *et al.*, 1980 ; Jenkins, 1990). Un mélange peut effectivement solidifier avec une interface lisse, si le gradient de température à l’interface est suffisamment grand, ou si la vitesse de croissance est très petite (Prescott & Incropera, 1996). Toutefois, cette situation est rare dans la plupart des cas pratiques, pour lesquels les interfaces sont instables (Beckermann, 1987). Par conséquent, l’approche habituelle consiste à supposer *a priori* l’existence d’une zone pâteuse, au cours de la solidification non eutectique d’un mélange. Cette région est alors classiquement assimilée à un milieu poreux, saturé par un liquide multi–composants.

Les différentes échelles du problème

La physique de la solidification met en jeu de multiples échelles, telles que celle de l'atome, des interfaces, du grain ou du système (Beckermann & Viskanta, 1993). En particulier, les transferts d'atomes gouvernent le phénomène de nucléation, la structure des interfaces, et la cinétique d'attachement (transfert d'atomes du liquide vers le cristal) pouvant modifier les températures d'équilibre sur les interfaces (Kurz & Fisher, 1989).

La description des transferts de chaleur et de masse, qui fait l'objet central la thèse, se fait généralement à deux échelles d'espace, beaucoup plus grandes que l'échelle atomique, mais elles-mêmes nettement séparées. *L'échelle microscopique* est celle des structures dendritiques. Elle peut être représentée par les espacements primaire (λ_1) ou secondaire (λ_2) de dendrites (figure I.3), qui sont respectivement de l'ordre de la centaine et de la dizaine de micromètres. *L'échelle macroscopique* (représentée par la longueur L), quant à elle, est caractéristique des variations des grandeurs physiques de phase (grandeurs moyennes), telles que les fractions volumiques solide et liquide, définies dans des volumes élémentaires représentatifs d'un mélange.

Dans les zones pâteuses, il existe des couplages importants entre différents phénomènes, caractérisés par des échelles de temps et d'espace distinctes. Par exemple, la différence de solubilité des constituants, dans les phases solide et liquide, et la diffusion moléculaire sont à l'origine de la *microségrégation* (répartition non uniforme des constituants à l'échelle des cristaux). L'écoulement du liquide peut alors conduire à une redistribution du soluté à l'échelle du système, ou *macro-ségrégation* (Flemings, 1974 ; Rappaz & Voller, 1990). Les effets capillaires (courbure d'interface), et d'attachement d'atomes, peuvent modifier les températures d'équilibre sur les interfaces solide-liquide (surfusions) (Kurz & Fisher, 1989), et donc influencer les échanges de chaleur et de masse aux échelles microscopiques et macroscopiques.

La convection du liquide peut résulter de différents phénomènes, tels que la contraction au cours du changement de phase, ou le mouvement de grains équiaxes (Viskanta, 1990). En général, elle est principalement induite par les gradients macroscopiques de température et de concentration (*convection naturelle thermosolutale*). Les effets de la convection sont à la fois multiples et importants : elle peut être responsable d'une répartition de grains non uniforme (Wang, 1994), influencer l'orientation des dendrites colonnaires, ou l'apparition des transitions colonnaires / équiaxes (Rappaz, 1989). En outre, la convection peut être à l'origine de certains défauts dans la fabrication des alliages : microporosité, canaux (*channels*), canaux ségrégés (*freckles*) ou veines sombres (*hot tears*) (Prescott & Incropera, 1996). Par ailleurs, il est aujourd'hui reconnu que les transports macroscopiques de chaleur et de masse, induits par l'écoulement interdendritique, peuvent altérer le taux de solidification d'une manière drastique (Huppert, 1990 ; Worster, 1991 ; Goyeau *et al.*, 1997).

Pour toutes ces raisons, il est très important de décrire, aussi bien que possible, les phénomènes de transferts au sein de la zone pâteuse. Une meilleure compréhension de ces phénomènes et de leurs interactions est en effet nécessaire. Elle représente, par exemple, un enjeu considérable pour l'optimisation des procédés de fabrication, qui permettrait d'améliorer encore davantage la qualité des alliages (Rappaz, 1989 ; Beckermann & Wang, 1995 ; Blair & Monroe, 2000).

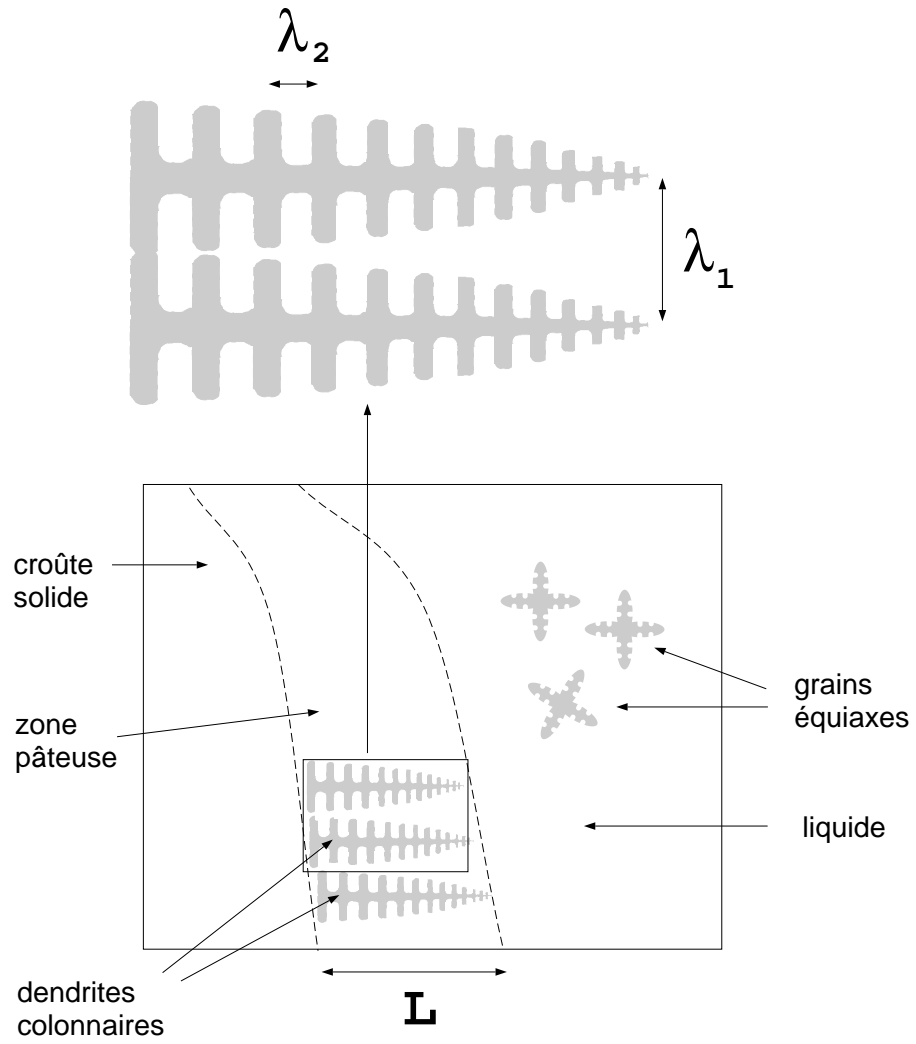


Figure I.3: *Illustration des différentes zones et échelles mises en jeu*

I.3 Etat de l'art de la modélisation macroscopique

Depuis plus d'une vingtaine d'années, la modélisation macroscopique de la solidification des mélanges a reçu une attention particulière. Dans les premiers modèles, qualifiés de *multi-domaines*, les échanges macroscopiques étaient décrits dans les régions solide, liquide et double-phase par trois ensembles distincts d'équations (Szekely & Jassal, 1978 ; Ridder *et al.*, 1981 ; Worster, 1991). Toutefois, à cause des difficultés algorithmiques relatives au suivi des frontières délimitant les trois domaines, ces modèles n'étaient pas adaptés à la prédiction d'interfaces irrégulières (Prescott *et al.*, 1991). Ceci a motivé le développement de *modèles continus*, qui décrivent les échanges à l'aide d'un unique ensemble d'équations. Les variables représentent ainsi des quantités physiques moyennes (vitesse, pression, température, fractions massiques d'espèces) définies dans des volumes élémentaires représentatifs (V.E.R.) du mélange. Ces modèles continus ont été établis à l'aide de deux approches différentes.

Dans la *théorie des mélanges*, un milieu monophasique équivalent au système est considéré : les équations de phase sont sommées afin d'obtenir un ensemble d'équations de mélange. Les interactions entre phases sont alors décrites par des lois semi-empiriques (Hills *et al.*, 1983 ; Voller & Prakash, 1987 ; Voller *et al.*, 1989). Bennon & Incropera (1987a) ont ainsi établi l'un des premiers modèles continus décrivant les transferts de masse, de quantité de mouvement et d'énergie, mis en jeu dans la solidification des mélanges binaires. Ce modèle a été étendu, pour la prise en compte des phénomènes de surfusion thermique et de transport du solide (Prescott *et al.*, 1992). Ni & Incropera (1995a,b) ont aussi intégré la surfusion solutale (Kurz & Fisher, 1989) et la nucléation de grains dans ce modèle continu.

Cependant, dans la théorie des mélanges, les interactions entre phases étaient modélisées d'une manière purement heuristique. C'est pourquoi d'autres types de modèles continus ont été établis par la méthode de *prise de moyenne volumique* (Beckermann & Viskanta, 1988, 1993 ; Ganesan & Poirier, 1990 ; Ni & Beckermann, 1991). A l'aide de théorèmes de prise de moyenne (Whitaker, 1969 ; Marle, 1982), les équations microscopiques de transport sont intégrées dans chaque phase, dans des volumes élémentaires représentatifs d'un mélange. Les équations macroscopiques, ainsi obtenues, contiennent des intégrales de surface représentant les échanges et les interactions entre phases, dus à la présence de l'interface solide-liquide. Les arguments, avancés en faveur de cette approche, étaient qu'elle pouvait clarifier le lien existant entre les variables microscopiques et macroscopiques (Ni & Beckermann, 1991). Cela facilitait alors la formulation de lois constitutives (Ni & Beckermann, 1991 ; Beckermann & Viskanta, 1993 ; Wang & Beckermann, 1996a). Toutefois, dans ces modèles, la détermination des propriétés effectives s'est faite de manière semi-empirique.

Différentes descriptions des échanges de masse

Si des modèles à deux températures moyennes, relatives à chacune des phases solide et liquide, ont été établis (Prakash, 1990a, Ni & Beckermann, 1991), la résolution numérique de ces modèles a clairement montré que ces deux températures étaient quasiment égales dans un volume élémentaire représentatif du mélange (Prakash, 1990b ; Ni & Beckermann, 1993). Cela a principalement été attribué à l'importance du nombre de Lewis (rapport de la diffusivité thermique sur la diffusivité moléculaire) dans les alliages usuels (Beckermann

& Wang, 1995). Ainsi, cette approche a été abandonnée au profit de l'hypothèse d'équilibre thermique local (égalité des températures moyennes des deux phases) qui est généralement introduite.

Dès lors, les modèles se distinguent essentiellement par la description physique des échanges de masse, au sein d'un volume élémentaire représentatif. La répartition du soluté, à l'échelle des cristaux, a été décrite principalement à l'aide des trois approches suivantes.

Règle du levier :

L'une des premières approches a consisté à supposer que le liquide et le solide sont parfaitement mélangés dans un volume élémentaire représentatif d'un mélange binaire. Les concentrations moyennes et la fraction volumique liquide vérifient alors la *règle du levier* (Kurz & Fisher, 1989), et le transport macroscopique d'espèce est décrit par une unique équation de mélange. Cette approche a été par exemple utilisée dans le modèle de solidification des mélanges binaires de Bennon & Incropera (1987a), et dans ses extensions (Prescott *et al.*, 1992 ; Ni & Incropera, 1995a, 1995b), ainsi que dans les premiers modèles établis par prise de moyenne volumique (Beckermann, 1987 ; Beckermann & Viskanta, 1988). Krane *et al.* (1997) ont étendu cette description aux mélanges ternaires.

Les premières applications numériques de ce type de modèles continus (*modèles de type règle du levier*) ont prédit des phénomènes importants, tels que la formation de canaux, la morphologie irrégulière du liquidus (lieu des sommets de dendrites), les refusions ou la formation de structures de macroségrégation souvent observées (*A-segregates*) (Bennon & Incropera, 1987b ; Neilson & Incropera, 1991 ; Prescott & Incropera, 1991). Toutefois, les simulations numériques ont révélé des différences importantes entre les valeurs des champs prédits et mesurés (Beckermann & Viskanta, 1988 ; Christenson *et al.*, 1989 ; Prescott & Incropera, 1994 ; Prescott *et al.*, 1994). Plus récemment, Ahmad *et al.* (1998) ont appliqué un modèle de règle du levier, pour simuler la solidification des mélanges binaires Pb–Sn et Sn–Pb. Cette étude a confronté les méthodes numériques des volumes finis et des éléments finis. Si les comparaisons avec l'expérience de Hebditch & Hunt (1974) se sont révélées satisfaisantes, les résultats des deux méthodes numériques ont été assez différentes l'une de l'autre. En particulier, le nombre et la direction des canaux n'étaient pas les mêmes selon la méthode utilisée.

Modèles de type Scheil :

Etant donné la faiblesse de la diffusion moléculaire dans la phase solide de la plupart des mélanges binaires, à l'exception de Fe–C (Kurz & Fisher, 1989), la description de Scheil est souvent préférée à la règle du levier (Rappaz & Voller, 1990). En effet, si le modèle de Scheil (Flemings, 1974) suppose toujours que le liquide est parfaitement mélangé dans un volume élémentaire représentatif d'un mélange binaire, il néglige en revanche la diffusion moléculaire dans le solide. En conséquence, il existe une répartition non uniforme du soluté ou *microségrégation* dans le solide à l'échelle des cristaux. Le transport macroscopique d'espèce est alors décrit par une équation de mélange, habituellement associée à un bilan de masse reliant les concentrations moyennes solide et liquide, la concentration du solide sur l'interface et la fraction volumique liquide (Felicelli *et al.*, 1993). Des modèles macroscopiques, utilisant cette description (*modèles de type Scheil*) ont par exemple été établis par Voller *et al.* (1989) et Poirier *et al.* (1991), et Felicelli *et al.* (1991, 1993) ont montré que cette approche pouvait prédire la formation de canaux ségrévés dans des mélanges

binaires. Felicelli *et al.* (1998) ont ensuite étendu la description de Scheil à un mélange multi-composants, et leur modèle a permis de simuler la formation de canaux ségrégués en trois dimensions. Cette étude a révélé l'existence de régions de croissance accrue du solide, autour des canaux, qui apparaissent au sommet de la zone pâteuse. Ces structures (*volcanoes*) n'avaient pas été prédites par les simulations bidimensionnelles (Felicelli *et al.*, 1991, 1993).

Combeau *et al.* (1990), Roch *et al.* (1990, 1991) et Vannier *et al.* (1992) ont combiné les deux descriptions précédentes dans leurs modèles de solidification des aciers : la règle du levier est utilisée pour le carbone, dont la diffusion est importante, alors que la concentration des autres constituants, qui ne diffusent pas, est reliée à la fraction volumique liquide selon la description de Scheil.

Modèles multi-phase

Conscients des limites des descriptions précédentes, des auteurs ont récemment introduit les effets de diffusion microscopique d'espèce dans des modèles macroscopiques. La micro-ségrégation est alors décrite à l'aide de coefficients d'échange massique (Annexe C), qui mesurent l'importance du transfert de masse, dû à la diffusion et la convection, à travers l'interface solide-liquide. La description mathématique de ce phénomène est diphasique, lorsqu'une seule phase liquide est considérée (Prakash, 1990a ; Schneider & Beckermann, 1995a), ou triphasique, si les liquides inter- et extradendritiques sont considérés comme deux phases distinctes, séparées par l'enveloppe de dendrites (Wang & Beckermann, 1992, 1993, 1994 ; Wang, 1994 ; Beckermann & Wang, 1995). Cette catégorie de modèles est décrite plus en détails dans l'Annexe C de la thèse, et Beckermann & Wang (1995) ont publié une revue de leurs modèles multi-phase de solidification colonnaire et équiaxe des mélanges binaires.

Récemment, Gu & Beckermann (1999) ont simulé la solidification dendritique colonnaire d'un alliage à onze constituants, dans un moule de grande taille, à l'aide d'un modèle décrivant la diffusion microscopique d'espèce dans le solide. Les résultats ont été comparés aux mesures faites sur un lingot d'acier industriel, sectionné et analysé. Malgré un bon accord global, les calculs n'ont pas prédit la zone de macroségrégation négative, observée dans la partie inférieure du lingot. Ceci a été attribué à une absence de modélisation de la sédimentation de grains équiaxes. Beckermann & Wang (1996) ont appliqué leur modèle multi-phase de transport de cristaux équiaxes, et comparé leurs résultats à une expérience de solidification du mélange $\text{NH}_4\text{Cl}-\text{H}_2\text{O}$ dans une cavité carrée. La simulation a globalement reproduit certains des phénomènes importants, observés dans l'expérience, tels que la croissance et le transport de grains, et la sédimentation des grains à la base du système. Selon les auteurs, l'accord entre la simulation et l'expérience est raisonnable, mais il pourrait être meilleur si le phénomène de fragmentation de dendrites était introduit dans la modélisation.

Actuellement, de nombreux phénomènes n'ont pas encore été modélisés. En particulier, certains mécanismes de la solidification équiaxe demeurent mal compris. La nucléation est notamment abordée d'une manière assez simplifiée : Wang & Beckermann (1996b) utilisent par exemple le modèle de nucléation instantanée de Stefanescu *et al.* (1990). Des modèles quantitatifs seraient donc nécessaires, pour simuler la naissance et la destruction de grains, surtout pour des régimes de convection dominante, dans lesquels la fragmentation, l'agglomération et la refusion du solide peuvent être importantes (Beckermann & Wang,

1995).

La modélisation de la turbulence, dans les phénomènes de solidification, n'a reçu que peu d'attention, même si quelques études ont utilisé le modèle classique $K-\epsilon$ (Prescott & Incropera, 1995 ; Thomas *et al.*, 2000). Prescott & Incropera (1996) soulignent pourtant que la turbulence intervient dans beaucoup de procédés. La technique du brassage électromagnétique, par exemple, peut générer de la turbulence en augmentant l'intensité de la convection. Ils constatent, cependant, que son influence globale sur un système n'est pas bien connue.

I.4 Limites des approches actuelles

Dans la synthèse précédente des approches actuelles, nous avons souligné que certaines différences quantitatives ont été constatées, entre les résultats des simulations numériques et des études expérimentales (Prescott & Incropera, 1994 ; Prescott *et al.*, 1994 ; Beckermann & Wang, 1996 ; Gu & Beckermann, 1999). Ces différences peuvent parfois être attribuées à l'utilisation de la règle du levier ou du modèle de Scheil, qui négligent les effets importants de diffusion microscopique de masse. Des incertitudes demeurent aussi quant aux propriétés physiques des matériaux, et comme le suggèrent de récentes études (Ahmad *et al.*, 1998), des recherches sont nécessaires afin de clarifier la pertinence des différentes méthodes numériques.

Dans tous les cas, on constate surtout un manque important de discussion sur l'importance des différents termes résultant du changement d'échelle, représentatifs des échanges interfaciaux (termes de Darcy ou d'échange massique), ou des effets des phénomènes microscopiques (dispersion, tortuosité des cristaux) sur les échanges macroscopiques. En conséquence, l'une des principales limites des modèles actuels réside dans la définition des *propriétés de transport effectives* de la zone pâteuse.

En effet, la *perméabilité* des zones dendritiques colonnaires est généralement reliée à la porosité (fraction volumique liquide) par la loi physique de Kozeny–Carman (Bear, 1972), représentative des milieux poreux homogènes et isotropes. Or, les zones pâteuses colonnaires sont à l'évidence très hétérogènes : la porosité varie d'une valeur nulle à l'unité au sein de la zone pâteuse, dans la direction de la croissance dendritique. En conséquence, l'ensemble des propriétés macroscopiques (telles que la perméabilité) varie *continûment* au sein de la zone pâteuse. Cette propriété a été qualifiée d'*hétérogénéité évolutive* (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999). De plus, des expériences ont clairement démontré la forte anisotropie des zones dendritiques colonnaires (Nasser-Rafi *et al.*, 1985, Poirier, 1987). Si Poirier (1987) a établi un modèle anisotrope, à partir de mesures (version anisotrope du modèle de Kozeny–Carman, Annexe B), des expériences numériques ont toutefois montré que ce modèle pouvait sous-estimer assez nettement la perméabilité de la zone pâteuse, en particulier au voisinage des sommets de dendrites (Ganesan *et al.*, 1992 ; Bhat *et al.*, 1995 ; Goyeau *et al.*, 1999). Une discussion plus approfondie, sur les équations macroscopiques de quantité de mouvement, et les lois de perméabilité des modèles de solidification, est développée dans le Chapitre II (II.2) et dans l'Annexe B du manuscrit.

Par ailleurs, des *coefficients d'échange massique*, récemment introduits (Wang, 1994 ; Beckermann & Wang, 1995), ont été évalués par des approches analytiques ou semi-empiriques,

décrites en détails dans l'Annexe C. Pour les coefficients des phases solides, la démarche consiste à supposer que les profils microscopiques de concentration sont paraboliques, dans des cellules représentatives des branches secondaires de dendrites (représentation plane, monodimensionnelle, de ces branches). Cela permet de calculer analytiquement une longueur de diffusion microscopique. Notons, de plus, que dans le cadre de la solidification dendritique colonnaire en présence de convection, le liquide est toujours supposé parfaitement mélangé (Schneider & Beckermann, 1995a ; Gu & Beckermann, 1999). Autrement dit, le coefficient d'échange massique du liquide est supposé infini, et les modèles ne prennent pas en compte le phénomène important de surfusion solutale, en particulier au voisinage des sommets de dendrites (Kurz & Fisher, 1989).

Enfin, dans la définition des *diffusivités effectives*, les phénomènes de *dispersion*, ainsi que la géométrie des structures (*tortuosité des dendrites*), ont été négligés. Cependant, la nécessité de définir des tenseurs de diffusivité effectifs a été parfois soulignée (Beckermann & Wang, 1995 ; Prescott & Incropera, 1996). Dans cette dernière référence, il est clairement mentionné que l'influence de la dispersion n'est pas encore connue. Les auteurs soulignent que des recherches sont nécessaires, pour déterminer dans quelles conditions la dispersion doit être considérée, ou peut être négligée, dans les problèmes de solidification.

1.5 Motivations et choix de la méthode

La thèse a pour objet d'établir, et de résoudre, un modèle macroscopique complet, décrivant les transferts de quantité de mouvement, de masse et d'énergie, au cours de la solidification des mélanges binaires. L'étude est restreinte au cas des zones dendritiques colonnaires, en l'absence de transport du solide, et aux régimes d'écoulement laminaire.

Afin de proposer des éléments de discussion sur l'établissement d'un modèle macroscopique, et d'apporter une réponse aux limites et au caractère semi-empirique, que nous avons soulignés, des approches actuelles, nous avons décidé de mettre en œuvre la *méthode de prise de moyenne volumique*.

Cette méthode consiste à intégrer, à l'aide de théorèmes de prise de moyenne spatiale (Marle, 1967 ; Whitaker, 1969 ; Gray, 1975), des équations de transport microscopiques, dans des volumes élémentaires représentatifs d'un système multiphasique. Les phénomènes de dispersion et d'échanges interfaciaux, ou les effets de la géométrie locale du milieu (tortuosité) apparaissent alors, dans les équations moyennées, sous la forme de termes faisant intervenir les grandeurs physiques microscopiques.

L'utilisation de la technique de *fermeture* permet alors d'exprimer chacun de ces termes en fonction des grandeurs moyennes, en définissant des propriétés de transport effectives. Celles-ci sont alors solutions de *problèmes de fermeture* (Carbonell & Whitaker, 1984 ; Crapiste *et al.*, 1986 ; Whitaker, 1986a).

De très nombreux auteurs ont utilisé, de manière conjointe, les méthodes de prise de moyenne et de fermeture, pour modéliser les transferts de masse (Zanotti & Carbonell, 1984 ; Plumb & Whitaker, 1988 ; Quintard & Whitaker, 1994a ; Chella *et al.*, 1998), d'énergie (Quintard & Whitaker, 1995 ; Batsale *et al.*, 1996 ; Quintard *et al.*, 1997) et de quantité de mouvement (Whitaker, 1986a, 1996 ; Quintard & Whitaker, 1988 ; Barrère *et al.*,

1992 ; Quintard & Whitaker, 1994b), dans des milieux poreux ou multi-phase, homogènes ou hétérogènes. Dans certaines de ces études, les valeurs théoriques et expérimentales des propriétés effectives ont été comparées : les calculs des tenseurs de perméabilité (Whitaker, 1996), de diffusion–dispersion massique (Plumb & Whitaker, 1988) et thermique (Quintard *et al.*, 1997), ainsi que les tenseurs de conductivité thermique effective (en régime de diffusion, Nozad *et al.*, 1985), sont en bon accord avec les résultats d’études expérimentales.

Ainsi, nous avons également choisi de mettre œuvre, de manière conjointe, les méthodes de prise de moyenne volumique et de fermeture pour établir notre modèle. Cette approche semble en effet particulièrement adaptée à la prise en compte des effets des phénomènes microscopiques (dispersion, tortuosité) et des échanges interfaciaux, dans l’expression des équations macroscopiques de transport, et dans la représentation des propriétés effectives de la zone pâteuse.

En outre, il est important de rappeler que Benihaddadene (1997) et Goyeau *et al.* (1997, 1999) ont étendu l’application des méthodes de prise de moyenne, et de fermeture, au cas des milieux poreux à *hétérogénéités évolutives*. Ce type de structure pose effectivement un problème théorique important, car leurs propriétés macroscopiques dépendent non seulement du point considéré, mais elles peuvent aussi dépendre, *a priori*, de la taille du volume de prise de moyenne. Cependant, les auteurs précédents ont clairement montré que les techniques de prise de moyenne et de fermeture restaient valides, dans le cadre de contraintes d’échelles de longueur précises, caractérisant les structures à hétérogénéités évolutives. Ces études ont en effet permis d’établir une forme hétérogène de l’équation de Darcy, par prise de moyenne des équations locales de Stokes, et de déterminer le tenseur de perméabilité, dans des structures dendritiques schématisées et réelles. Ceci constitue donc un résultat très important, sur lequel nous pourrions nous appuyer dans le développement théorique de notre modèle.

I.6 Objectifs de la thèse

Les objectifs de la thèse sont les suivants :

- 1. Etablir, par prise de moyenne volumique, une modélisation macroscopique de l’écoulement, et des transferts de masse et de chaleur, dans un mélange binaire en cours de solidification.**

Nous rappelons que l’étude est restreinte au cas des zones pâteuses constituées de dendrites colonnaires. Le phénomène de transport de la phase solide est négligé, et les écoulements étudiés sont laminaires.

Le développement complet de l’établissement du modèle est présenté dans le Chapitre II du manuscrit. Une discussion approfondie est menée, sur l’importance relative des différents termes issus du changement d’échelle. L’objectif de ce travail est de justifier la forme des équations macroscopiques de transport, et d’affiner la définition des propriétés effectives de la zone pâteuse.

Après une description des hypothèses et du modèle à l’échelle des microstructures (II.1), le deuxième paragraphe est consacré à la prise de moyenne de l’équation de quantité de mouvement (II.2). Les deux paragraphes suivants présentent respective-

ment l'établissement des équations macroscopiques de conservation des espèces (II.3) et de l'énergie (II.4).

Les équations macroscopiques sont effectivement établies d'une manière séquentielle, grâce à un découplage des différents problèmes de fermeture. Ce découplage s'avère possible lorsque l'on néglige les effets de la vitesse d'interface dans l'établissement de ces problèmes. Il nécessite aussi l'utilisation de certaines approximations, qui sont introduites et clairement identifiées dans l'établissement du modèle macroscopique.

La prise de moyenne est effectuée dans le cadre de contraintes d'échelles de longueur précises, caractérisant les variations spatiales continues de la géométrie dendritique (hétérogénéités évolutives) (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999). Les différents termes, apparaissant dans les équations moyennées, sont évalués à l'aide d'analyses d'ordre de grandeur, fondées principalement sur ces contraintes géométriques.

Une version « complète » du modèle est d'abord résumée (II.5). Certains termes non classiques, relatifs au transfert macroscopique de masse, faisant intervenir des coefficients de transport (pseudo-vitesses) (Zanotti & Carbonell, 1984 ; Quintard & Whitaker, 1994a ; Chella *et al.*, 1998), ou des gradients de porosité, apparaissent dans cette version du modèle. Une discussion, fondée sur des travaux précédents (Quintard & Whitaker, 1994a ; Quintard *et al.*, 1997), ainsi que sur une analyse d'ordre de grandeur, conduit ensuite à négliger ces termes. La version simplifiée du modèle macroscopique, ainsi obtenue, est alors résumée dans le paragraphe II.6.

Ce modèle est fondé sur l'hypothèse classique d'équilibre thermique local (modèle à une équation d'énergie). En revanche, la description des échanges macroscopiques de masse est *diphásique*. Ainsi, le transfert d'espèce, à travers l'interface solide-liquide (microségrégation), est modélisé par des coefficients d'échange massique, relatifs à chacune des phases solide et liquide.

2. Construire et mettre en œuvre une méthode numérique pour la résolution du modèle.

Plus précisément, nous développons dans le Chapitre III une méthode de volumes finis en deux dimensions. Une attention particulière est notamment portée sur la discrétisation des équations de masse (III.2), qui s'avère délicate dans les modèles décrivant les échanges de masse interfaciaux (Wang & Beckermann, 1996b ; Tardy & Quintard, 1999). Un choix particulier d'inconnues et d'algorithme permet en effet d'obtenir une résolution stable des équations de masse. La méthode développée se distingue ainsi des schémas à deux pas de temps, utilisés jusqu'à présent pour la résolution des modèles multi-phase de solidification des mélanges binaires (Wang, 1994 ; Wang & Beckermann, 1995, 1996b).

Après quelques calculs classiques de validation numérique, sur des problèmes de convection naturelle, l'algorithme établi est mis en œuvre pour simuler la solidification du mélange binaire $\text{NH}_4\text{Cl}(10\%)\text{-H}_2\text{O}$ dans une cavité carrée (Voller *et al.*, 1989). L'objectif principal de cette première application est de tester, et de démontrer, la pertinence et la robustesse de la méthode numérique développée. Toutefois, elle permet aussi de faire une première évaluation du potentiel du modèle physique.

Les conclusions et perspectives de la thèse font l'objet du Chapitre IV.

Chapitre II

Etablissement du modèle physique

Chapitre II

Etablissement du modèle physique

Ce chapitre présente le développement complet de l'établissement du modèle macroscopique de solidification des mélanges binaires. Nous commençons par une description des différentes hypothèses physiques et des équations de bilan décrivant les transferts couplés de chaleur et de masse, à l'échelle des microstructures cristallines. La géométrie du milieu poreux considéré, représentant la zone dendritique colonnaire du mélange binaire, est également caractérisée par des contraintes d'échelles de longueur précises. Nous procédons successivement à la prise de moyenne volumique et à la fermeture des équations macroscopiques de quantité de mouvement, d'espèce et d'énergie. Un modèle complet, comprenant un certain nombre de termes non classiques associés aux échanges macroscopiques de masse, est résumé dans un premier temps. A l'issue d'une discussion sur l'importance de ces termes, ils sont finalement négligés. La version définitive du modèle macroscopique, ainsi obtenue, est à son tour résumée, et ses principales caractéristiques et originalités sont décrites de manière détaillée dans la conclusion de ce chapitre.

II.1 Position du problème à l'échelle des microstructures

II.1.1 Hypothèses physiques

Le problème décrivant les échanges de masse, de chaleur, et de quantité de mouvement, à l'échelle des microstructures cristallines du mélange binaire (figure II.1), s'inscrit dans le cadre des hypothèses suivantes :

- Les phases liquide et solide du mélange sont constituées de deux espèces chimiques α et β *parfaitement miscibles*. Les concentrations massiques de chaque espèce dans la phase k sont définies de la manière suivante :

$$C_k^\alpha = \frac{\bar{\rho}_k^\alpha}{\rho_k} \quad , \quad C_k^\beta = \frac{\bar{\rho}_k^\beta}{\rho_k} \quad (\text{II.1.1})$$

où $\bar{\rho}_k^\alpha$ et $\bar{\rho}_k^\beta$ sont les densités partielles des espèces α et β dans la phase k (Bennon & Incropera, 1987a), définies par :

$$\bar{\rho}_k^\alpha = \varepsilon_k^\alpha \rho_k^\alpha \quad , \quad \bar{\rho}_k^\beta = \varepsilon_k^\beta \rho_k^\beta \quad (\text{II.1.2})$$

où ε_k^α et ε_k^β sont les fractions volumiques des espèces α et β dans la particule liquide ou solide, et ρ_k^α et ρ_k^β les densités des corps purs α et β présents dans la phase k .

Ainsi, les concentrations et les densités partielles vérifient :

$$\begin{cases} \rho_k = \bar{\rho}_k^\alpha + \bar{\rho}_k^\beta & (a) \\ C_k^\alpha + C_k^\beta = 1 & (b) \end{cases} \quad (\text{II.1.3})$$

- Le mélange binaire est *idéal*. L'enthalpie massique de chaque phase (s, ℓ) s'exprime donc en fonction des enthalpies des corps purs (α, β), constituants le mélange, de la manière suivante :

$$H_k = \sum_{i=\alpha}^{\beta} C_k^i H^i \quad , \quad k = \ell, s \quad (\text{II.1.4})$$

- L'*équilibre thermodynamique* est supposé sur l'interface solide–liquide. Cela se traduit, d'une part, par l'égalité des température des deux phases, lorsque les transferts interfaciaux sont réversibles (Bouré & Delhaye, 1982) :

$$T_s = T_\ell \quad \text{sur} \quad A_{\ell s} \quad (\text{II.1.5})$$

ainsi que par l'égalité des potentiels chimiques :

$$\mu_s^i = \mu_\ell^i \quad , \quad i = \alpha, \beta \quad \text{sur} \quad A_{\ell s} \quad (\text{II.1.6})$$

Lorsque les effets de courbure de l'interface, et de cinétique d'attachement d'atomes (transferts d'atomes du liquide vers le cristal), sur la température d'équilibre, sont négligés (Flemings, 1974, Kurz & Fisher, 1989), l'égalité précédente se traduit par les relations :

$$C_s^\alpha = g_s(T_s) \quad \text{sur} \quad A_{\ell s} \quad (\text{II.1.7})$$

$$C_\ell^\alpha = g_\ell(T_\ell) \quad \text{sur} \quad A_{\ell s} \quad (\text{II.1.8})$$

où g_s et g_ℓ désignent, respectivement, les équations du solidus et du liquidus du diagramme de phase.

- Les flux microscopiques de diffusion massique \mathbf{J}_k^i et thermique \mathbf{q}_k sont décrits par les lois de Fick et de Fourier (Bird *et al.*, 1960), respectivement :

$$\mathbf{J}_k^i = -\rho_k D_k \nabla C_k^i \quad , \quad i = \alpha, \beta \quad , \quad k = \ell, s \quad (\text{II.1.9})$$

$$\mathbf{q}_k = -\lambda_k \nabla T_k \quad , \quad k = \ell, s \quad (\text{II.1.10})$$

- Le transport, de même que les déformations élastiques (Caroli *et al.*, 1991) ou la dilatation de la phase solide sont négligés, d'où :

$$\mathbf{v}_s = 0 \quad (\text{II.1.11})$$

en tout point du solide.

- La viscosité dynamique du liquide est supposé constante. De plus, les effets de variation de densité sur les contraintes visqueuses sont négligés (Gray & O'Neill, 1976).
- Les masses volumiques, les conductivités thermiques et les diffusivités massiques du solide et du liquide ne varient de manière significative qu'à l'échelle macroscopique L . Autrement dit, les fluctuations spatiales (A.8, Annexe A) de ces grandeurs sont négligées à l'intérieur de chaque volume élémentaire représentatif (V.E.R.) V (figure II.1) du système considéré.

II.1.2 Equations de conservation

Les échanges à l'échelle microscopique, dans le mélange binaire (figure II.1), sont décrits par les équations volumiques de continuité des deux phases, de quantité de mouvement du liquide, d'espèce et d'énergie des deux phases, figurant dans la Table 1 (Ganić *et al.*, 1985). Elles sont associées aux équations de saut, traduisant la conservation de masse, d'espèce et d'énergie sur l'interface solide-liquide (Caroli *et al.*, 1991).

Ce système est complété par les relations d'équilibre thermodynamique (II.1.5), (II.1.7)–(II.1.8), ainsi que par les lois de Fick (II.1.9) et de Fourier (II.1.10).

Table 1: *Système d'équations de conservation microscopiques*

$$\frac{\partial \rho_s}{\partial t} = 0 \quad (\text{II.1.12})$$

$$\frac{\partial \rho_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell) = 0 \quad (\text{II.1.13})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell) + \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell \mathbf{v}_\ell) = -\nabla p_\ell + \mu_\ell \nabla^2 \mathbf{v}_\ell + \rho_\ell \mathbf{g} \quad (\text{II.1.14})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_s C_s^i) = -\nabla \cdot \mathbf{J}_s^i \quad (\text{II.1.15})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell C_\ell^i) + \nabla \cdot (\rho_\ell C_\ell^i \mathbf{v}_\ell) = -\nabla \cdot \mathbf{J}_\ell^i \quad (\text{II.1.16})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_s H_s) + \nabla \cdot \left[\sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_s^i \right] = -\nabla \cdot \mathbf{q}_s + \rho_s \dot{Q}_s \quad (\text{II.1.17})$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell H_\ell) + \nabla \cdot \left[\rho_\ell H_\ell \mathbf{v}_\ell + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_\ell^i \right] = -\nabla \cdot \mathbf{q}_\ell + \rho_\ell \dot{Q}_\ell \quad (\text{II.1.18})$$

$$\rho_s \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell s}) = \rho_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (\text{II.1.19})$$

$$\mathbf{n}_{\ell s} \cdot [\rho_s C_s^i (-\mathbf{w}_{\ell s}) + \mathbf{J}_s^i] = \mathbf{n}_{\ell s} \cdot [\rho_\ell C_\ell^i (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) + \mathbf{J}_\ell^i] \quad (\text{II.1.20})$$

$$\begin{aligned} & \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \left[\rho_s H_s (-\mathbf{w}_{\ell s}) + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_s^i + \mathbf{q}_s \right] = \\ & \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \left[\rho_\ell H_\ell (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_\ell^i + \mathbf{q}_\ell \right] \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (\text{II.1.21}) \end{aligned}$$

II.1.3 Contraintes géométriques

Avant de procéder à la prise de moyenne volumique des équations microscopiques (Annexe A), il est nécessaire de caractériser la géométrie de la zone dendritique, c'est-à-dire de déterminer les relations (contraintes) vérifiées par les différentes échelles de longueur, associées au système considéré (figure II.1), qui sont la taille du pore ℓ_ℓ , celle du volume de prise de moyenne r_0 , et celle du système macroscopique L .

Pour cela, nous nous appuyerons sur les travaux précédents, relatifs à la prise de moyenne des équations de Stokes, dans des structures schématiques (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997) et réelles (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1998, 1999).

τ	Contraintes d'échelles	
faible ($\leq 0,5\%$)	$\ell_\ell \ll r_0 \ll L_\varepsilon, L$	(II.1.22)
modéré ($\leq 4\%$)	$\ell_\ell < r_0 < L_\varepsilon, L$	(II.1.23)
grand ($> 4\%$)	$\ell_\ell \leq r_0 \sim L_\varepsilon, L$	(II.1.24)

Table 2: *Influence de τ sur les relations entre les échelles de longueur*

Contrairement aux milieux poreux homogènes où les différentes échelles caractéristiques sont clairement séparées, les zones de croissance colonnaire présentent des variations continues des propriétés macroscopiques ou *hétérogénéités évolutives*. En effet, dans ce type de structure, la porosité ε_ℓ varie de 0 à 1 dans la direction de la croissance cristalline.

En considérant une structure dendritique schématique, Goyeau *et al.* (1997) ont montré qu'en fonction du taux de variation de la géométrie, τ , dans la direction des axes primaires des dendrites (taux de variation de l'épaisseur des cristaux), on distingue trois contraintes d'échelles. Ces relations sont résumées dans la Table 2, dans laquelle L_ε est la longueur associée aux variations de la porosité :

- Lorsque le taux de variation de la géométrie τ est faible ($\tau \leq 0.5\%$), la structure poreuse est quasi-homogène et la séparation des échelles est décrite par la relation (II.1.22) (Bear, 1972).
- Pour des valeurs de τ supérieures mais restant « modérées » ($\tau \leq 4\%$), on constate, bien que moins nettement, que les échelles restent séparées et qu'elles vérifient la relation (II.1.23) (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997). Dans ces conditions, la technique de prise de moyenne volumique garde tout son sens et peut être appliquée. Toutefois, la taille du volume de prise de moyenne r_0 doit être déterminée, de telle sorte que les valeurs des grandeurs macroscopiques (telles que la porosité et la perméabilité) soient quasi-indépendantes de r_0 (Goyeau *et al.*, 1997, 1999). Ainsi, pour des zones pâteuses dont l'épaisseur est de l'ordre du millimètre, Goyeau *et al.* (1999) estiment que la valeur adéquate de r_0 est de l'ordre du dixième de millimètre.

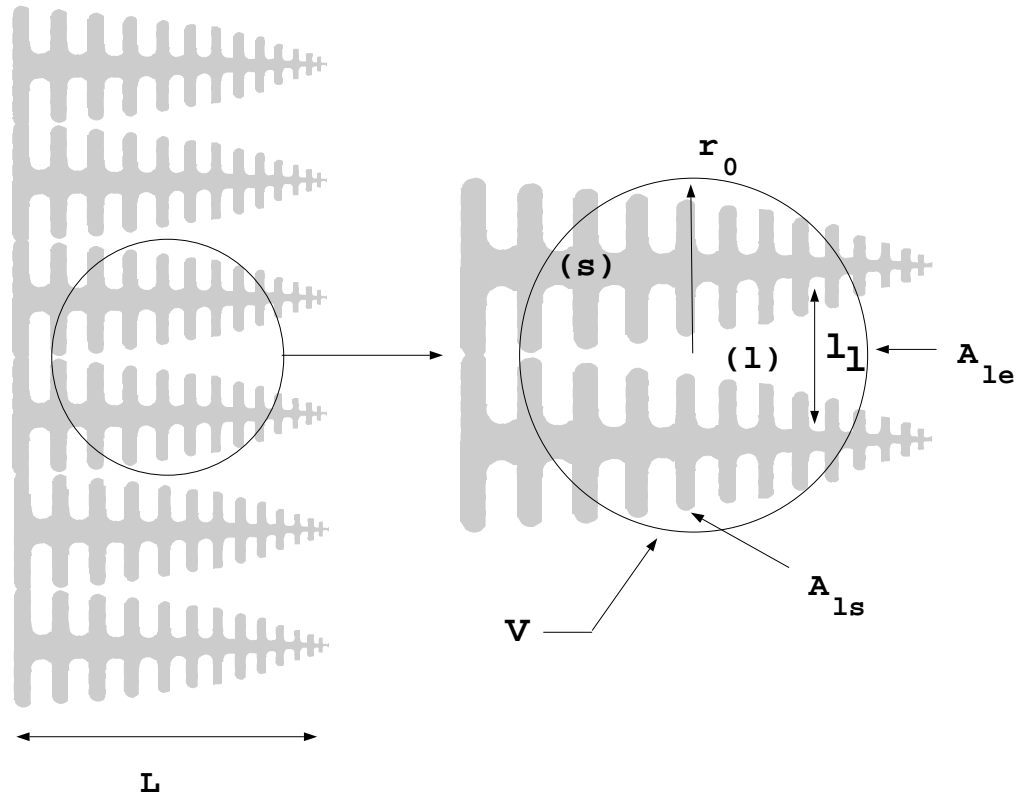


Figure II.1: Zone dendritique colonnaire et volume de prise de moyenne associé

- En revanche, pour des taux de variation supérieurs, la séparation des échelles n'est plus vérifiée (relation (II.1.24)). Dans ce cas limite, l'utilisation d'un volume de prise de moyenne « déformable » (volumes de taille non uniforme dans la zone pâteuse) pourrait s'avérer nécessaire pour obtenir une description macroscopique des écoulements et des phénomènes de transfert au sein de la zone pâteuse (Cushman, 1983).

Dans ce travail, conformément aux évaluations de τ dans des structures dendritiques réelles (Goyeau *et al.*, 1999), nous nous limiterons aux décroissances de la géométrie faibles ou modérées, représentées par les contraintes (II.1.22) ou (II.1.23).

Il est important de rappeler que le modèle macroscopique, qui sera établi à l'issue de la méthode de changement d'échelle, est un modèle *hétérogène*. En effet, l'ensemble des propriétés macroscopiques, telles que la porosité ou la perméabilité, dépendent du point. De plus, le changement de phase solide-liquide étant considéré, ces propriétés dépendent aussi, naturellement, du temps.

II.2 Equations de quantité de mouvement et de continuité de la phase liquide

II.2.1 Introduction

Les équations de quantité de mouvement, décrivant l'écoulement dans les zones pâteuses colonnaires, ont été établies à l'aide de deux approches différentes, décrites par Prescott *et al.* (1991) :

- Dans l'approche multi-domaines, (Szekely & Jassal, 1978 ; Ridder *et al.*, 1981 ; Worster, 1991), l'écoulement est décrit par la loi de Darcy dans la zone pâteuse, et par l'équation de Navier–Stokes dans la zone purement liquide du mélange. Ces deux équations sont alors couplées par des conditions appropriées, imposées sur la frontière délimitant les deux régions.
- Dans les modèles continus (théorie des mélanges ou moyennes volumiques), l'écoulement au sein de l'ensemble du mélange est décrit par une équation de Navier–Stokes, complétée par un terme de Darcy (modèle de Darcy–Brinkman) (Bennon & Incropera, 1987a ; Voller *et al.*, 1989 ; Ni & Beckermann, 1991 ; Beckermann & Viskanta, 1993 ; Schneider & Beckermann, 1995b). Cette équation est parfois complétée, également, par un terme de frottement inertiel (modèle de Darcy–Brinkman–Forchheimer) (Beckermann & Viskanta, 1988 ; Ganesan & Poirier, 1990 ; Benihaddadene, 1997).

Les auteurs des modèles récents ont souvent souligné l'importance d'une bonne description de la perméabilité de la zone pâteuse (Schneider & Beckermann, 1995a ; Schneider *et al.*, 1997), car elle influence fortement les échanges, et plus particulièrement l'intensité de la macroségrégation au sein d'un mélange (Roch *et al.*, 1991).

Dans la plupart des modèles, la perméabilité est reliée à la porosité de la zone pâteuse par la loi de Kozeny–Carman (Bear, 1972), qui est pourtant adaptée aux milieux poreux homogènes. L'Annexe B donne une description de ce modèle, dans ses variantes isotrope et anisotrope, tel qu'il a été appliqué dans la littérature à la solidification dendritique.

Si la version isotrope de ce modèle a été très souvent utilisée (Bennon & Incropera, 1987b ; Voller & Prakash, 1987 ; Schneider *et al.*, 1997 ; Gu & Beckermann, 1999), des études ont par ailleurs montré la forte anisotropie des zones pâteuses colonnaires (Nasser-Rafi *et al.*, 1985 ; Poirier, 1987).

C'est pourquoi plusieurs études numériques ont comparé les résultats obtenus en utilisant une loi de perméabilité isotrope ou anisotrope. Dans l'étude de Sinha & Sundararajan (1992), qui néglige la macroségrégation, le modèle de Kozeny–Carman anisotrope (Annexe B) établi par Poirier (1987) a été utilisé. Les résultats ont montré une influence significative de l'anisotropie lorsque l'épaisseur de la zone pâteuse est assez grande, et pour des nombres de Rayleigh thermiques importants. Schneider & Beckermann (1995b) utilisent également le modèle de Kozeny–Carman isotrope, ainsi que sa version anisotrope (Poirier, 1987), combinée aux corrélations analytiques correspondant à des arrangements de cylindres (Sangani & Acrivos, 1982 ; Drummond & Tahir, 1984) (Annexe B). Leurs résultats

mettent en évidence l'influence de l'anisotropie de la perméabilité sur les structures de macroségrégation : les canaux (zones enrichies en soluté), dans la zone pâteuse du mélange binaire Pb–Sn, sont plus longs et plus verticaux lorsque le modèle anisotrope est utilisé. L'approche de Yoo & Viskanta (1992), en revanche, est un peu différente des deux précédentes. Ils supposent, en effet, que la moyenne géométrique des composantes du tenseur de perméabilité (normale et parallèle aux axes primaires de dendrites) est représentée par la loi de Kozeny–Carman isotrope. Le rapport des deux composantes de perméabilité est alors un paramètre. Les calculs, relatifs au mélange binaire $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$, montrent que ce rapport influence la macroségrégation, le phénomène de refusion, ainsi que l'étendue et la forme globale de la zone pâteuse.

Par ailleurs, des expériences numériques, réalisées sur des images de dendrites, ont permis de calculer la perméabilité des zones dendritiques colonnaires (Ganesan *et al.*, 1992 ; Bhat *et al.*, 1995 ; Goyeau *et al.*, 1999). Ces études ont été motivées par l'absence de données expérimentales pour des porosités supérieures à 0,66 (Poirier, 1987). La fragilité des structures cristallines, en effet, ne permet pas de mesurer la perméabilité dans des zones de porosité supérieures. De plus, l'extrapolation des corrélations expérimentales aux valeurs supérieures de la porosité n'est pas appropriée (Poirier, 1987). Les résultats de Goyeau *et al.* (1999) ont clairement montré, notamment, que le modèle de Kozeny–Carman anisotrope pouvait sous-estimer assez nettement la perméabilité, au voisinage des sommets de dendrites. Toutefois, davantage de calculs seraient nécessaires afin d'obtenir une description plus générale de la perméabilité.

En ce qui concerne l'établissement des équations de quantité de mouvement en milieu poreux, la prise de moyenne des équations de Stokes (Whitaker, 1986a ; Barrère *et al.*, 1992 ; Quintard & Whitaker, 1994b,c), ou de Navier–Stokes (Whitaker, 1996), a été réalisée pour les milieux poreux homogènes ou hétérogènes. Benihaddadene (1997) et Goyeau *et al.* (1997), quant à eux, ont moyenné l'équation de Stokes dans des structures dendritiques schématisées, à variations continues de porosité ou *hétérogénéités évolutives*. Goyeau *et al.* (1999) ont ensuite étendu ce travail aux zones dendritiques réelles. L'équation macroscopique obtenue est une forme hétérogène de l'équation de Darcy : les gradients de porosité apparaissent explicitement dans l'expression des termes de diffusion visqueuse.

Ce paragraphe est consacré à l'établissement des équations de quantité de mouvement, et de continuité de la phase liquide, de notre modèle de solidification des mélanges binaires. D'un point de vue plus fondamental, les objectifs sont les suivants :

- Étendre les études précédentes de changement d'échelle au cas d'un écoulement représenté par les *équations de Navier–Stokes*, en présence de *changement de phase*, dans un milieu poreux représentant une zone pâteuse colonnaire, caractérisée par des *variations continues de porosité*.
- Justifier, par une analyse d'ordre de grandeur, la faible importance des termes habituellement négligés de manière intuitive dans l'équation macroscopique de quantité de mouvement (flux de dispersion, transport de quantité de mouvement par le déplacement de l'interface solide–liquide).
- Établir les problèmes de fermeture définissant les tenseurs de perméabilité et d'inertie (représentant la correction de Forchheimer) (Whitaker, 1996). Ce point constitue la principale originalité de ce paragraphe, vis-à-vis des modèles de solidification.

II.2.2 Prise de moyenne volumique

II.2.2.1 Problème local

Les équations décrivant le transport de quantité de mouvement, à l'échelle du pore du système considéré (figure II.1), figurent dans la Table (1). En considérant de plus une condition, *a priori* inconnue, sur les valeurs de \mathbf{v}_ℓ à la frontière $A_{\ell e}$, on obtient le problème suivant :

$\frac{\partial \rho_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell) = 0 \quad (a)$	(II.2.1)
$\frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell) + \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{v}_\ell \mathbf{v}_\ell) = -\nabla p_\ell + \mu_\ell \nabla^2 \mathbf{v}_\ell + \rho_\ell \mathbf{g} \quad (b)$	
$\mathbf{n}_{\ell s} \cdot \mathbf{v}_\ell = \delta \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \mathbf{w}_{\ell s} \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (c)$	
$\mathbf{v}_\ell = f(\mathbf{r}, t) \quad \text{sur } A_{\ell e} \quad (d)$	

où $\delta = 1 - \frac{\rho_s}{\rho_\ell}$ désigne le paramètre de contraction du mélange.

Comme le précise Whitaker (1986a), la condition à la limite (II.2.1d) n'est en général connue qu'en termes de moyennes, et sa présence nous rappelle ce que l'on ignore, plutôt que ce que l'on connaît, du champ de vitesse.

II.2.2.2 Equations moyennées

La prise de moyenne volumique des équations de continuité du liquide, et de quantité de mouvement, s'effectue au moyen des théorèmes (A.10a,b), et de la décomposition de Gray (1975) (A.8) pour la vitesse et la pression :

$$\mathbf{v}_\ell = \gamma_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (II.2.2)$$

$$p_\ell = \gamma_\ell \langle p_\ell \rangle^\ell + \tilde{p}_\ell \quad (II.2.3)$$

et des propriétés (A.11), (A.14) et (A.15) qui figurent dans l'Annexe A. L'ensemble des notations relatives à la prise de moyenne sont également définies dans cette annexe.

On obtient alors les équations moyennées suivantes :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = \dot{m}_\ell \quad (a) \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) \\
 & + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) \rho_\ell \mathbf{v}_\ell dA = \quad (II.2.4) \\
 & -\varepsilon_\ell \nabla \langle p_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{g} \\
 & + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA + \mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell dA \right] \quad (b)
 \end{aligned}$$

où \dot{m}_ℓ est le taux de fusion par unité de volume, qui a pour expression :

$$\dot{m}_\ell = -\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) dA \quad (II.2.5)$$

II.2.3 Fermeture de l'équation macroscopique de quantité de mouvement

Dans les équations (II.2.4), la présence des intégrales de surface, et du flux de dispersion (Annexe A), faisant intervenir les fluctuations, ne permettent pas de calculer les champs macroscopiques de vitesse et de pression. En effet, ces termes doivent être exprimés sous forme de quantités moyennes et de propriétés de transport effectives. Ce sous-paragraphe est consacré à l'établissement des problèmes de fermeture permettant de déterminer ces propriétés, qui sont, en l'occurrence, les tenseurs de perméabilité et tenseur d'inertie (Whitaker, 1996) de la zone pâteuse.

II.2.3.1 Première équation de fermeture

Afin d'obtenir une équation portant sur l'inconnue $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$, on introduit la décomposition (II.2.2) dans (II.2.1a), multipliée par ε_ℓ , puis on retranche (II.2.4a), et l'on obtient :

$$\varepsilon_\ell \nabla \cdot (\rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell) = \rho_\ell \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell - \dot{m}_\ell \quad (\text{II.2.6})$$

L'intégration de (II.2.1c) sur A_{ℓ_s} fournit l'équation du bilan de masse global sur l'interface :

$$\dot{m}_s + \dot{m}_\ell = 0 \quad (\text{II.2.7})$$

où \dot{m}_s est le taux de solidification par unité de volume :

$$\dot{m}_s = -\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell_s}) dA \quad (\text{II.2.8})$$

On peut définir, de même que Beckermann & Viskanta (1993), la vitesse de croissance moyenne de la manière suivante :

$$\bar{w}_n = \frac{1}{A} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{sl} \cdot \mathbf{w}_{\ell_s} dA \quad \text{où } A \text{ est l'aire de } A_{\ell_s} \quad (\text{II.2.9})$$

ainsi que la surface spécifique :

$$A_v = \frac{A}{V} \quad (\text{II.2.10})$$

Le taux de solidification s'écrit alors :

$$\dot{m}_s = \rho_s A_v \bar{w}_n \quad (\text{II.2.11})$$

En introduisant cette expression dans (II.2.6), et en utilisant la décomposition (II.2.2) dans (II.2.1c), on obtient le problème suivant :

$$\rho_\ell \nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell + \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \rho_\ell = \varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell^{-1} \rho_s A_v \bar{w}_n \quad (\text{II.2.12})$$

$$\mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell = \delta \mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \mathbf{w}_{\ell_s} - \mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad \text{sur } A_{\ell_s} \quad (\text{II.2.13})$$

Pour comparer $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ et $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$, il est nécessaire d'analyser les ordres de grandeur des termes de la condition à la limite (II.2.13).

L'équation de conservation de la masse sur l'interface (II.2.1c) indique clairement que la vitesse du liquide à l'interface n'est pas nulle lors du changement de phase, lorsque les densités des deux phases sont différentes ($\delta \neq 0$).

En réalité, la contraction ($\delta < 0$) ou l'expansion ($\delta > 0$) génère un écoulement dans l'ensemble du liquide interdendritique (Prescott & Incropera, 1996), qui se superpose à l'écoulement de convection naturelle. L'écoulement de contraction/expansion peut avoir des effets sur l'instabilité morphologique (Misbah, 1985) et sur la macroségrégation (Voller, 1997). Cependant, ces effets sont en général minimes lorsque δ est petit (Davis, 1993), sauf si la convection naturelle est absente, comme ce serait le cas, par exemple, en microgravité (Chiareli & Worster, 1995). Il semble toutefois que la contraction joue un rôle important sur la formation de micropores de gaz dans la zone pâteuse (Flemings, 1974 ; Xu & Li, 1991).

Cependant, selon Prescott & Incropera (1996), l'effet de la contraction sur le champ de vitesse du liquide ne peut être significatif que pour de très forts taux de solidification, ou de très faibles perméabilités.

En outre, le paramètre δ est en général assez modéré : une valeur typique de $|\delta|$ est de 10 % pour la plupart des métaux et $\delta \simeq -20\%$ pour l'oxyde UO_2 du corium. De plus, on peut considérer que la vitesse de croissance locale $\mathbf{w}_c = \mathbf{n}_{sl} \cdot \mathbf{w}_{\ell s}$ est petite devant la vitesse moyenne du liquide, de sorte que :

$$|\delta \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \mathbf{w}_{\ell s}| \ll |\mathbf{n}_{\ell s} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell| \quad (\text{II.2.14})$$

Autrement dit, la contribution du phénomène de contraction au mouvement du liquide est négligeable, et la vitesse est essentiellement générée par la convection naturelle.

Compte tenu de (II.2.14), la condition à la limite exacte (II.2.13) se simplifie ainsi :

$$\mathbf{n}_{\ell s} \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\mathbf{n}_{\ell s} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (\text{II.2.15})$$

En outre, lorsque les transferts interfaciaux sont réversibles, les phases sont en adhérence sur l'interface (égalité des composantes tangentielles des vitesses des deux phases sur l'interface) (Bouré & Delhayé, 1982). Comme par ailleurs la vitesse du solide est supposée nulle, cela implique :

$$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.2.16})$$

On en déduit l'estimation classique de la fluctuation de vitesse (Whitaker, 1986a) :

$$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\right) \quad (\text{II.2.17})$$

Par ailleurs, la condition de séparation des échelles de longueur (Table 2) :

$$\ell_\ell < r_0 < L_v, L_\varepsilon \quad (\text{II.2.18})$$

permet également d'écrire :

$$\ell_\ell \ll L_v, L_\varepsilon \quad (\text{II.2.19})$$

De plus, on suppose que la vitesse de croissance moyenne est négligeable devant la vitesse moyenne du liquide générée par la convection naturelle :

$$|\bar{w}_n| \ll \|\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\| \quad (\text{II.2.20})$$

Finalement, on dispose de l'équation (II.2.12), associée aux contraintes nécessaires à l'analyse de l'ordre de grandeur de ses différents termes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \underbrace{\rho_\ell \nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell}_{(L1)} + \underbrace{\tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \rho_\ell}_{(L2)} = \underbrace{\varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t}}_{(R1)} + \underbrace{\varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell}_{(R2)} + \underbrace{\varepsilon_\ell^{-1} \rho_s A_v \bar{w}_n}_{(R3)} \quad (a) \\ \tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\right) \quad (b) \quad (\text{II.2.21}) \\ |\bar{w}_n| \ll \|\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\| \quad (c) \\ \ell_\ell \ll L_v, L_\varepsilon \quad (d) \end{array} \right.$$

Nous comparons successivement les termes suivants :

– (L1) et (L2) :

$$(L1) = O\left(\rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell}\right) \quad \text{et} \quad (L2) = O\left(\rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L}\right) \quad (\text{II.2.22})$$

Pour l'ordre de grandeur de (L2), nous avons supposé que la densité, qui est une grandeur macroscopique ($\rho_\ell = \langle \rho_\ell \rangle^\ell$), varie de façon significative sur la distance L du système (figure II.1). Comme $\ell_\ell \ll L$, nous avons :

$$(L2) \ll (L1) \quad (\text{II.2.23})$$

– (R1) et (R3) :

Pour exprimer $\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t}$, on applique le théorème de prise de moyenne (A.10b) (Annexe A) pour $\psi_\ell = \gamma_\ell$:

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \mathbf{w}_{\ell_s} dA \quad (\text{II.2.24})$$

D'après (II.2.9) et (II.2.10), on obtient :

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} = -A_v \bar{w}_n \quad (\text{II.2.25})$$

$$(R1) = -\varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell A_v \bar{w}_n \quad (\text{II.2.26})$$

Dans la mesure où $\rho_\ell \sim \rho_s$, on peut conclure :

$$\underline{(R1) \sim (R3)} \quad (\text{II.2.27})$$

– (R1) et (R2) :

$$(R2) = O\left(\rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_\varepsilon}\right) \quad \text{et d'après (II.2.26)} \quad \frac{(R1)}{(R2)} = O\left(\varepsilon_\ell^{-1} A_v L_\varepsilon \frac{\bar{w}_n}{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}\right) \quad (\text{II.2.28})$$

Or, la surface spécifique a pour estimation (Carbonell & Whitaker, 1984) :

$$A_v \sim \frac{\varepsilon_\ell}{\ell_\ell} \quad (\text{II.2.29})$$

d'où :

$$\frac{(R1)}{(R2)} = O\left(\frac{L_\varepsilon}{\ell_\ell} \frac{\bar{w}_n}{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}\right) \quad (\text{II.2.30})$$

D'après (II.2.21c) et (II.2.21d), on en déduit :

$$\underline{(R1) \sim (R2)} \quad (\text{II.2.31})$$

– (L1) et (R1) :

$$(L1) = O\left(\rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell}\right) \quad \text{et} \quad (R1) = -\varepsilon_\ell^{-1} \rho_\ell A_v \bar{w}_n \quad (\text{II.2.32})$$

d'où

$$\frac{(L1)}{(R1)} = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\bar{w}_n} \frac{\varepsilon_\ell}{\ell_\ell A_v}\right) = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\bar{w}_n}\right) \quad \text{d'après (II.2.29)} \quad (\text{II.2.33})$$

et (II.2.20) implique :

$$\underline{(R1) \ll (L1)} \quad (\text{II.2.34})$$

L'analyse des ordres de grandeur des termes de (II.2.21a) se résume donc ainsi :

$$\begin{cases} (L2) \ll (L1) \\ (R1) \sim (R2) \sim (R3) \ll (L1) \end{cases} \quad (\text{II.2.35})$$

Finalement, l'équation de fermeture (II.2.21a) se réduit à l'approximation usuelle des écoulements en milieu poreux, en l'absence de changement de phase (Whitaker, 1996 ; Goyeau *et al.*, 1997 ; Benihaddadene, 1997) :

$$\boxed{\nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell = 0} \quad (\text{II.2.36})$$

II.2.3.2 Deuxième équation de fermeture

Afin d'obtenir une équation de fermeture, portant sur l'inconnue $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$, on multiplie (II.2.1b) par ε_ℓ , puis on introduit les décompositions (II.2.2)-(II.2.3) dans l'équation ainsi obtenue, et on retranche l'équation (II.2.4b). En considérant, de plus, la condition à la limite approchée (II.2.16), on obtient le problème suivant :

$$\begin{aligned}
 & \varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\partial \tilde{\mathbf{v}}_\ell}{\partial t} + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell \right) \\
 & \quad - \dot{m}_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell - \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) \rho_\ell \mathbf{v}_\ell dA = \\
 & \quad - \varepsilon_\ell \nabla \tilde{p}_\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell - \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA \\
 & \quad \quad \quad - \mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell dA \right] \tag{a} \\
 & \quad \quad \quad \tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad \text{sur } A_{\ell s} \tag{b}
 \end{aligned} \tag{II.2.37}$$

Analyse des ordres de grandeur

La complexité de l'équation (II.2.37a) nous amène à analyser l'ordre de grandeur de chacun de ses termes afin de procéder à d'éventuelles simplifications. Pour cela, nous rappelons les contraintes (II.2.14), (II.2.19), (II.2.20) et (II.2.17) :

$$\ell_\ell \ll L_v, L_\varepsilon, L \tag{II.2.38}$$

$$|\delta \mathbf{w}_c| \ll |\mathbf{n}_{\ell s} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell| \tag{II.2.39}$$

$$|\bar{w}_n| \ll \|\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\| \tag{II.2.40}$$

$$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\right) \tag{II.2.41}$$

Analyse du premier membre de (II.2.37a)

- Terme d'accumulation :

Soient \tilde{t} et t^* les temps caractéristiques des variations de $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ et de $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$:

$$\frac{\partial \tilde{\mathbf{v}}_\ell}{\partial t} = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\tilde{t}}\right), \quad \frac{\partial \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{t^*}\right) \tag{II.2.42}$$

On considère alors le système formé des équations couplées (II.2.4b) et (II.2.37a), et de même que Quintard & Whitaker (1994a) pour les transports de masse en milieu poreux homogène, nous supposons la séparation des échelles de temps :

$$\tilde{t} \ll t^* \quad (\text{II.2.43})$$

de sorte que l'équation (II.2.37a) est quasi-stationnaire devant (II.2.4b). Par conséquent, le terme $\frac{\partial \tilde{\mathbf{v}}_\ell}{\partial t}$ est négligé.

- Termes convectifs :

$$\mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^{\ell^2}}{\ell_\ell}\right) \quad \text{et} \quad \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O\left(\frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^{\ell^2}}{L_v}\right) \quad (\text{II.2.44})$$

Alors (II.2.38) implique :

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \ll \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (\text{II.2.45})$$

- Terme de dispersion :

$$\nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^{\ell^2}}{L}\right) \quad (\text{II.2.46})$$

En considérant que :

$$L \sim L_v \quad (\text{II.2.47})$$

on peut conclure :

$$\nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) \sim \varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \ll \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (\text{II.2.48})$$

- Termes de changement de phase :

Les deux derniers termes du premier membre de l'équation (II.2.37a) proviennent du changement de phase. En particulier, l'intégrale de surface représente le transport de quantité de mouvement du liquide, dû au mouvement de l'interface :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) \rho_\ell \mathbf{v}_\ell dA \quad (\text{II.2.49})$$

Compte tenu de la condition à la limite approchée (II.2.37b), on a :

$$\mathbf{v}_\ell \simeq \mathbf{0} \quad \text{sur} \quad A_{\ell s} \quad (\text{II.2.50})$$

et on peut négliger l'intégrale de surface (II.2.49).

L'estimation du terme $-\dot{m}_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ est donnée par (II.2.11) et (II.2.29) :

$$-\dot{m}_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O \left(\varepsilon_\ell \rho_s \frac{\bar{w}_n \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell} \right) \quad (\text{II.2.51})$$

Par conséquent, d'après (II.2.40) et (II.2.44) :

$$-\dot{m}_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \ll \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (\text{II.2.52})$$

Finalement, $\varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell$ est le seul terme restant au premier membre de (II.2.37a).

Analyse du second membre de l'équation (II.2.37a)

- Termes de pression et de viscosité :

$$-\varepsilon_\ell \nabla \tilde{p}_\ell = O \left(\frac{\varepsilon_\ell \tilde{p}_\ell}{\ell_\ell} \right) \quad \text{et} \quad \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell = O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell^2} \right) \quad (\text{II.2.53})$$

Nous supposons que ces deux termes ont le même ordre de grandeur, ce qui se traduit par la contrainte :

$$\tilde{p}_\ell = O \left(\mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell} \right) \quad (\text{II.2.54})$$

- Termes visqueux et d'échange interfacial :

Le terme d'échange interfacial de quantité de mouvement a pour estimation :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA = O \left(A_v \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell} \right) = O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{\ell_\ell^2} \right) \quad (\text{II.2.55})$$

car $A_v \sim \frac{\varepsilon_\ell}{\ell_\ell}$ d'après (II.2.29). On peut conclure d'après (II.2.53) :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA \sim \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (\text{II.2.56})$$

- Terme de tortuosité : $\mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell dA \right]$

Pour analyser ce terme, nous utilisons la condition à la limite approchée (II.2.37b), et nous obtenons :

$$\begin{aligned} \mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell |_{\mathbf{r}} dA \right] &= \mu_\ell \nabla \cdot \left[-\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}} dA \right] \\ &= \mu_\ell \nabla \cdot \left[\nabla \varepsilon_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \right] \end{aligned} \quad (\text{II.2.57})$$

d'après la propriété (A.15), qui est valable car les moments géométriques (A.19) sont négligeables (Goyeau *et al.*, 1997, 1999) (Annexe A). Finalement,

$$\begin{aligned} \mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell dA \right] &= \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \\ &= O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_v L_\varepsilon} \right) + O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_\varepsilon^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{II.2.58})$$

Etant donné la contrainte (II.2.38), on obtient :

$$\mu_\ell \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{\mathbf{v}}_\ell dA \right] \ll \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell \quad (\text{II.2.59})$$

Finalement, seuls les trois premiers termes demeurent au second membre de l'équation de fermeture (II.2.37a). Si de plus nous divisons par ε_ℓ , l'équation (II.2.37a) se simplifie et prend la forme suivante, identique à celle obtenue par Whitaker (1996) :

$$\rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\nabla \tilde{p}_\ell + \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA \quad (\text{II.2.60})$$

II.2.3.3 Forme finale du problème de fermeture

L'analyse d'ordres de grandeurs précédente nous a permis d'établir le problème de fermeture suivant, constitué des équations (II.2.36), (II.2.60), de la condition à la limite (II.2.37b) et de la condition sur $A_{\ell e}$:

$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{v}}_\ell = 0$	(a)	
$\rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\nabla \tilde{p}_\ell + \mu_\ell \nabla^2 \tilde{\mathbf{v}}_\ell$		
$-\frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\tilde{p}_\ell \mathbf{I} + \mu_\ell \nabla \tilde{\mathbf{v}}_\ell) dA$	(b)	(II.2.61)
$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = -\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ sur $A_{\ell s}$	(c)	
$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = \mathbf{G} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ sur $A_{\ell e}$	(d)	

Ici, nous avons supposé que l'équation (II.2.1d) pouvait s'écrire $\mathbf{v}_\ell = \mathbf{A} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ où \mathbf{A} est un tenseur d'ordre deux, et nous avons posé : $\mathbf{G} = \mathbf{A} - \mathbf{I}$.

Le problème de fermeture (II.2.61) est *identique* à celui établi par Whitaker (1996), par prise de moyenne de l'écoulement de Navier-Stokes dans un milieu poreux homogène, en l'absence de changement de phase.

La forme de (II.2.61) suggère que $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ est la grandeur génératrice des fluctuations de vitesse et de pression. Ainsi, en suivant la démarche de Whitaker (1986a, 1996), Quintard & Whitaker (1994b), Goyeau *et al.* (1997) et Benihaddadene (1997), nous supposons que $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ et \tilde{p}_ℓ sont liés à $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ par les expressions :

$$\begin{cases} \tilde{\mathbf{v}}_\ell = \mathbf{M} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell & (a) \\ \tilde{p}_\ell = \mu_\ell \mathbf{m} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell & (b) \end{cases} \quad (II.2.62)$$

Les inconnues \mathbf{m} et \mathbf{M} sont définies comme étant les solutions du problème suivant (Whitaker, 1996) :

$\nabla \cdot \mathbf{M} = \mathbf{0}$	(a)	
$\frac{\rho_\ell}{\mu_\ell} \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \mathbf{M} = -\nabla \mathbf{m} + \nabla^2 \mathbf{M} - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{I} \mathbf{m} + \nabla \mathbf{M}) dA$	(b)	
$\mathbf{M} = -\mathbf{I}$ sur $A_{\ell s}$	(c)	(II.2.63)
$\mathbf{m}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{m}(\mathbf{r})$, $\mathbf{M}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{M}(\mathbf{r})$ sur $A_{\ell e}$	(d)	
$\langle \mathbf{M} \rangle^\ell = \mathbf{0}$	(e)	

La contrainte (II.2.63e), généralement imposée, est nécessaire pour obtenir une solution de ce problème (Quintard & Whitaker, 1993 ; Whitaker, 1996).

Par ailleurs, la condition à la limite (II.2.61d) a été remplacée par les conditions de périodicité (II.2.63d), qui sont habituellement associées aux milieux poreux homogènes (Carbonell & Whitaker, 1984). En effet, d'après la condition à la limite (II.2.61c), nous savons que $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ est de l'ordre de $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$, et que la contrainte imposée sur $A_{\ell e}$ ne peut influencer le champ $\tilde{\mathbf{v}}_\ell$ que dans une région d'épaisseur ℓ_ℓ à la frontière de V (figure II.1) (Whitaker, 1996). C'est pourquoi, dans la mesure où les variations de $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ sont négligées dans V , dans les structures homogènes, des conditions de périodicité des champs de fluctuation sont imposées sur $A_{\ell e}$.

Pour des structures dendritiques, caractérisées par des variations continues de porosité, les conditions de périodicité, dans la direction des axes primaires de dendrites, semblent *a priori* inappropriées. Cependant, Goyeau *et al.* (1997, 1999) ont résolu le problème de fermeture classique associé au calcul de la perméabilité (Whitaker, 1986a ; Barrère *et al.*, 1992 ; Whitaker, 1996), dans des zones pâteuses schématiques et réelles, respectivement. Pour ces deux types de structures, caractérisées par des variations modérées (mais non faibles) de porosité (correspondant à (II.2.18)), les calculs de perméabilité ont donné de bons résultats. Ainsi, dans le cadre de la contrainte (II.2.18), que nous nous sommes fixée, nous conservons les conditions de périodicité (dans lesquelles ℓ_i désigne les vecteurs de base, figure II.2).

Whitaker (1996) a décomposé le système (II.2.63) en deux sous-problèmes. Le premier fournit la perméabilité du milieu poreux, tandis que le deuxième fournit la partie inertielle de l'échange interfacial de quantité de mouvement (correction de Forchheimer).

Ainsi, on considère la décomposition (Whitaker, 1996) :

$$\begin{cases} \mathbf{m} = \mathbf{b}(\varepsilon_\ell) + \mathbf{c}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) & (a) \\ \mathbf{M} = \mathbf{B}(\varepsilon_\ell) + \mathbf{C}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) & (b) \end{cases} \quad (\text{II.2.64})$$

et (II.2.62) s'écrit :

$$\begin{cases} \tilde{\mathbf{v}}_\ell = \mathbf{B}(\varepsilon_\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mathbf{C}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell & (a) \\ \tilde{p}_\ell = \mu_\ell \mathbf{b}(\varepsilon_\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell \mathbf{c}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell & (b) \end{cases} \quad (\text{II.2.65})$$

Les inconnues \mathbf{b} et \mathbf{B} sont les solutions du problème suivant (Whitaker, 1996) :

Problème I :

$\nabla \cdot \mathbf{B} = \mathbf{0}$	(a)	
$\mathbf{0} = -\nabla \mathbf{b} + \nabla^2 \mathbf{B} - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{I} \mathbf{b} + \nabla \mathbf{B}) dA$	(b)	
$\mathbf{B} = -\mathbf{I}$ sur $A_{\ell s}$	(c)	(II.2.66)
$\mathbf{b}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{b}(\mathbf{r})$, $\mathbf{B}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{B}(\mathbf{r})$ sur $A_{\ell e}$	(d)	
$\langle \mathbf{B} \rangle^\ell = \mathbf{0}$	(e)	

Ce problème de fermeture est identique à celui que Whitaker (1986a) a établi pour un écoulement de Stokes en milieu poreux homogène, et à celui obtenu par Goyeau *et al.* (1997) pour un écoulement de Stokes dans une structure dendritique schématique.

La définition (II.2.64) de \mathbf{b} et \mathbf{B} permet d'obtenir, en substituant (II.2.65) dans le système (II.2.63), le problème vérifié par les inconnues \mathbf{c} et \mathbf{C} :

Problème II :

$\nabla \cdot \mathbf{C} = \mathbf{0}$	(a)	
$\frac{\rho_\ell}{\mu_\ell} \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla (\mathbf{B} + \mathbf{C}) = -\nabla \mathbf{c} + \nabla^2 \mathbf{C} - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{I} \mathbf{c} + \nabla \mathbf{C}) dA$	(b)	
$\mathbf{C} = \mathbf{0}$ sur $A_{\ell s}$	(c)	(II.2.67)
$\mathbf{c}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{c}(\mathbf{r})$, $\mathbf{C}(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{C}(\mathbf{r})$ sur $A_{\ell e}$	(d)	
$\langle \mathbf{C} \rangle^\ell = \mathbf{0}$	(e)	

Les problèmes de fermeture (II.2.66) et (II.2.67) peuvent être résolus en considérant des écoulements parallèle et transverse aux axes primaires de dendrites schématiques ou réelles, dans une cellule représentative V , représentée schématiquement par la figure II.2 (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999).

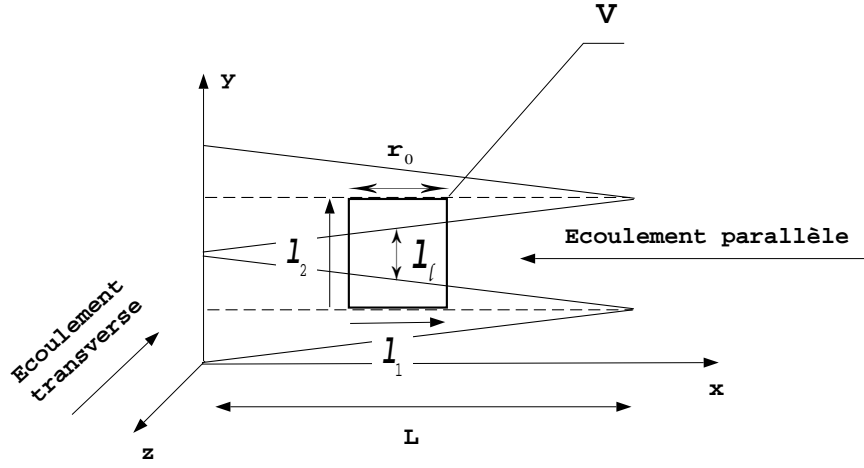


Figure II.2: Schématisation du V.E.R. pour la résolution des problèmes de fermeture

II.2.4 Forme fermée de l'équation macroscopique de quantité de mouvement

Les expressions des fluctuations de vitesse (II.2.65a) et de pression (II.2.65b) permettent de fermer l'équation macroscopique (II.2.4b). En négligeant, par ailleurs, le transport de quantité de mouvement par le déplacement de l'interface solide-liquide (II.2.49), on obtient :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{M}^t \mathbf{M} \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] = \\
 -\varepsilon_\ell \nabla \langle p_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \\
 -\varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell - \varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{F} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{g}
 \end{aligned}
 \tag{II.2.68}$$

où \mathbf{K} et \mathbf{F} désignent respectivement le tenseur de perméabilité, et le tenseur représentatif des effets d'inertie microscopique (Whitaker, 1996) :

$$\begin{cases}
 \varepsilon_\ell \mathbf{K}^{-1} &= -\frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{I} \mathbf{b} + \nabla \mathbf{B}) dA & (a) \\
 \varepsilon_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{F} &= -\frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{I} \mathbf{c} + \nabla \mathbf{C}) dA & (b)
 \end{cases}
 \tag{II.2.69}$$

Afin de procéder à d'éventuelles simplifications, nous allons discuter l'importance des termes d'inertie et de diffusion visqueuse (correction de Brinkman) de cette équation :

– Termes d'inertie

La loi de Darcy, qui assume une relation linéaire entre le gradient de pression et la vitesse

de filtration $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle$, n'est valable que pour des écoulements à petits nombres de Reynolds en milieu poreux (Nield & Bejan, 1998 ; Cvetković, 1986). Dybbs & Edwards (1984) ont montré expérimentalement que la transition entre le régime darcyéen, où les forces visqueuses microscopiques prédominent, et le régime inertiel correspond à des nombres de Reynolds de filtration, $Re_\ell = \|\langle \mathbf{v}_\ell \rangle \ell_\ell\| / \nu_\ell$, compris entre 1 et 10.

Forchheimer (Bear, 1972) fut le premier à apporter une correction à la loi de Darcy, représentative des effets d'inertie en milieu poreux, pour obtenir les équations monodimensionnelles suivantes (Bear, 1972) :

$$\begin{cases} -\frac{\Delta p}{\Delta x} = av + bv^2 & (a) \\ -\frac{\Delta p}{\Delta x} = av + bv^2 + cv^3 & (b) \end{cases} \quad (\text{II.2.70})$$

où p est la pression macroscopique du fluide, v la vitesse de filtration et a , b , c des constantes à déterminer expérimentalement.

Si la forme (II.2.70a) est souvent utilisée pour les écoulements inertiels en milieu poreux, certains auteurs, tels que Mei & Auriault (1991) ou Firdaouss & Guermont (1995), considèrent, en se fondant sur l'homogénéisation des équations de Navier-Stokes, que la correction non linéaire à la loi de Darcy est cubique en fonction de la vitesse de filtration. Toutefois, ces travaux ne concernent que la déviation à la loi de Darcy pour de faibles nombres de Reynolds. Pour ce type d'écoulement, la correction n'a que peu d'importance dans la pratique.

Il est important de noter que la correction de Forchheimer, exprimée en (II.2.70), représente le bilan global des effets d'inertie de l'écoulement. En revanche, la méthode de prise de moyenne volumique fait apparaître trois termes distincts dans le bilan de l'inertie :

$$\begin{cases} \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) & : \text{ flux convectif} \\ \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{M}^t \mathbf{M} \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] & : \text{ flux dispersif} \\ -\varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{F} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell & : \text{ terme représentatif des forces d'inertie} \\ & \text{microscopiques, ou correction de Forchheimer} \end{cases}$$

Cependant, le dernier de ces trois termes est largement dominant dans les zones de porosité petite ou modérée : selon Ma & Ruth (1993), et Hassanizadeh & Gray (1987), la cause fondamentale du début des effets d'inertie, pour un Reynolds de filtration de l'ordre de 10, est attribuée aux forces de frottement microscopiques qui s'exercent sur l'interface, dont l'ordre de grandeur est environ trois fois plus important que les forces d'inertie volumiques (convection et dispersion).

Il faut noter cependant que la correction de Forchheimer perd de l'importance dans la zone des sommets de dendrites, où les porosités deviennent importantes, et où l'inertie de l'écoulement moyen est représenté par le flux convectif.

Compte tenu du nombre de Rayleigh thermique du problème du bain de corium du fond de cuve ($Ra \simeq 10^{13}$), les nombres de Reynolds de filtration pourraient être importants dans la

zone pâteuse, et nous conserverons le terme de Forchheimer qui pourrait être comparable au terme de Darcy.

Pour analyser l'importance du flux dispersif, nous allons distinguer le cas des régions de porosité petite ou modérée, et le cas des régions de porosité importante, au voisinage des sommets de dendrites.

– Régions de porosité petite ou modérée : $\varepsilon_\ell < 1$

En considérant les contraintes suivantes dans ces zones :

$$\begin{cases} \ell_\ell \ll L & (a) \\ \tilde{\mathbf{v}}_\ell = O(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) & (b) \end{cases} \quad (\text{II.2.71})$$

on obtient :

$$\nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^{\ell^2}}{L}\right) \quad (\text{II.2.72})$$

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^{\ell^2}}{L}\right) \quad (\text{II.2.73})$$

de sorte que :

$$\nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \sim \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{M}^t \mathbf{M} \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] \quad (\text{II.2.74})$$

dans les régions de porosité petite ou modérée.

Cette estimation est conforme à celle d' Hassanizadeh & Gray (1987), qui ont étudié les écoulements à grand nombre de Reynolds en milieux poreux, et qui estiment eux aussi que les termes d'inertie microscopique et macroscopique ont le même ordre de grandeur.

Or, le flux convectif macroscopique est en général petit devant le terme de Darcy dans les régions ici considérées (Whitaker, 1996), et le flux dispersif est donc négligeable dans ces zones.

– Régions de porosité importante : $\varepsilon_\ell \sim 1$.

Dans ces régions, la contrainte (II.2.71b) n'est plus valable : en effet, les fluctuations spatiales de vitesse deviennent négligeables lorsque l'on sort de la zone pâteuse, et le flux dispersif devient négligeable devant le flux convectif macroscopique. Ni (1991) précise toutefois que ceci n'est plus vrai lorsque l'écoulement est turbulent.

Nous ne considérons que le régime laminaire, et par conséquent le flux dispersif est négligeable dans les zones de porosité importante.

Finalement, il ressort que le flux dispersif est peu important dans l'ensemble de la zone pâteuse, pour les régimes laminaires, et nous négligerons ce terme.

– Termes de Brinkman

Le second membre de (II.2.68) contient les trois termes suivants, représentant la correction de Brinkman de l'équation moyennée :

$$\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad , \quad \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad , \quad \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.2.75})$$

Les études précédentes de prise de moyenne de l'écoulement de Stokes (Quintard & Whitaker, 1994b; Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999), ou de Navier-Stokes (Whitaker, 1996), en milieu poreux ont également mis en évidence l'existence de ces termes. Leurs estimations sont les suivantes (Goyeau *et al.*, 1997) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_V^2} \right) \\ \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_V L_\varepsilon} \right) \\ \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell = O \left(\varepsilon_\ell \mu_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L_\varepsilon^2} \right) \end{array} \right. \quad (\text{II.2.76})$$

En considérant que :

$$L_V \sim L_\varepsilon \quad (\text{II.2.77})$$

on peut estimer que les trois termes de Brinkman ont le même ordre de grandeur.

Le premier de ces termes doit être conservé pour tenir compte des effets de diffusion visqueuse qui deviennent significatifs dans les régions de porosité importante, au voisinage des sommets de dendrites.

Les deux autres termes de Brinkman, quant à eux, font intervenir les gradients de porosité de manière explicite. Goyeau *et al.* (1997, 1999) ont montré que ces termes pouvaient raisonnablement être négligés dans le problème de fermeture, dans le cadre, que nous nous sommes fixé, des taux de décroissance modérés de la géométrie dendritique ($\tau < 4\%$, Table 2). Cependant, l'influence des gradients de porosité sur le champ de vitesse macroscopique est inconnue. Par conséquent, nous décidons de conserver *a priori* les termes de Brinkman, impliquant les gradients de porosité, dans l'équation macroscopique du mouvement.

- Forme finale de l'équation moyennée

En conclusion, afin d'obtenir une équation valable dans toutes les régions de la zone pâteuse, et dans la région purement liquide, nous avons négligé deux termes dans l'équation macroscopique de quantité de mouvement :

– le flux dispersif : $\nabla \cdot \left[\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{M}^t \mathbf{M} \rangle^\ell \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \right]$

– le terme de transport de quantité de mouvement par le déplacement de l'interface :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_{\ell} - \mathbf{w}_{\ell s}) \rho_{\ell} \mathbf{v}_{\ell} dA$$

car la vitesse du liquide à l'interface, générée par la contraction lors du changement de phase, a été négligée.

Les équations macroscopiques de continuité et de quantité de mouvement de la phase liquide, dans l'ensemble du mélange binaire, s'écrivent finalement :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_{\ell} \rho_{\ell}) + \nabla \cdot (\varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell}) &= \dot{m}_{\ell} & (a) \\ \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell}) + \nabla \cdot (\varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell}) &= & (II.2.78) \\ -\varepsilon_{\ell} \nabla \langle p_{\ell} \rangle^{\ell} + \varepsilon_{\ell} \mu_{\ell} \nabla^2 \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} + \mu_{\ell} \nabla \varepsilon_{\ell} \cdot \nabla \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} + \mu_{\ell} (\nabla^2 \varepsilon_{\ell}) \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} \\ -\varepsilon_{\ell}^2 \mu_{\ell} \mathbf{K}^{-1} \cdot \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} - \varepsilon_{\ell}^2 \mu_{\ell} \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{F} \cdot \langle \mathbf{v}_{\ell} \rangle^{\ell} + \varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \mathbf{g} & & (b) \end{aligned}$$

Dans le paragraphe consacré à la prise de moyenne des équations de conservation des espèces (sous-paragraphe II.3.3.3), le taux de fusion par unité de volume, \dot{m}_{ℓ} , sera exprimé en fonction des concentrations moyennes, $\langle C_s \rangle^s$ et $\langle C_{\ell} \rangle^{\ell}$, et des concentrations interfaciales C_s^* , C_{ℓ}^* des deux phases du mélange binaire en cours de solidification.

II.2.5 Conclusion

Les équations de continuité et de quantité de mouvement de la phase liquide, de notre modèle macroscopique de solidification des mélanges binaires, ont été établies par prise de moyenne volumique des équations de Navier-Stokes.

Le changement d'échelle a été effectué dans une structure, représentant la zone dendritique colonnaire d'un mélange binaire en cours de solidification (figure II.1), à *variations continues de porosité* ou *hétérogénéité évolutive* (Goyeau *et al.*, 1997, 1999). L'originalité ce travail, vis-à-vis de ces précédentes études, réside dans la prise en compte des vitesses de l'interface solide-liquide, provenant du changement de phase.

L'équation macroscopique de quantité de mouvement, ainsi établie, possède la forme habituelle que l'on trouve dans les modèles macroscopiques de solidification (Prescott *et al.*, 1991 ; Prescott & Incropera, 1996). Elle comprend, toutefois, des termes de diffusion visqueuse (correction de Brinkman) faisant intervenir les gradients de porosité. Si ces termes avaient déjà été mis en évidence par les études précédentes de changement d'échelle en milieu poreux (Quintard & Whitaker, 1994c ; Whitaker, 1996 ; Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999), ils n'apparaissent, en revanche, que rarement dans les modèles de solidification.

En outre, une analyse d'ordre de grandeur a permis de démontrer la faible importance de certains termes (flux de dispersion et transport de quantité de mouvement par le déplacement de l'interface solide-liquide), qui sont habituellement négligés de manière intuitive, et sans la moindre justification.

Les problèmes de fermeture, définissant les tenseurs de perméabilité et d'inertie de la zone pâteuse, ont été établis. Ils sont *identiques* à ceux que Whitaker (1996) a obtenus, dans le cas des milieux poreux homogènes, en l'absence de changement de phase.

II.3 Equations de conservation des espèces

II.3.1 Prise de moyenne volumique

II.3.1.1 Equations locales

Le système décrivant la conservation des espèces, à l'échelle microscopique, est constitué des équations figurant dans la Table 1, associées aux relations d'équilibre thermodynamique sur l'interface solide–liquide. Ici, l'exposant i a été supprimé, et C_s , C_ℓ désignent les concentrations de l'espèce α , initialement minoritaire.

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_s C_s) = \nabla \cdot (\rho_s D_s \nabla C_s) & (a) \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell C_\ell) + \nabla \cdot (\rho_\ell C_\ell \mathbf{v}_\ell) = \nabla \cdot (\rho_\ell D_\ell \nabla C_\ell) & (b) \\
 & \rho_\ell C_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) - \rho_s C_s \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_s - \mathbf{w}_{\ell s}) = \\
 & \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\rho_\ell D_\ell \nabla C_\ell - \rho_s D_s \nabla C_s) \quad \text{sur } A_{\ell s} & (c) \\
 & C_\ell = g_\ell(T_\ell) \quad \text{sur } A_{\ell s} & (d) \\
 & C_s = g_s(T_s) \quad \text{sur } A_{\ell s} & (e)
 \end{aligned}
 \tag{II.3.1}$$

A ce stade, le problème (II.3.1) est naturellement couplé aux échanges thermiques via les relations d'équilibre thermodynamique à l'interface solide–liquide. Toutefois, nous verrons par la suite (paragraphe II.3.2.2) qu'il est possible d'établir un problème de fermeture massique découplé du problème thermique, sous certaines conditions.

II.3.1.2 Prise de moyenne

En moyennant les équations (II.3.1a) et (II.3.1b), on obtient les équations macroscopiques de conservation d'espèce dans chaque phase :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_s \rho_s \langle C_s \rangle^s) + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_s C_s \mathbf{n}_{s\ell} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell s}) dA = \\
 & \quad \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s) - \rho_s D_s \nabla \varepsilon_s \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s \\
 & \quad + \frac{\rho_s D_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA + \nabla \cdot \left[\frac{\rho_s D_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{C}_s \mathbf{n}_{s\ell} dA \right] \quad (a) \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{C}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) \\
 & \quad + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell C_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) dA = \\
 & \quad \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) - \rho_\ell D_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\
 & \quad + \frac{\rho_\ell D_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{C}_\ell dA + \nabla \cdot \left[\frac{\rho_\ell D_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{C}_\ell \mathbf{n}_{\ell s} dA \right] \quad (b)
 \end{aligned} \tag{II.3.2}$$

Ce système est identique à celui que Benihaddadene (1997) a obtenu pour la solidification des mélanges binaires. Il apparaît également dans le modèle de solidification équiaxe de Ni (1991) et dans l'extension de ce modèle aux deux modes de cristallisation (équiaxe et colonnaire) établie par Ni & Beckermann (1991).

II.3.2 Fermeture locale

Sous cette forme, les équations macroscopiques (II.3.2) ne permettent pas de calculer les concentrations moyennes dans les phases solide et liquide du mélange binaire. En effet, le flux de dispersion ainsi que les intégrales de surface, qui décrivent les échanges de masse à travers l'interface solide-liquide, doivent être exprimés en termes de grandeurs physiques moyennes, en définissant des propriétés de transport effectives. Cette fermeture peut s'obtenir en exprimant les fluctuations en fonction des valeurs moyennes de concentration dans les deux phases.

II.3.2.1 Formulation générale

Afin d'obtenir des équations de fermeture portant sur les inconnues \tilde{C}_s et \tilde{C}_l , nous utilisons la décomposition de Gray (A.8) pour C_s et C_l dans les équations (II.3.1a,b), multipliées respectivement par ε_s et ε_l , et nous retranchons membre à membre les équations (II.3.2a,b). Si de plus on considère les conditions à la limite (II.3.1c, d, e), dans lesquelles on utilise la décomposition de Gray (A.8) pour C_s et C_l , on obtient le problème de fermeture suivant :

$$\begin{aligned} \varepsilon_s \rho_s \frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial t} - \dot{m}_s \langle C_s \rangle^s - \frac{1}{V} \int_{A_{ls}} \rho_s C_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (-\mathbf{w}_{ls}) dA = \\ \varepsilon_s \nabla \cdot \left(\rho_s D_s \nabla \tilde{C}_s \right) - \frac{\rho_s D_s}{V} \int_{A_{ls}} \mathbf{n}_{sl} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA - \nabla \cdot \left[\frac{\rho_s D_s}{V} \int_{A_{ls}} \tilde{C}_s \mathbf{n}_{sl} dA \right] \end{aligned} \quad (\text{II.3.3a})$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_l \rho_l \frac{\partial \tilde{C}_l}{\partial t} + \varepsilon_l \rho_l \mathbf{v}_l \cdot \nabla \tilde{C}_l + \varepsilon_l \rho_l \tilde{\mathbf{v}}_l \cdot \nabla \langle C_l \rangle^l - \nabla \cdot \left(\varepsilon_l \rho_l \langle \tilde{C}_l \tilde{\mathbf{v}}_l \rangle^l \right) \\ - \dot{m}_l \langle C_l \rangle^l - \frac{1}{V} \int_{A_{ls}} \rho_l C_l \mathbf{n}_{ls} \cdot (\mathbf{v}_l - \mathbf{w}_{ls}) dA = \\ \varepsilon_l \nabla \cdot \left(\rho_l D_l \nabla \tilde{C}_l \right) - \frac{\rho_l D_l}{V} \int_{A_{ls}} \mathbf{n}_{ls} \cdot \nabla \tilde{C}_l dA - \nabla \cdot \left[\frac{\rho_l D_l}{V} \int_{A_{ls}} \tilde{C}_l \mathbf{n}_{ls} dA \right] \end{aligned} \quad (\text{II.3.3b})$$

$$\begin{aligned} \left(\tilde{C}_l - \tilde{C}_s \right) \rho_s \mathbf{w}_c - \mathbf{n}_{ls} \cdot \left(\rho_l D_l \nabla \tilde{C}_l - \rho_s D_s \nabla \tilde{C}_s \right) = \\ \left(\langle C_s \rangle^s - \langle C_l \rangle^l \right) \rho_s \mathbf{w}_c + \mathbf{n}_{ls} \cdot \left(\rho_l D_l \nabla \langle C_l \rangle^l - \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s \right) \quad \text{sur } A_{ls} \end{aligned} \quad (\text{II.3.3c})$$

$$\tilde{C}_l = g_l(T_l) - \langle C_l \rangle^l \quad \text{sur } A_{ls} \quad (\text{II.3.3d})$$

$$\tilde{C}_s = g_s(T_s) - \langle C_s \rangle^s \quad \text{sur } A_{ls} \quad (\text{II.3.3e})$$

où $\mathbf{w}_c = \mathbf{n}_{sl} \cdot \mathbf{w}_{ls}$ désigne la vitesse de croissance cristalline en un point de l'interface.

Les équations (II.3.3a), (II.3.3b) ont également été établies par Benihaddadene (1997) en solidification dendritique, et par Chella *et al.* (1998) pour les écoulements multiphasés, multi-constituants en milieu poreux.

Le système (II.3.3) constitue la forme générale du problème de fermeture pour les changements de phase solide-liquide d'un mélange binaire, lorsque la phase solide n'est pas transportée. Ce problème étant très complexe, il convient non seulement de le simplifier en analysant les ordres de grandeur de chaque terme, mais également de le découpler des échanges de chaleur à l'échelle du pore.

II.3.2.2 Simplification du problème

Analyse d'ordre de grandeur

Afin d'obtenir les contraintes reliant les valeurs moyennes et fluctuantes des concentrations, on considère l'équation de conservation du soluté à l'interface (II.3.3c). Si on néglige la contribution de \mathbf{w}_c dans cette équation, on peut considérer que les gradients des fluctuations et des valeurs moyennes de concentrations sont du même ordre :

$$\nabla \tilde{C}_\ell \sim \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad \text{et} \quad \nabla \tilde{C}_s \sim \nabla \langle C_s \rangle^s \quad (\text{II.3.4})$$

ou également :

$$\begin{cases} \tilde{C}_\ell = O\left(\frac{\ell_\ell}{L} \langle C_\ell \rangle^\ell\right) & (a) \\ \tilde{C}_s = O\left(\frac{\ell_s}{L} \langle C_s \rangle^s\right) & (b) \end{cases} \quad (\text{II.3.5})$$

On peut constater que ces estimations sont identiques à celles utilisées par Carbonell & Whitaker (1984), et Whitaker (1986b), pour des problèmes tout de même différents, de diffusion-réaction en milieu poreux, et par Zanotti & Carbonell (1984) pour la diffusion et le transport de soluté dans un écoulement de deux phases fluides dans un milieu poreux.

Compte tenu de la séparation des échelles de longueur (Table 2) :

$$\ell_s, \ell_\ell < r_0 < L \quad (\text{II.3.6})$$

qui implique :

$$\ell_s, \ell_\ell \ll L \quad (\text{II.3.7})$$

les estimations (II.3.5) indiquent que les fluctuations sont petites (mais non nulles) devant les grandeurs moyennes de concentrations (Carbonell & Whitaker, 1984 ; Zanotti & Carbonell, 1984a,b) :

$$\tilde{C}_s \ll \langle C_s \rangle^s \quad , \quad \tilde{C}_\ell \ll \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.3.8})$$

En ce qui concerne la phase liquide, on peut remarquer que la contrainte précédente est classique dans les problèmes de diffusion-réaction (Carbonell & Whitaker, 1984 ; Whitaker, 1986b) ou de transport d'espèce en milieu poreux (Zanotti & Carbonell, 1984a,b; Carbonell & Whitaker, 1983).

Si on considère, en outre, l'estimation établie de la fluctuation de vitesse :

$$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\right) \quad (\text{II.3.9})$$

on dispose à présent de toutes les contraintes : (II.3.5), (II.3.7), (II.3.9), nécessaires à l'analyse des ordres de grandeurs des équations générales de fermeture (II.3.3a,b).

Analyse des termes de (II.3.3a) :

 - Terme d'accumulation :

Etant donné la séparation des échelles de temps \tilde{t} et t^* , associées respectivement aux variations de \tilde{C}_s et $\langle C_s \rangle^s$ (Quintard & Whitaker, 1994a) :

$$\tilde{t} \ll t^* \quad (\text{II.3.10})$$

(II.3.3a) apparaît quasi-stationnaire dans le système des équations couplées (II.3.3a)–(II.3.2a), et on néglige le terme $\frac{\partial \tilde{C}_s}{\partial t}$.

 - Termes de changement de phase :

Nous avons vu que (II.3.5b) impliquait $\tilde{C}_s \ll \langle C_s \rangle^s$, d'où :

$$C_s = O(\langle C_s \rangle^s) \quad (\text{II.3.11})$$

Alors, on peut estimer que les deux termes de changement de phase s'annulent, en terme d'ordre de grandeur. En effet, en considérant par ailleurs que les moments géométriques (A.19) sont négligeables (Annexe A), on obtient :

$$\begin{aligned} -\dot{m}_s \langle C_s \rangle^s &= \frac{1}{V} \int_{A_{l_s}} \rho_s C_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (\mathbf{v}_s - \mathbf{w}_{l_s}) dA \simeq \\ -\dot{m}_s \langle C_s \rangle^s &= \frac{1}{V} \int_{A_{l_s}} \rho_s \langle C_s \rangle^s |_{\mathbf{r}} \mathbf{n}_{sl} \cdot (\mathbf{v}_s - \mathbf{w}_{l_s}) dA \simeq \\ -\dot{m}_s \langle C_s \rangle^s &+ \underbrace{\left[-\frac{1}{V} \int_{A_{l_s}} \rho_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (\mathbf{v}_s - \mathbf{w}_{l_s}) dA \right]}_{\dot{m}_s} \langle C_s \rangle^s |_{\mathbf{x}} = 0 \end{aligned} \quad (\text{II.3.12})$$

 - Termes du second membre :

Pour estimer les intégrales de surface, on utilise l'ordre de grandeur classique de la surface spécifique $A_v = \frac{A}{V}$ (Carbonell & Whitaker, 1984) :

$$A_v = O\left(\frac{\varepsilon_s}{\ell_s}\right) \quad (\text{II.3.13})$$

et on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_s \rho_s D_s \nabla^2 \tilde{C}_s = O\left(\varepsilon_s \rho_s D_s \frac{\tilde{C}_s}{\ell_s^2}\right) \quad (a) \\ \frac{\rho_s D_s}{V} \int_{A_{l_s}} \mathbf{n}_{sl} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA = O\left(\varepsilon_s \rho_s D_s \frac{\tilde{C}_s}{\ell_s^2}\right) \quad (b) \\ \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{l_s}} \rho_s D_s \tilde{C}_s \mathbf{n}_{sl} dA \right] = O\left(\varepsilon_s \rho_s D_s \frac{\tilde{C}_s}{L \ell_s}\right) \quad (c) \end{array} \right. \quad (\text{II.3.14})$$

Comme $\ell_s \ll L$, on peut conclure :

$$(a) \sim (b) \gg (c)$$

Finalement, (II.3.3a) se réduit à l'expression suivante :

$$D_s \nabla^2 \tilde{C}_s - D_s \left(\frac{1}{V_s} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{sl} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA \right) = 0 \quad (\text{II.3.15})$$

Analyse des termes de (II.3.3b)

- Terme d'accumulation :

Un raisonnement identique à celui mené pour la phase solide conduit à négliger le terme $\frac{\partial \tilde{C}_\ell}{\partial t}$.

- Termes de transport :

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{C}_\ell = O \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \frac{\tilde{C}_\ell}{\ell_\ell} \right), \quad \varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell = O \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \frac{\langle C_\ell \rangle^\ell}{L} \right) \quad (\text{II.3.16})$$

D'après (II.3.5a), ces deux termes sont du même ordre :

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{C}_\ell \sim \varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.3.17})$$

- Flux de dispersion :

$$\nabla \cdot \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{C}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell \right) = O \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{C}_\ell \frac{\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell}{L} \right) \quad (\text{II.3.18})$$

et d'après la contrainte $\ell_\ell \ll L$ et (II.3.16), on en déduit :

$$\nabla \cdot \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{C}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell \right) \ll \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{C}_\ell \quad (\text{II.3.19})$$

- Termes de changement de phase :

En partant de (II.3.5a), on peut montrer, par un raisonnement tout à fait identique à celui mené pour la phase solide (voir (II.3.11), (II.3.12)), que les deux termes de changement de phase s'annulent, en terme d'ordre de grandeur.

- Termes du second membre :

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \nabla^2 \tilde{C}_\ell = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \frac{\tilde{C}_\ell}{\ell_\ell^2}\right) \quad (a) \\ \frac{\rho_\ell D_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{C}_\ell dA = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \frac{\tilde{C}_\ell}{\ell_\ell^2}\right) \quad (b) \\ \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell D_\ell \tilde{C}_\ell \mathbf{n}_{\ell s} dA \right] = O\left(\varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \frac{\tilde{C}_\ell}{L \ell_\ell}\right) \quad (c) \end{array} \right. \quad (\text{II.3.20})$$

Alors, la contrainte $\ell_\ell \ll L$ permet de conclure :

$$(a) \sim (b) \gg (c)$$

Finalement, l'équation (II.3.3b) se réduit à l'expression :

$$\boxed{\mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{C}_\ell + \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell = D_\ell \nabla^2 \tilde{C}_\ell - D_\ell \left(\frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{C}_\ell dA \right)} \quad (\text{II.3.21})$$

Découplage des problèmes massique et thermique à l'échelle du pore

Les équations de fermeture (II.3.3a,b) ont été simplifiées en (II.3.15) et (II.3.21). Toutefois, les conditions à la limite (II.3.3d,e), qui traduisent l'équilibre thermodynamique, couplent *a priori* les problèmes massique et thermique à l'échelle du pore. Or, la formulation, ainsi que la résolution numérique, d'un système de fermeture couplant les inconnues (\tilde{C}_s , \tilde{C}_ℓ , \tilde{T}_s , \tilde{T}_ℓ) seraient extrêmement complexes.

C'est pourquoi nous allons formuler les contraintes nécessaires au découplage des fermetures massique et thermique.

Pour cela, on développe g_ℓ et g_s en série de Taylor autour de $\langle T_\ell \rangle^\ell$ et $\langle T_s \rangle^s$:

$$C_k = g_k \left(\langle T_k \rangle^k \right) + \left. \frac{dg_k}{d\langle T_k \rangle^k} \right|_{\langle T_k \rangle^k} \tilde{T}_k + \dots \quad \text{sur } A_{\ell s}, \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.22})$$

Par ailleurs, l'estimation habituelle de \tilde{T}_k est la suivante (Quintard & Whitaker, 1993) :

$$\tilde{T}_k = O\left(\frac{\ell_k}{L} \Delta \langle T_k \rangle^k\right), \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.23})$$

et si l'on note :

$$C_k^* = g_k \left(\langle T_k \rangle^k \right), \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.24})$$

$$M_k = \left. \frac{dg_k}{d\langle T_k \rangle^k} \right|_{\langle T_k \rangle^k}, \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.25})$$

on obtient :

$$C_k = C_k^* + O\left(M_k \frac{\ell_k}{L} \Delta\langle T_k \rangle^k\right), \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.26})$$

De plus, l'hypothèse d'équilibre thermique local ($\langle T_\ell \rangle^\ell = \langle T_s \rangle^s = \langle T \rangle$) sera formulée et justifiée dans le chapitre suivant (sous-paragraphe II.4.1.3).

Ainsi, les contraintes nécessaires au découplage des fermetures massique et thermique s'expriment sous la forme :

$$\boxed{\frac{C_k^*}{|M_k| \Delta\langle T \rangle} \gg \frac{\ell_k}{L}, \quad k = \ell, s} \quad (\text{II.3.27})$$

Or, on peut considérer que $\ell_\ell \sim \ell_s$, et pour des diagrammes de phase dont le solidus et le liquidus ont une allure relativement linéaire (c'est par exemple le cas pour le mélange binaire Pb–Sn (Prescott & Incropera, 1996)), on a :

$$\frac{C_\ell^*}{|M_\ell|} \simeq \frac{C_s^*}{|M_s|} \quad (\text{II.3.28})$$

si toutefois la composition du mélange n'est pas trop proche de la composition eutectique. Dans ces conditions, la validité des contraintes (II.3.27) peut être examinée pour une seule des phases solide ou liquide.

Benihaddadene (1997) a évalué la valeur moyenne de $\frac{\ell_\ell}{L}$, sur une dendrite du mélange binaire $\text{NH}_4\text{Cl}(26\%)\text{--H}_2\text{O}$, obtenue par Huppert (1990). Dans les conditions expérimentales décrites par ce dernier, $\Delta\langle T \rangle$ peut s'évaluer de la sorte :

$$\Delta\langle T \rangle = g_\ell^{-1}(C_0) - T^{eut} \quad (\text{II.3.29})$$

Les différents paramètres de l'expérience, relatifs aux contraintes (II.3.27), sont les suivants :

C_0	C^{eut}	$ M_\ell $	$\Delta\langle T \rangle$	$\frac{\ell_\ell}{L}$	$\frac{C^{eut}}{ M_\ell \Delta\langle T \rangle}$
0,26	0,20	$2,1 \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$	28 K	$6,7 \cdot 10^{-2}$	3,40

Par conséquent, la composition initiale du mélange étant hypereutectique ($C_0 > C^{eut}$), on constate que la contrainte (II.3.27) est largement vérifiée.

Nous manquons de données pour examiner la validité de cette contrainte sur d'autres expériences, relatives à différents mélanges binaires. Cependant, elle semble intuitivement raisonnable, pour des mélanges dont les diagrammes de phase possèdent un solidus et un liquidus de pentes modérées, si toutefois le mélange n'est pas trop dilué.

Dans tous les cas, la vérification des contraintes (II.3.27) sur une expérience relative au mélange $\text{NH}_4\text{Cl}\text{--H}_2\text{O}$ est encourageante. Ce système cristallise, en effet, avec une morphologie dendritique qui est similaire à celle de la plupart des alliages métalliques (Prescott & Incropera, 1996).

Finalemnt, on suppose que les contraintes (II.3.27) sont vérifiées, et les relations d'équilibre thermodynamique s'écrivent sous la forme simplifiée :

$$C_k = C_k^* = g_k(\langle T \rangle) \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad , \quad k = \ell, s \quad (\text{II.3.30})$$

Forme finale du problème de fermeture

Les équations (II.3.15), (II.3.21) associées aux relations simplifiées d'équilibre thermodynamique (II.3.30), constituent deux problèmes distincts :

$$\left\{ \begin{array}{l} D_s \nabla^2 \tilde{C}_s - D_s \left(\frac{1}{V_s} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA \right) = 0 \quad (a) \\ \tilde{C}_s = C_s^* - \langle C_s \rangle^s \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (b) \\ \langle \tilde{C}_s \rangle = 0 \quad (c) \\ \tilde{C}_s(\mathbf{r} + \ell_i) = \tilde{C}_s(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} \quad (d) \end{array} \right. \quad (\text{II.3.31})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{C}_\ell + \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell = D_\ell \nabla^2 \tilde{C}_\ell - D_\ell \left(\frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{C}_\ell dA \right) \quad (a) \\ \tilde{C}_\ell = C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (b) \\ \langle \tilde{C}_\ell \rangle = 0 \quad (c) \\ \tilde{C}_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) = \tilde{C}_\ell(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} \quad (d) \end{array} \right. \quad (\text{II.3.32})$$

Les contraintes, généralement imposées, (II.3.31c) et (II.3.32c), sont nécessaires pour obtenir une solution des problèmes de fermeture (Quintard & Whitaker, 1993).

En ce qui concerne les conditions de périodicité, imposées sur $A_{\ell e}$, elles sont généralement associées aux milieux poreux périodiques (Carbonell & Whitaker, 1984 ; Whitaker, 1996). Toutefois, Carbonell & Whitaker (1984) considèrent que ces conditions influent peu sur les champs \tilde{C}_s et \tilde{C}_ℓ . En effet, les échelles de longueur associées aux équations (II.3.31a) et (II.3.32a) sont respectivement ℓ_s et ℓ_ℓ , alors que les conditions de périodicité sont imposées sur un domaine de taille L .

Par ailleurs, nous avons déjà évoqué les bons résultats que Goyeau *et al.* (1997, 1999) ont obtenu, en résolvant le problème de fermeture classique associé au calcul de la perméabilité, dans des zones pâteuses schématiques et réelles.

Dans les deux systèmes précédents, on peut identifier les quantités $C_s^* - \langle C_s \rangle^s$, $C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell$ et $\nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$ comme étant les sources des fluctuations \tilde{C}_s et \tilde{C}_ℓ . On pose alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{C}_s = \alpha_s (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \quad (a) \\ \tilde{C}_\ell = \alpha_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \mathbf{b}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (b) \end{array} \right. \quad (\text{II.3.33})$$

Les inconnues α_s , α_ℓ et \mathbf{b}_ℓ sont solutions des trois problèmes suivants :

Problème I :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \mathbf{b}_\ell + \tilde{\mathbf{v}}_\ell &= D_\ell \nabla^2 \mathbf{b}_\ell - \varepsilon_\ell^{-1} \mathbf{u}_\ell & (a) \\
 \mathbf{b}_\ell &= 0 \quad \text{sur } A_{\ell s} & (b) \\
 \langle \mathbf{b}_\ell \rangle &= 0 & (c) \\
 \mathbf{b}_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) &= \mathbf{b}_\ell(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} & (d)
 \end{aligned}
 \tag{II.3.34}$$

où

$$\mathbf{u}_\ell = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (D_\ell \nabla \mathbf{b}_\ell) dA
 \tag{II.3.35}$$

Problème II :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \alpha_\ell &= D_\ell \nabla^2 \alpha_\ell - \varepsilon_\ell^{-1} h_{m_\ell} & (a) \\
 \alpha_\ell &= 1 \quad \text{sur } A_{\ell s} & (b) \\
 \langle \alpha_\ell \rangle &= 0 & (c) \\
 \alpha_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) &= \alpha_\ell(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} & (d)
 \end{aligned}
 \tag{II.3.36}$$

où

$$h_{m_\ell} = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (D_\ell \nabla \alpha_\ell) dA
 \tag{II.3.37}$$

Problème III :

$$\begin{aligned}
 D_s \nabla^2 \alpha_s - \varepsilon_s^{-1} h_{m_s} &= 0 & (a) \\
 \alpha_s &= 1 \quad \text{sur } A_{\ell s} & (b) \\
 \langle \alpha_s \rangle &= 0 & (c) \\
 \alpha_s(\mathbf{r} + \ell_i) &= \alpha_s(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} & (d)
 \end{aligned}
 \tag{II.3.38}$$

où

$$h_{m_s} = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot (D_s \nabla \alpha_s) dA
 \tag{II.3.39}$$

On montrera, dans le paragraphe qui suit, que \mathbf{u}_ℓ joue le rôle d'une vitesse de transport pour le champ macroscopique $\langle C_\ell \rangle^\ell$, alors que h_{m_ℓ} et h_{m_s} caractérisent l'importance de l'échange de masse, dû à la diffusion et à l'écoulement, à travers l'interface solide-liquide.

Les problèmes I et II présentent une analogie avec ceux que Quintard & Whitaker (1994a) ont établis, pour le problème de transport de contaminants en milieu poreux. Cependant, les situations considérées sont assez différentes. D'une part, le problème abordé par ces auteurs met en jeu la présence d'une phase supplémentaire, passive (il n'y a pas d'échange de masse à travers l'interface délimitant le fluide et cette phase solide). Dans leur étude, la vitesse de l'interface active (délimitant un fluide en mouvement et un fluide non transporté) est négligée, non seulement dans le problème de fermeture, mais également dans l'expression des équations macroscopiques. Cette approximation est en effet valable dans le problème considéré par ces auteurs. Comme on le verra dans le sous-paragraphe suivant, la vitesse de l'interface sera naturellement prise en compte dans l'expression des équations macroscopiques de masse (fermées) de notre modèle, sous la forme de termes de changement de phase traduisant le transport d'espèce dû au déplacement de l'interface. De plus, notre problème met en jeu une diffusion massique dans les *deux* phases séparées par l'interface active.

Cependant, on peut utiliser le vocabulaire introduit par Quintard & Whitaker (1994a), et qualifier les problèmes I, II et III précédents de problèmes de dispersion « active », car un échange de masse est mis en jeu à travers l'interface solide-liquide. Les mêmes auteurs ont opposé cette notion à celle de dispersion « passive », associée au cas d'une absence d'échange interfacial.

II.3.3 Forme fermée des équations macroscopiques de conservation des espèces

Les représentations (II.3.33) des fluctuations \tilde{C}_s et \tilde{C}_ℓ permettent d'obtenir une expression fermée des termes d'échange interfacial et de dispersion des équations (II.3.2).

II.3.3.1 Forme fermée des termes de l'équation du solide

- Terme de changement de phase :

D'après la relation simplifiée d'équilibre thermodynamique :

$$C_s = C_s^* = g_s(\langle T_s \rangle^s) \quad \text{sur} \quad A_{\ell_s} \quad (\text{II.3.40})$$

C_s est uniforme sur l'interface solide-liquide, d'où :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_s C_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell_s}) dA = -\dot{m}_s C_s^* \quad (\text{II.3.41})$$

où \dot{m}_s est le taux de solidification :

$$\dot{m}_s = -\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_s \mathbf{n}_{sl} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell_s}) dA \quad (\text{II.3.42})$$

- Terme d'échange de masse interfacial :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_s D_s \mathbf{n}_{sl} \cdot \nabla \tilde{C}_s dA = \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \quad (\text{II.3.43})$$

où h_{m_s} est le coefficient d'échange massique de la phase solide, défini par (II.3.39).

- Terme de tortuosité :

D'après la condition à la limite (II.3.38b), et l'approximation (A.15), on a :

$$\nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_s D_s \mathbf{n}_{sl} \tilde{C}_s dA \right] = \nabla \cdot \left[\rho_s D_s (-\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \right] \quad (\text{II.3.44})$$

II.3.3.2 Forme fermée des termes de l'équation du liquide

- Terme de dispersion :

$$\nabla \cdot \left[\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{C}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle \right] = \nabla \cdot \left[\rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \alpha_\ell \rangle (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] + \nabla \cdot \left[\rho_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \right] \quad (\text{II.3.45})$$

- Terme de changement de phase :

De même que pour l'équation du solide, on obtient :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \rho_\ell C_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell_s}) dA = -\dot{m}_\ell C_\ell^* = \dot{m}_s C_\ell^* \quad (\text{II.3.46})$$

où $\dot{m}_\ell = -\dot{m}_s$ est le taux de fusion.

- Terme d'échange de masse interfacial :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell D_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{C}_\ell dA = \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.3.47})$$

où h_{m_ℓ} est le coefficient d'échange massique du liquide, défini par (II.3.37), alors que le coefficient \mathbf{u}_ℓ , défini par (II.3.35), joue le rôle d'une vitesse de transport pour la concentration moyenne $\langle C_\ell \rangle^\ell$ (Quintard & Whitaker, 1994a).

- Terme de tortuosité :

D'après les conditions à la limite (II.3.34b), (II.3.36b), et l'approximation (A.15), on a :

$$\nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell D_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{C}_\ell dA \right] = \nabla \cdot \left[\rho_\ell D_\ell (-\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] \quad (\text{II.3.48})$$

II.3.3.3 Expression du taux de solidification

Pour fermer les équations macroscopiques de conservation des espèces, il reste à exprimer le taux de solidification \dot{m}_s , présent dans les termes (II.3.41) et (II.3.46), en fonction des concentrations moyennes. Pour cela, on intègre la relation de saut sur l'interface solide-liquide (II.3.1c) :

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} [\rho_s C_s \mathbf{n}_{s\ell} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell s}) + \rho_\ell C_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s})] dA = \\ \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} (\rho_s D_s \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla C_s + \rho_\ell D_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla C_\ell) dA \end{aligned} \quad (\text{II.3.49})$$

Le premier membre de cette équation est donné par (II.3.41) et (II.3.46), alors que le second membre s'obtient à l'aide de la décomposition de Gray (A.8) pour C_s et C_ℓ , de l'approximation (A.14), et des équations (II.3.43) et (II.3.47). Le taux de solidification a donc pour expression :

$$\begin{aligned} \dot{m}_s = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right. \\ \left. + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s - \rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \right] \end{aligned}$$

(II.3.50)

II.3.3.4 Equations macroscopiques fermées

Les équations macroscopiques de conservation de l'espèce α dans le solide et dans le liquide sont finalement les suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_s \rho_s \langle C_s \rangle^s) - \dot{m}_s C_s^* &= \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s) - \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s \\ &+ \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) - \nabla \cdot [\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)] \end{aligned} \quad (\text{II.3.51a})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) - \dot{m}_\ell C_\ell^* &= \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{D}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) \\ &- \rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \\ &- \nabla \cdot [\rho_\ell \mathbf{d}_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)] - \nabla \cdot [\rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)] \end{aligned} \quad (\text{II.3.51b})$$

où les variables auxiliaires \dot{m}_s et \dot{m}_ℓ sont données par l'expression (II.3.50), et l'équation du bilan de masse sur l'interface :

$$\dot{m}_\ell + \dot{m}_s = 0 \quad (\text{II.3.52})$$

Dans l'équation du liquide, \mathbf{D}_ℓ est le tenseur de diffusion–dispersion massique :

$$\mathbf{D}_\ell = \underbrace{\varepsilon_\ell D_\ell \mathbf{I}}_{\text{diffusion}} - \underbrace{\langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle}_{\text{dispersion}} \quad (\text{II.3.53})$$

et \mathbf{d}_ℓ est un vecteur qui joue le rôle d'une vitesse de transport pour l'écart $C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell$ (Quintard & Whitaker, 1994a ; Chella *et al.*, 1998), qui représente la surfusion solutale :

$$\mathbf{d}_\ell = \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \alpha_\ell \rangle \quad (\text{II.3.54})$$

Les équations (II.3.51) sont valables pour chaque espèce (α, β) du mélange binaire. En considérant la somme des équations de conservation des espèces α et β dans le solide (II.3.51a), ainsi que les relations :

$$\sum_{i=\alpha}^{\beta} \langle C_s^i \rangle^s = 1 \quad , \quad \sum_{i=\alpha}^{\beta} C_s^{i*} = 1 \quad (\text{II.3.55})$$

on obtient l'équation de continuité de la phase solide :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_s \rho_s) = \dot{m}_s \quad (\text{II.3.56})$$

où \dot{m}_s est donné par (II.3.50).

II.4 Equation de l'énergie

II.4.1 Prise de moyenne volumique

II.4.1.1 Equations microscopiques

Les équations décrivant les transferts de chaleur dans les phases solide et liquide du mélange binaire, avec source de chaleur, figurent dans la Table 1 (Whitaker, 1977 ; Ganić *et al.*, 1985). Elles sont associées à la condition d'équilibre thermodynamique sur $A_{\ell s}$:

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_s H_s) + \nabla \cdot \left[\sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_s^i \right] = \nabla \cdot (\lambda_s \nabla T_s) + \rho_s \dot{Q}_s & (a) \\
 & \frac{\partial}{\partial t} (\rho_\ell H_\ell) + \nabla \cdot \left[\rho_\ell H_\ell \mathbf{v}_\ell + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_\ell^i \right] = \nabla \cdot (\lambda_\ell \nabla T_\ell) + \rho_\ell \dot{Q}_\ell & (b) \\
 & \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \left[\rho_s H_s (-\mathbf{w}_{\ell s}) + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_s^i - \lambda_s \nabla T_s \right] = & (II.4.1) \\
 & \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \left[\rho_\ell H_\ell (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) + \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_\ell^i - \lambda_\ell \nabla T_\ell \right] \quad \text{sur } A_{\ell s} & (c) \\
 & T_s = T_\ell \quad \text{sur } A_{\ell s} & (d)
 \end{aligned}$$

où H^i désigne l'enthalpie partielle, et \mathbf{J}_s^i , \mathbf{J}_ℓ^i sont les flux de diffusion massique, associés à chaque espèce i .

Ainsi, les termes faisant intervenir \mathbf{J}_s^i et \mathbf{J}_ℓ^i représentent le flux d'enthalpie dû à la diffusion de masse dans le mélange. Afin de mesurer l'importance de ces termes dans le liquide, on peut les comparer au flux de chaleur convectif.

En considérant la loi de Fick :

$$\mathbf{J}_\ell^i = -\rho_\ell D_\ell \nabla C_\ell^i \quad (II.4.2)$$

on obtient :

$$\frac{\left\| \sum_{i=\alpha}^{\beta} H^i \mathbf{J}_\ell^i \right\|}{\left\| \rho_\ell H_\ell \mathbf{v}_\ell \right\|} = O \left(C_\ell^\alpha \frac{|H^\alpha - H^\beta|}{H_\ell} (\text{Pe}_\ell^s)^{-1} \right) \quad (II.4.3)$$

où $\text{Pe}_\ell^s = \frac{\|\mathbf{v}_\ell\| \ell_\ell}{D_\ell}$ est le nombre de Péclet solutal de pore.

En effet, Kaviany (1995) considère que le flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse peut être négligé, en général, lorsque le nombre de Péclet solutal est grand, sauf éventuellement dans des systèmes caractérisés par de très forts gradients de concentration (par exemple, dans des flammes). Ganić *et al.* (1985), quant à eux, estiment que la contribution de

la diffusion de masse au flux total d'enthalpie est souvent mineure pour des systèmes non réactifs.

Cependant, le nombre de Péclet solutal, dans la partie inférieure de la zone pâteuse dont la porosité est faible ou modérée, est probablement assez petit. C'est pourquoi nous conserverons le flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse dans la phase liquide. En outre, la diffusion de masse dans le solide, dans ce modèle, est également prise en compte aux échelles microscopique et macroscopique, et nous conserverons également le flux d'enthalpie qui en résulte dans le solide.

II.4.1.2 Prise de moyenne

On néglige les variations des densités, des conductivités thermiques ainsi que des puissances par unité de masse dans le V.E.R. La prise de moyenne des équations (II.4.1a,b) fournit le système suivant :

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_s \rho_s \langle H_s \rangle^s) + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_s H_s \mathbf{n}_{s\ell} \cdot (\mathbf{v}_s - \mathbf{w}_{\ell s}) dA \\
& + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_s^i \rangle + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} H^i \mathbf{J}_s^i \cdot \mathbf{n}_{s\ell} dA = \\
& \nabla \cdot (\varepsilon_s \lambda_s \nabla \langle T_s \rangle^s) + \frac{\lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla T_s dA + \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{T}_s \mathbf{n}_{s\ell} dA \right] + \varepsilon_s \rho_s \dot{Q}_s \quad (a) \\
& \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell) + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell H_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) dA + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \\
& + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{H}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_\ell^i \rangle + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} H^i \mathbf{J}_\ell^i \cdot \mathbf{n}_{\ell s} dA = \\
& \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \lambda_\ell \nabla \langle T_\ell \rangle^\ell) + \frac{\lambda_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla T_\ell dA + \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{T}_\ell \mathbf{n}_{\ell s} dA \right] + \varepsilon_\ell \rho_\ell \dot{Q}_\ell \quad (b)
\end{aligned}$$

(II.4.4)

II.4.1.3 Hypothèse d'équilibre thermique local

L'hypothèse *d'équilibre thermique local* en milieu poreux est une approximation classique. Elle signifie que les températures moyennes de la matrice solide $\langle T_s \rangle^s$ et du fluide saturant $\langle T_\ell \rangle^\ell$ sont *suffisamment proches* l'une de l'autre pour pouvoir être remplacées par la température de mélange $\langle T \rangle$ (Quintard & Whitaker, 1995) :

$$\langle T_\ell \rangle^\ell \simeq \langle T_s \rangle^s \simeq \langle T \rangle \quad (II.4.5)$$

où

$$\langle T \rangle = \frac{1}{V} \int_V T dV = \varepsilon_\ell \langle T_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_s \langle T_s \rangle^s \quad (II.4.6)$$

D'une manière générale, cette approximation requiert la séparation des échelles de longueur et de temps associées aux phénomènes microscopiques et macroscopiques (Quintard *et al.*, 1997). Cependant, bien que ces deux conditions soient nécessaires, elles ne sont pas suffisantes. En effet, l'équilibre thermique n'est pas vérifié dans les cas suivants :

1. *Pour des phénomènes transitoires très rapides* (Kaviany, 1995). En effet, ceci a par exemple été mis en évidence par Gobbé & Quintard (1994) pour des systèmes diphasiques stratifiés, soumis à un flux de chaleur conductif orthogonal aux strates, et à des conditions limites oscillantes de haute fréquence.
2. *Lorsque les capacités calorifiques ou les conductivités thermiques des deux phases sont très différentes* : les résultats de Quintard & Whitaker (1993) et ceux de Gobbé *et al.* (1998) montrent que pour des systèmes nodulaires, l'équilibre thermique local n'est plus vérifié lorsque la conductivité de la phase dispersée est environ cent fois plus petite que celle de la phase continue. Dans une telle situation, les échelles de temps du transfert de chaleur macroscopique sont différentes dans chaque phase, de sorte que :

$$\frac{\partial \langle T_\ell \rangle^\ell}{\partial t} \neq \frac{\partial \langle T_s \rangle^s}{\partial t} \quad (\text{II.4.7})$$

et, dès lors, l'équilibre thermique ne peut plus être vérifié (Batsale *et al.*, 1996).

3. *Lorsqu'il existe une génération de chaleur importante dans l'une des deux phases* (Kaviany, 1995). Whitaker (1991) a établi les contraintes nécessaires à l'équilibre thermique local dans un réacteur catalytique (milieu poreux saturé), avec sources de chaleur homogène et hétérogène. Ces contraintes montrent que les sources ont une influence sur la différence des températures moyennes des deux phases.

Ainsi, les trois points suivants vont dans le sens de l'équilibre thermique local, dans les zones pâteuses en général en ce qui concerne les deux premiers, et dans le bain de corium pour le troisième :

1. Il existe une séparation des différentes échelles de longueur caractéristiques des zones dendritiques colonnaires, conformément à la contrainte figurant dans la Table 2 :

$$\ell_\ell < r_o < L \quad (\text{II.4.8})$$

2. Les capacités calorifiques et les conductivités thermiques des phases solide et liquide sont du même ordre pour les alliages métalliques courants tels que Al-Cu, Fe-C, Pb-Sn, les alliages transparents succinonitrile-acétone et $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$, et également pour le constituant principal du corium UO_2 (Annexe E).
3. La génération de chaleur interne dans le corium, quant à elle, ne devrait pas jouer de rôle, les produits de fission dégageant une puissance équivalente dans les phases solide et liquide.

En revanche, le dégagement de chaleur latente par le changement de phase solide-liquide joue le rôle d'une source de chaleur pour la phase liquide. Selon le point 3 précédent, ceci pourrait mettre en cause l'équilibre thermique local. En tous les cas, les valeurs du tableau de l'Annexe E montrent que l'effet de la chaleur latente (ΔH_f) sur l'équilibre

thermique doit être du même ordre dans le bain de corium, dans les alliages métalliques usuels (Pb–Sn, Al–Cu, Fe–C), et dans le chlorure d’ammonium.

A notre connaissance, l’une des seules applications numériques d’un modèle à deux températures a été réalisée par Ni & Beckermann (1993), pour simuler un phénomène de solidification globulaire (cristaux dispersés de forme sphérique). Les résultats obtenus, pour le mélange binaire Al–4% Cu, ont montré que les phases solide et liquide étaient quasiment en équilibre thermique. Les auteurs de cette étude justifient ce phénomène par l’importance du nombre de Lewis (rapport de la diffusivité thermique sur la diffusivité massique), qui est de l’ordre de 10^4 dans le liquide des alliages métalliques (Beckermann & Wang, 1995).

Par conséquent, nous nous appuyerons également sur cet argument, ainsi que sur ceux évoqués dans les trois points précédents, pour supposer que les phases solide et liquide sont en équilibre thermique local.

Dans le cadre de cette hypothèse, il est judicieux de sommer les équations (II.4.4a,b), en tenant compte de la conservation de l’énergie sur l’interface solide-liquide (II.4.1c), pour obtenir l’équation de mélange :

$$\boxed{\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [\langle \rho \rangle \langle H \rangle] + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{H}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell) + \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^\beta \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle = \\ \nabla \cdot [(\varepsilon_\ell \lambda_\ell + \varepsilon_s \lambda_s) \nabla \langle T \rangle] + \nabla \cdot \left[\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} (\lambda_s \mathbf{n}_s \ell \tilde{T}_s + \lambda_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \tilde{T}_\ell) dA \right] + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle \end{aligned}}$$

(II.4.9)

où $\langle H \rangle$ désigne l’enthalpie totale du mélange biphasé, et $\langle \dot{Q} \rangle$ la puissance thermique totale générée par unité de masse :

$$\langle H \rangle = \frac{\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_s \rho_s \langle H_s \rangle^s}{\langle \rho \rangle}, \quad \langle \dot{Q} \rangle = \frac{\varepsilon_\ell \rho_\ell \dot{Q}_\ell + \varepsilon_s \rho_s \dot{Q}_s}{\langle \rho \rangle} \quad (\text{II.4.10})$$

Le dernier terme du premier membre de l’équation de mélange peut être développé à l’aide des théorèmes de prise de moyenne volumique et de la décomposition de Gray (A.8). Si l’on considère uniquement l’argument de la double somme, dans lequel on utilise la loi de Fick, on obtient l’expression suivante, à l’aide d’un calcul détaillé dans l’Annexe D :

$$\left\{ \begin{aligned} \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle = \\ -\nabla \cdot [\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \nabla \langle C_k^i \rangle^k] - \nabla \cdot \left[\rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right] \\ -\nabla \cdot [\varepsilon_k \rho_k D_k \langle \tilde{H}^i \nabla \tilde{C}_k^i \rangle^k] + \nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \left\langle \tilde{H}^i \frac{1}{V_k} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right\rangle^k \right] \end{aligned} \right. \quad (\text{II.4.11})$$

Bien qu’il soit légitime de vouloir simplifier cette expression, l’évaluation de ses termes nécessite une estimation de la fluctuation \tilde{H}^i . Celle-ci peut s’obtenir en développant H^i

en série de Taylor autour des valeurs moyennes $\langle T_k \rangle^k$ et $\langle C_k^i \rangle^k$. On obtient :

$$\tilde{H}^i = \left. \frac{\partial \langle H^i \rangle^k}{\partial \langle T \rangle} \right|_{\langle T \rangle, \langle C_k^i \rangle^k} \tilde{T}_k + \left. \frac{\partial \langle H^i \rangle^k}{\partial \langle C_k^i \rangle^k} \right|_{\langle T \rangle, \langle C_k^i \rangle^k} \tilde{C}_k^i + \dots \quad (\text{II.4.12})$$

Si l'estimation de \tilde{C}_k^i ($\sim \frac{\ell_k}{L} \langle C_k^i \rangle^k$) a été établie dans le chapitre précédent, en revanche, on ne dispose pas encore de celle de \tilde{T}_k qui permettrait d'évaluer \tilde{H}^i .

Comme en général l'estimation des fluctuations s'obtient dans l'établissement des problèmes de fermeture, nous décidons d'adopter la démarche suivante :

1. Etablir le problème de fermeture de l'équation de l'énergie, sans tenir compte du flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse.
2. En déduire l'ordre de grandeur de la fluctuation \tilde{H}^i .
3. Analyser l'ordre de grandeur des termes de (II.4.11) afin d'obtenir la forme fermée de l'équation macroscopique de l'énergie.

II.4.2 Fermeture locale

II.4.2.1 Formulation générale

Afin d'obtenir des équations portant sur les inconnues \tilde{T}_s et \tilde{T}_ℓ , on multiplie (II.4.1a,b) par ε_s et ε_ℓ respectivement, on utilise la décomposition de Gray (1975) (A.8) dans (II.4.1a,b) ainsi que dans (II.4.1c,d), et on retranche membre à membre les équations moyennées (II.4.4a,b), tout en négligeant les termes d'enthalpies partielles des espèces :

$$\begin{aligned}
 & \varepsilon_s \rho_s \frac{\partial \tilde{H}_s}{\partial t} - \dot{m}_s \langle H_s \rangle^s - \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_s H_s \mathbf{n}_{s\ell} \cdot (-\mathbf{w}_{\ell s}) dA = \\
 & \varepsilon_s \lambda_s \nabla^2 \tilde{T}_s - \frac{\lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla \tilde{T}_s dA - \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{T}_s \mathbf{n}_{s\ell} dA \right] \quad (a) \\
 & \varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\partial \tilde{H}_\ell}{\partial t} + \varepsilon_\ell \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle H_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{H}_\ell \\
 & - \nabla \cdot \left(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \tilde{H}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell \right) - \dot{m}_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell - \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_\ell H_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (\mathbf{v}_\ell - \mathbf{w}_{\ell s}) dA = \\
 & \varepsilon_\ell \lambda_\ell \nabla^2 \tilde{T}_\ell - \frac{\lambda_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{T}_\ell dA - \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_\ell}{V} \int_{A_{\ell s}} \tilde{T}_\ell \mathbf{n}_{\ell s} dA \right] \quad (b) \\
 & \rho_s \mathbf{w}_c \left(\tilde{H}_\ell - \tilde{H}_s \right) + \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \left(\lambda_s \nabla \tilde{T}_s - \lambda_\ell \nabla \tilde{T}_\ell \right) = \\
 & \rho_s \mathbf{w}_c \left(\langle H_s \rangle^s - \langle H_\ell \rangle^\ell \right) + \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \left(\lambda_\ell \nabla \langle T_\ell \rangle^\ell - \lambda_s \nabla \langle T_s \rangle^s \right) \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (c) \\
 & \tilde{T}_\ell - \tilde{T}_s = \langle T_s \rangle^s - \langle T_\ell \rangle^\ell \quad \text{sur } A_{\ell s} \quad (d)
 \end{aligned}$$

(II.4.13)

où $\mathbf{w}_c = \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \mathbf{w}_{\ell s}$ est la vitesse de croissance cristalline.

Ce système constitue la forme générale du problème de fermeture de l'équation de l'énergie, pour la solidification dendritique d'un mélange binaire dont la phase solide n'est pas transportée.

II.4.2.2 Simplification des équations de fermeture

Afin d'estimer les fluctuations de température \tilde{T}_s et \tilde{T}_ℓ , on considère :

- l'hypothèse d'équilibre thermique local (II.4.5) :

$$\langle T_\ell \rangle^\ell = \langle T_s \rangle^s = \langle T \rangle \quad (II.4.14)$$

- que les vitesses de diffusion thermique, à l'échelle microscopique, sont grandes devant la vitesse de croissance cristalline.

La condition à la limite (II.4.13c) s'écrit alors sous une forme simplifiée :

$$\mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \left(\lambda_s \nabla \tilde{T}_s - \lambda_\ell \nabla \tilde{T}_\ell \right) = (\lambda_\ell - \lambda_s) \mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \nabla \langle T \rangle \quad \text{sur } A_{\ell_s} \quad (\text{II.4.15})$$

Comme λ_s et λ_ℓ sont en général du même ordre ($\lambda_s \sim 2\lambda_\ell$ pour les métaux, Annexe E) on en déduit :

$$\nabla \tilde{T}_s, \nabla \tilde{T}_\ell \sim \nabla \langle T \rangle \quad (\text{II.4.16})$$

soit :

$$\begin{cases} \tilde{T}_s = O\left(\frac{\ell_s}{L} \langle T \rangle\right) & (a) \\ \tilde{T}_\ell = O\left(\frac{\ell_\ell}{L} \langle T \rangle\right) & (b) \end{cases} \quad (\text{II.4.17})$$

En outre, le terme de dispersion de (II.4.13b) nécessite une évaluation de \tilde{H}_ℓ . Celle-ci peut s'obtenir par un développement en série de Taylor de H_ℓ autour des valeurs moyennes $\langle T \rangle$ et $\langle C_\ell \rangle^\ell$:

$$H_\ell(T_\ell, C_\ell) = \langle H_\ell \rangle^\ell \Big|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)} + \frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle T \rangle} \Big|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)} \tilde{T}_\ell + \frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle C_\ell \rangle^\ell} \Big|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)} \tilde{C}_\ell + \dots \quad (\text{II.4.18})$$

Les estimations (II.4.17) permettent de montrer que les termes d'ordre supérieur ou égal à 2 sont négligeables dans le développement précédent. En adoptant les notations :

$$C_{p_\ell} = \frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle T \rangle} \Big|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)}, \quad \chi_\ell = \frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle C_\ell \rangle^\ell} \Big|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)} \quad (\text{II.4.19})$$

on obtient :

$$\tilde{H}_\ell \simeq C_{p_\ell} \tilde{T}_\ell + \chi_\ell \tilde{C}_\ell \quad (\text{II.4.20})$$

et l'estimation (II.4.17b), ainsi que son homologue pour la concentration (II.3.5a), entraînent :

$$\tilde{H}_\ell = O\left(\frac{\ell_\ell}{L} \langle H_\ell \rangle^\ell\right) \quad (\text{II.4.21})$$

De même, un développement en série de Taylor de $H_s(T_s, C_s)$ fournit l'estimation :

$$\tilde{H}_s = O\left(\frac{\ell_s}{L} \langle H_s \rangle^s\right) \quad (\text{II.4.22})$$

On dispose également de l'estimation de la fluctuation de vitesse (Whitaker, 1996) :

$$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = O\left(\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell\right) \quad (\text{II.4.23})$$

Enfin, on suppose la séparation des échelles de temps \tilde{t} et t^* , respectivement associées à $(\tilde{T}_\ell, \tilde{T}_s)$ et $\langle T \rangle$ (Batsale *et al.*, 1996 ; Quintard *et al.*, 1997) :

$$\tilde{t} \ll t^* \quad (\text{II.4.24})$$

Si l'on considère l'ensemble des contraintes (II.4.8), (II.4.17), (II.4.21)–(II.4.24), l'analyse des ordres de grandeur des termes de (II.4.13) est tout à fait analogue à la démonstration détaillée dans la fermeture des équations de conservation des espèces.

En imposant de plus les contraintes nécessaires sur la moyenne des fluctuations, ainsi que les conditions de périodicité sur $A_{\ell e}$ (sous-paragraphe II.3.2.2), cette analyse débouche sur le problème de fermeture suivant :

$$\begin{aligned} \lambda_s \nabla^2 \tilde{T}_s - \frac{\lambda_s}{V_s} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla \tilde{T}_s dA &= 0 & (a) \\ \rho_\ell \mathbf{v}_\ell \cdot \nabla \tilde{H}_\ell + \rho_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \cdot \nabla \langle H_\ell \rangle^\ell &= \lambda_\ell \nabla^2 \tilde{T}_\ell - \frac{\lambda_\ell}{V_\ell} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{T}_\ell dA & (b) \\ \lambda_s \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{T}_s - \lambda_\ell \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \tilde{T}_\ell &= (\lambda_\ell - \lambda_s) \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla \langle T \rangle \quad \text{sur } A_{\ell s} & (c) \\ \tilde{T}_\ell &= \tilde{T}_s \quad \text{sur } A_{\ell s} & (d) \\ \tilde{T}_s(\mathbf{r} + \ell_i) &= \tilde{T}_s(\mathbf{r}) \quad , \quad \tilde{T}_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) = \tilde{T}_\ell(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{\ell e} & (e) \\ \langle \tilde{T}_s \rangle &= 0 \quad , \quad \langle \tilde{T}_\ell \rangle = 0 & (f) \end{aligned} \quad (\text{II.4.25})$$

A présent, il est nécessaire d'exprimer les gradients de \tilde{H}_ℓ et $\langle H_\ell \rangle^\ell$ en termes de température et de concentration. Tout d'abord, compte tenu des définitions (II.4.19) :

$$\nabla \langle H_\ell \rangle^\ell = C_{p_\ell} \nabla \langle T \rangle + \chi_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.4.26})$$

D'autre part, on suppose que C_{p_ℓ} et χ_ℓ ne varient pas de manière significative à l'échelle microscopique (dans le V.E.R.), et (II.4.20) entraîne :

$$\nabla \tilde{H}_\ell \simeq C_{p_\ell} \nabla \tilde{T}_\ell + \chi_\ell \nabla \tilde{C}_\ell \quad (\text{II.4.27})$$

Afin de simplifier le problème, nous allons négliger la contribution de χ_ℓ dans (II.4.26) et (II.4.27), bien que nous manquions d'éléments pour juger du bien fondé de cette hypothèse. Cela permet alors de découpler les problèmes de fermeture thermiques et solutaux.

Par conséquent, on peut considérer que $\nabla \langle T \rangle$ est l'unique terme source dans (II.4.25) pour les champs de fluctuations. Alors, on pose :

$$\begin{cases} \tilde{T}_s = \mathbf{e}_s \cdot \nabla \langle T \rangle & (a) \\ \tilde{T}_\ell = \mathbf{e}_\ell \cdot \nabla \langle T \rangle & (b) \end{cases} \quad (\text{II.4.28})$$

Enfin, on utilise (II.4.25)–(II.4.28) pour obtenir le problème de fermeture final :

$$\lambda_s \nabla^2 \mathbf{e}_s - \frac{\lambda_s}{V_s} \int_{A_{ls}} \mathbf{n}_{sl} \cdot \nabla \mathbf{e}_s dA = 0 \quad (a)$$

$$\rho_l C_{pl} \mathbf{v}_l \cdot \nabla \mathbf{e}_l + \rho_l C_{pl} \tilde{\mathbf{v}}_l = \lambda_l \nabla^2 \mathbf{e}_l - \frac{\lambda_l}{V_l} \int_{A_{ls}} \mathbf{n}_{ls} \cdot \nabla \mathbf{e}_l dA \quad (b)$$

$$\lambda_s \mathbf{n}_{ls} \cdot \nabla \mathbf{e}_s - \lambda_l \mathbf{n}_{ls} \cdot \nabla \mathbf{e}_l = (\lambda_l - \lambda_s) \mathbf{n}_{ls} \quad \text{sur } A_{ls} \quad (c)$$

$$\mathbf{e}_s = \mathbf{e}_l \quad \text{sur } A_{ls} \quad (d)$$

$$\mathbf{e}_s(\mathbf{r} + l_i) = \mathbf{e}_s(\mathbf{r}), \quad \mathbf{e}_l(\mathbf{r} + l_i) = \mathbf{e}_l(\mathbf{r}) \quad \text{sur } A_{le} \quad (e)$$

$$\langle \mathbf{e}_s \rangle = 0, \quad \langle \mathbf{e}_l \rangle = 0 \quad (f)$$

(II.4.29)

II.4.3 Forme fermée de l'équation macroscopique de l'énergie

II.4.3.1 Flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse

Rappelons l'expression (II.4.11) du flux d'enthalpie associé à la diffusion de l'espèce i dans la phase k :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle = \\ - \underbrace{\nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \nabla \langle C_k^i \rangle^k \right]}_{(A)} - \underbrace{\nabla \cdot \left[\rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right]}_{(B)} \\ - \underbrace{\nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \langle \tilde{H}^i \nabla \tilde{C}_k^i \rangle^k \right]}_{(C)} + \underbrace{\nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \left\langle \tilde{H}^i \frac{1}{V_k} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right\rangle^k \right]}_{(D)} \end{array} \right. \quad (\text{II.4.30})$$

Pour l'évaluation des termes (A), (B), (C), (D), on dispose de la séparation des échelles de longueur, et des estimations établies dans la fermeture de \tilde{C}_k^i et \tilde{T}_k :

$$\ell_k \ll L \quad (\text{II.4.31})$$

$$\tilde{C}_k^i = O\left(\frac{\ell_k}{L} \langle C_k^i \rangle^k\right), \quad \tilde{T}_k = O\left(\frac{\ell_k}{L} \langle T_k \rangle^k\right) \quad (\text{II.4.32})$$

Etant donné (II.4.12), (II.4.32) implique :

$$\tilde{H}^i = O\left(\frac{\ell_k}{L} \langle H^i \rangle^k\right) \quad (\text{II.4.33})$$

Alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} (A) \quad , \quad (B) = O\left(\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \frac{\langle C_k^i \rangle^k}{L^2}\right) \quad (a) \\ (C) \quad , \quad (D) = O\left(\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \langle C_k^i \rangle^k \frac{\ell_k}{L^3}\right) \quad (b) \end{array} \right. \quad (\text{II.4.34})$$

et on conclut :

$$(A) \sim (B) \gg (C) \sim (D)$$

Par conséquent, on négligera les termes (C) et (D). Alors :

$$\nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle = -\nabla \cdot \left[\rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \left(\varepsilon_k \nabla \langle C_k^i \rangle^k + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right) \right] \quad (\text{II.4.35})$$

L'intégrale de surface de cette expression est donnée par (II.3.44) et (II.3.48), si bien que :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle &= -\nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \nabla \langle C_k^i \rangle^k \right] \\ &\quad + \nabla \cdot \left[\rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) \left(C_k^{i*} - \langle C_k^i \rangle^k \right) \langle H^i \rangle^k \right] \end{aligned} \quad (\text{II.4.36})$$

II.4.3.2 Expression de l'équation fermée

Les expressions (II.4.20), (II.4.28) et (II.3.33b) permettent de fermer le terme de dispersion :

$$\begin{aligned} \langle \tilde{H}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle &= C_{p_\ell} \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{e}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle T \rangle + \chi_\ell \mathbf{d}_\ell \left(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell \right) \\ &\quad + \chi_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \end{aligned} \quad (\text{II.4.37})$$

ainsi que l'intégrale de surface du second membre de l'équation de mélange :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \left(\lambda_\ell \tilde{T}_\ell \mathbf{n}_{\ell s} + \lambda_s \tilde{T}_s \mathbf{n}_{s\ell} \right) dA = \left(\frac{\lambda_\ell - \lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \mathbf{e}_\ell dA \right) \cdot \nabla \langle T \rangle \quad (\text{II.4.38})$$

Une expression intermédiaire de l'équation de l'énergie est donc :

$$\left\{ \begin{aligned} &\frac{\partial}{\partial t} [\langle \rho \rangle \langle H \rangle] + \nabla \cdot \left[\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \right] \\ &\quad - \underbrace{\sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^\beta \left\{ \nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \nabla \langle C_k^i \rangle^k \right] \right\}}_{(D1)} \\ &\quad + \underbrace{\sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^\beta \left\{ \nabla \cdot \left[\rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) \left(\tilde{C}_k^i - \langle C_k^i \rangle^k \right) \langle H^i \rangle^k \right] \right\}}_{(D2)} \\ &\quad + \underbrace{\nabla \cdot \left[\rho_\ell \chi_\ell \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \right] + \nabla \cdot \left[\rho_\ell \chi_\ell \mathbf{d}_\ell \left(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell \right) \right]}_{(D3)} = \\ &\quad \nabla \cdot [\mathbf{\Lambda}_t \cdot \nabla \langle T \rangle] + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle \end{aligned} \right. \quad (\text{II.4.39})$$

où $\mathbf{\Lambda}_t$ est le tenseur de conductivité thermique effectif :

$$\mathbf{\Lambda}_t = \underbrace{(\varepsilon_\ell \lambda_\ell + \varepsilon_s \lambda_s) \mathbf{I}}_{\text{diffusion}} - \underbrace{\rho_\ell C_{p_\ell} \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{e}_\ell \rangle}_{\text{dispersion}} + \underbrace{\frac{\lambda_\ell - \lambda_s}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \mathbf{e}_\ell dA}_{\text{tortuosité}} \quad (\text{II.4.40})$$

On peut remarquer que l'expression de $\mathbf{\Lambda}_t$ est identique à celle obtenue par Quintard *et al.* (1997) et Batsale *et al.* (1996), pour les transferts de chaleur en milieu poreux, dans le cadre d'un fluide mono-constituant et de l'équilibre thermique local.

Nous allons montrer que les termes (D1), (D2) et (D3) peuvent se regrouper sous une forme qui fait intervenir les diffusivités massiques $\varepsilon_s D_s$ et \mathbf{D}_ℓ , ainsi que le coefficient de transport \mathbf{d}_ℓ . Pour cela, exprimons la dérivée partielle :

$$\chi_\ell = \left. \frac{\partial \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial \langle C_\ell \rangle^\ell} \right|_{(\langle T \rangle, \langle C_\ell \rangle^\ell)} \quad (\text{II.4.41})$$

en fonction des enthalpies de chaque espèce.

Dans les hypothèses du modèle, le mélange binaire considéré est supposé idéal. L'enthalpie massique du liquide a donc pour expression :

$$H_\ell = C_\ell^\alpha H^\alpha(T_\ell) + C_\ell^\beta H^\beta(T_\ell) \quad (\text{II.4.42})$$

où H^α et H^β sont les enthalpies massiques des corps purs α et β .

La moyenne de H_ℓ s'obtient à l'aide de la propriété (A.11) :

$$\langle H_\ell \rangle^\ell = \langle C_\ell^\alpha \rangle^\ell \langle H^\alpha \rangle^\ell + \langle C_\ell^\beta \rangle^\ell \langle H^\beta \rangle^\ell + \langle \tilde{C}_\ell^\alpha \tilde{H}^\alpha \rangle^\ell + \langle \tilde{C}_\ell^\beta \tilde{H}^\beta \rangle^\ell \quad (\text{II.4.43})$$

Compte tenu des estimations :

$$\tilde{C}_\ell^i = O\left(\frac{\ell_\ell}{L} \langle C_\ell^i \rangle^\ell\right) \quad , \quad \tilde{H}^i = O\left(\frac{\ell_\ell}{L} \langle H^i \rangle^\ell\right) \quad , \quad i = \alpha, \beta \quad (\text{II.4.44})$$

on peut négliger les termes fluctuants de (II.4.43), si bien que :

$$\langle H_\ell \rangle^\ell = \langle C_\ell^\alpha \rangle^\ell \langle H^\alpha \rangle^\ell + \langle C_\ell^\beta \rangle^\ell \langle H^\beta \rangle^\ell \quad (\text{II.4.45})$$

En utilisant la notation $C_\ell = C_\ell^\alpha$, on en déduit une expression de χ_ℓ indépendante de la concentration :

$$\chi_\ell = \langle H^\alpha \rangle^\ell \Big|_{(T)} - \langle H^\beta \rangle^\ell \Big|_{(T)} \quad (\text{II.4.46})$$

Finalement, si l'on adopte la notation suivante :

$$\mathbf{D}_s = \varepsilon_s D_s \mathbf{I} \quad (\text{II.4.47})$$

l'expression précédente de χ_ℓ , après quelques simples manipulations, permet de regrouper les termes (D1), (D2) et (D3) de l'équation (II.4.39), sous une forme qui fait intervenir les propriétés de transport effectives associées aux échanges de masse :

$$\begin{aligned} (D1) + (D2) + (D3) = & - \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot \left[\langle H^i \rangle^k \rho_k \mathbf{D}_k \cdot \nabla \langle C_k^i \rangle^k \right] \\ & + \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot \left[\langle H^i \rangle^k \rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) \left(C_k^{i*} - \langle C_k^i \rangle^k \right) \right] \\ & + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot \left[\langle H^i \rangle^\ell \rho_\ell \mathbf{d}_\ell \left(C_\ell^{i*} - \langle C_\ell^i \rangle^\ell \right) \right] \end{aligned} \quad (\text{II.4.48})$$

Finalemnt, l'équation de l'énergie fait intervenir les propriétés effectives D_s , D_ℓ et \mathbf{d}_ℓ . Elle possède donc une forme consistante avec celle des équations de conservation des espèces (II.3.51) :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} [\langle \rho \rangle \langle H \rangle] + \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] \\
 & - \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot [\langle H^i \rangle^k \rho_k \mathbf{D}_k \cdot \nabla \langle C_k^i \rangle^k] \\
 & + \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot [\langle H^i \rangle^k \rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) (C_k^{i*} - \langle C_k^i \rangle^k)] \\
 & + \sum_{i=\alpha}^{\beta} \nabla \cdot [\langle H^i \rangle^\ell \rho_\ell \mathbf{d}_\ell (C_\ell^{i*} - \langle C_\ell^i \rangle^\ell)] = \\
 & \nabla \cdot [\mathbf{\Lambda}_t \cdot \nabla \langle T \rangle] + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle
 \end{aligned}
 \tag{II.4.49}$$

II.5 Résumé du modèle macroscopique complet

II.5.1 Equations de conservation

Le modèle macroscopique établi est constitué :

- des inconnues principales :

$$\varepsilon_s, \varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell, \langle \mathbf{p}_\ell \rangle^\ell, \langle C_s \rangle^s, \langle C_\ell \rangle^\ell, \langle T \rangle \quad (\text{II.5.1})$$

- des inconnues secondaires : \dot{m}_s, \dot{m}_ℓ

qui sont solutions des équations :

- de continuité de la phase liquide (II.2.78a)
- de quantité de mouvement (II.2.78b)
- de conservation d'espèce dans le solide (II.3.51a)
- de conservation d'espèce dans le liquide (II.3.51b)
- de continuité de la phase solide (II.3.56)
- de l'énergie du mélange (II.4.49)

complétées par les relations auxiliaires que sont :

- l'expression du taux de solidification \dot{m}_s (II.3.50)
- l'équation de conservation de la masse sur l'interface solide-liquide (II.3.52) :

$$\dot{m}_s + \dot{m}_\ell = 0 \quad (\text{II.5.2})$$

- la relation :

$$\varepsilon_s + \varepsilon_\ell = 1 \quad (\text{II.5.3})$$

On peut éliminer les inconnues secondaires \dot{m}_s et \dot{m}_ℓ de la manière suivante :

- Compte - tenu de (II.3.56), on remplace \dot{m}_s par $\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s)$ dans (II.3.51a), et par le second membre de (II.3.50) dans (II.3.56).
- Etant donné (II.3.52) et (II.3.56), on remplace \dot{m}_ℓ par $-\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s)$ dans les équations de continuité du liquide (II.2.78a), et de conservation de $\langle C_\ell \rangle^\ell$ (II.3.51b)

Les inconnues (II.5.1) sont alors solutions du système d'équations figurant dans la Table 3, associé à la relation (II.5.3).

Les concentrations d'équilibre C_s^* , C_ℓ^* , sont données par les relations d'équilibre thermodynamique simplifiées :

$$C_s^* = g_s(\langle T \rangle) \quad (\text{II.5.4})$$

$$C_\ell^* = g_\ell(\langle T \rangle) \quad (\text{II.5.5})$$

où g_s et g_ℓ sont les équations du solidus et du liquidus du diagramme de phase du mélange binaire (figure II.3).

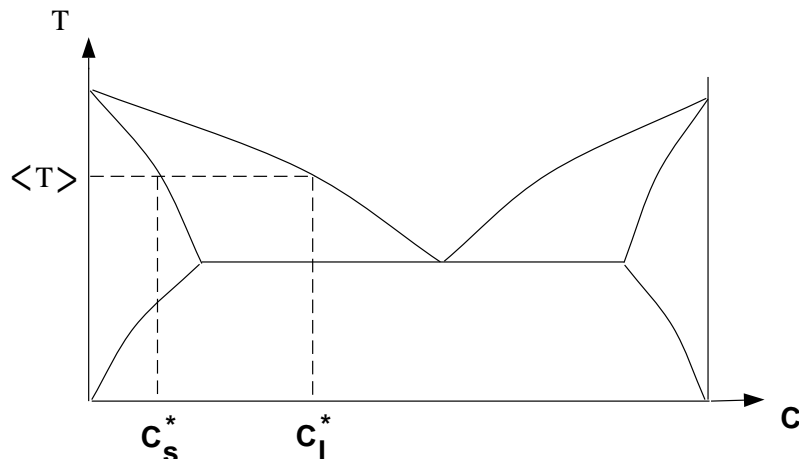


Figure II.3: Représentation de l'équilibre thermodynamique dans le modèle macroscopique

II.5.2 Propriétés de transport effectives

L'ensemble des propriétés de transport effectives :

- tenseurs de perméabilité et d'inertie \mathbf{K} , \mathbf{F}
- coefficients d'échange massiques h_{m_s} , h_{m_ℓ}
- tenseur de diffusion-dispersion massique \mathbf{D}_ℓ
- coefficients de transport d'espèce \mathbf{u}_ℓ , \mathbf{d}_ℓ
- tenseur de conductivité thermique effective $\mathbf{\Lambda}_t$

ont des expressions qui figurent dans la Table 4, et sont définies par les différents problèmes de fermeture établis, également résumés dans cette table.

Table 3: *Modèle macroscopique complet*

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s - \rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \right] \quad (\text{II.5.6})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = -\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) \quad (\text{II.5.7})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = -\varepsilon_\ell \nabla \langle p_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{g} - \varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{F}) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.5.8})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s \langle C_s \rangle^s) - C_s^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) = \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s) - \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s + \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) - \nabla \cdot [\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)] \quad (\text{II.5.9})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + C_\ell^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) &= \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{D}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) - \rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ &+ \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \nabla \cdot [\rho_\ell \mathbf{d}_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)] - \nabla \cdot [\rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)] \end{aligned} \quad (\text{II.5.10})$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}[\langle \rho \rangle \langle H \rangle] + \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] - \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^\beta \nabla \cdot [\langle H^{i,k} \rangle \rho_k \mathbf{D}_k \cdot \nabla \langle C_k^{i,k} \rangle] + \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=\alpha}^\beta \nabla \cdot [\langle H^{i,k} \rangle \rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) (C_k^{i,*} - \langle C_k^{i,k} \rangle)] \\ + \sum_{i=\alpha}^\beta \nabla \cdot [\langle H^{i,\ell} \rangle \rho_\ell \mathbf{d}_\ell (C_\ell^{i,*} - \langle C_\ell^{i,\ell} \rangle)] = \nabla \cdot [\Lambda_t \cdot \nabla \langle T \rangle] + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle \end{aligned} \quad (\text{II.5.11})$$

Table 4: *Propriétés de transport effectives*

	Quantité de mouvement	Masse	Energie
Expression des fluctuations	$\tilde{\mathbf{v}}_\ell = \mathbf{B}(\varepsilon_\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mathbf{C}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ $\tilde{p}_\ell = \mu_\ell \mathbf{b}(\varepsilon_\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell \mathbf{c}(\varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$	$\tilde{\mathbf{C}}_\ell = \alpha_\ell (\mathbf{C}_\ell^* - \langle \mathbf{C}_\ell \rangle^\ell) + \mathbf{b}_\ell \cdot \nabla \langle \mathbf{C}_\ell \rangle^\ell$ $\tilde{\mathbf{C}}_s = \alpha_s (\mathbf{C}_s^* - \langle \mathbf{C}_s \rangle^s)$	$\tilde{\mathbf{T}}_\ell = \mathbf{e}_\ell \cdot \nabla \langle T \rangle$ $\tilde{\mathbf{T}}_s = \mathbf{e}_s \cdot \nabla \langle T \rangle$
Propriétés effectives	$\varepsilon_\ell^2 \mathbf{K}^{-1} = -\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{b}\mathbf{I} + \nabla \mathbf{B}) dA$ $\varepsilon_\ell^2 \mathbf{K}^{-1} \cdot \mathbf{F} = -\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot (-\mathbf{c}\mathbf{I} + \nabla \mathbf{C}) dA$	$h_{m_s} = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{s\ell} \cdot \nabla (D_s \alpha_s) dA$ $h_{m_\ell} = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla (D_\ell \alpha_\ell) dA$ $\mathbf{D}_\ell^d = -\langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle, \mathbf{D}_\ell = \varepsilon_\ell D_\ell \mathbf{I} + \mathbf{D}_\ell^d$ $\mathbf{u}_\ell = \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \nabla (D_\ell \mathbf{b}_\ell) dA$ $\mathbf{d}_\ell = \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \alpha_\ell \rangle$	$\mathbf{\Lambda}_t = (\varepsilon_\ell \lambda_\ell + \varepsilon_s \lambda_s) \mathbf{I} - \rho_\ell C_{p_\ell} \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \mathbf{e}_\ell \rangle$ $+ \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} (\lambda_\ell - \lambda_s) \mathbf{n}_{\ell s} \mathbf{e}_\ell dA$
Problèmes de fermeture	(II.2.66)–(II.2.67)	(II.3.34), (II.3.36), (II.3.38)	(II.4.29)

II.6 Simplification du modèle macroscopique

La forme complète du modèle macroscopique (Table 3) est assez complexe, car elle met en jeu un certain nombre de termes que l'on peut qualifier de *non classiques* : d'une part les termes comprenant des *gradients de porosité* (équations de quantité de mouvement et d'espèce), et d'autre part des termes de transport de masse (termes *pseudo-convectifs*) qui font intervenir les coefficients \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ , définis dans la Table 4.

En effet, si les gradients de porosité apparaissent quelques fois dans les équations de quantité de mouvement des modèles macroscopiques de solidification dendritique (Prescott & Incropera, 1996), en revanche, ils n'apparaissent pas dans les équations de conservation d'espèce. Les termes pseudo-convectifs, quant à eux, n'apparaissent jamais dans ces modèles. Toutefois, ces termes figurent dans les modèles moyennés décrivant les transferts, hors équilibre local, de masse (Zanotti & Carbonell, 1984 ; Quintard & Whitaker, 1994a ; Chella *et al.*, 1998) ou de chaleur (Quintard *et al.*, 1997) en milieu poreux.

La résolution du modèle macroscopique complet (Table 3) ne fait pas partie des objectifs de cette thèse. En effet, cette résolution nécessiterait un nombre important de calculs de fermeture, permettant de déterminer les propriétés effectives non classiques que sont les coefficients de transport \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ . D'autre part, nous préférons résoudre un modèle simplifié, dont l'implémentation dans un code de calcul ne soit pas trop complexe.

Cela dit, nous allons montrer, d'une part par une analyse d'ordre de grandeur, d'autre part en nous appuyant sur les travaux de Quintard & Whitaker (1994a), et Quintard *et al.* (1997), qu'il est raisonnable de négliger certains termes du modèle macroscopique complet.

II.6.1 Discussion sur les termes non classiques du modèle

II.6.1.1 Termes de diffusion massique macroscopique

Deux termes de diffusion macroscopique, dans l'équation d'espèce de la phase solide, font intervenir les gradients de fraction volumique solide. Afin d'évaluer leur importance, nous déterminons l'ordre de grandeur de chaque terme du second membre de l'équation :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s) & = O \left(\varepsilon_s \rho_s D_s \frac{\langle C_s \rangle^s}{L^2} \right) & (a) \\ -\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s & = O \left(\rho_s D_s \frac{\varepsilon_s \langle C_s \rangle^s}{L_\varepsilon L} \right) & (b) \\ -\nabla \cdot [\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)] & = O \left(\rho_s D_s \frac{\varepsilon_s (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)}{L_\varepsilon L} \right) & (c) \\ \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) & = O \left(\varepsilon_s \rho_s D_s \frac{C_s^* - \langle C_s \rangle^s}{\ell_s^2} \right) & (d) \end{array} \right. \quad (II.6.1)$$

En considérant la contrainte d'échelles de longueur :

$$\ell_s \ll L_\varepsilon \sim L \quad (II.6.2)$$

on peut faire l'estimation :

$$(II.6.1d) \gg (II.6.1a) \sim (II.6.1b) \sim (II.6.1c) \quad (II.6.3)$$

En effet, le terme d'échange interfacial est nettement dominant devant les termes de diffusion macroscopique (Wang & Beckermann, 1992, Wang & Beckermann, 1993). C'est la raison pour laquelle certains modèles négligent ces termes, y compris le terme classique (II.6.1a), dans l'équation macroscopique d'espèce de la phase solide (Beckermann & Wang, 1995 ; Schneider & Beckermann, 1995a,b).

Toutefois, il faut noter que l'estimation (II.6.3) n'est valable qu'au sein de la zone pâteuse. En effet, dans la croûte, le terme d'échange est nul, ainsi que les gradients de fraction volumique solide, si bien que le terme classique (II.6.1a) est le seul terme restant au second membre de l'équation macroscopique d'espèce.

Par conséquent, on conservera dans cette équation, non seulement le terme d'échange interfacial (II.6.1d), mais également le terme de diffusion macroscopique classique (II.6.1a).

En ce qui concerne l'équation d'espèce de la phase liquide, une analyse tout à fait identique permet de négliger les termes analogues à (II.6.1b) et (II.6.1c), et de conserver le terme d'échange interfacial. Pour la partie diffusive du terme de diffusion–dispersion, le raisonnement est également le même que pour le terme (II.6.1a). La partie dispersive, quant à elle, doit bien–sûr être conservée, car elle devient significative lorsque les nombres de Péclet solutaux sont importants.

Cependant, l'équation d'espèce du liquide contient également les termes de transport faisant intervenir les coefficients \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ , qui font l'objet de la discussion suivante.

II.6.1.2 Termes de transport de masse non classiques

En régime de diffusion pure, le vecteur $\mathbf{d}_\ell = \langle \tilde{\mathbf{v}}_\ell \alpha_\ell \rangle$ est nul, et d'après le problème de fermeture (II.3.34), il en est de même pour le vecteur \mathbf{u}_ℓ . Dès lors, on peut estimer qu'en régime de diffusion dominante ($Pe_\ell^s = \|\mathbf{v}_\ell\| \ell_\ell / D_\ell < 1$), les termes $\rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$ et $-\nabla \cdot \left[\rho_\ell \mathbf{d}_\ell \left(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell \right) \right]$ sont négligeables devant les termes de changement de phase et d'échange interfacial. Les calculs de Quintard & Whitaker (1994a) montrent d'ailleurs que les vecteurs \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ sont quasiment nuls lorsque le nombre de Péclet solutal est inférieur à 10.

Pour des valeurs plus importantes du nombre de Péclet, les calculs de \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ , effectués par Quintard & Whitaker (1994a) sur des arrangements de cylindres, montrent que \mathbf{u}_ℓ et \mathbf{d}_ℓ augmentent. Toutefois, la contribution de ces vecteurs aux échanges reste inférieure à celle du terme convectif classique, bien que les auteurs de cette étude évaluent cette contribution à 10% du transport convectif total.

Dans le modèle macroscopique de Quintard *et al.* (1997), décrivant les transferts de chaleur en milieu poreux, plusieurs termes de transport non classiques, dont un de la forme $\mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle T_\ell \rangle^\ell$, apparaissent également dans les équations d'énergie moyennées. Afin de comparer l'importance de ce terme à celle du terme de transport de chaleur classique ($\varepsilon_\ell \rho_\ell C_{p_\ell} \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \langle T_\ell \rangle^\ell$), Quintard *et al.* (1997) calculent le rapport $\mathbf{u}_\ell / \left(\rho_\ell C_{p_\ell} \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \right)$. Leurs résultats suggèrent :

- que ce rapport atteint un maximum pour des valeurs faibles ou intermédiaires du nombre de Péclet thermique

- qu'il tend vers une valeur nulle lorsque le nombre de Péclet tend vers l'infini

Par conséquent, les termes pseudo-convectifs (non classiques) peuvent être importants pour une gamme limitée de valeurs du nombre de Péclet (faibles ou intermédiaires). En revanche, ils peuvent être négligés dans le régime diffusif, et dans le régime fortement convectif, pour lequel le terme de transport classique est largement dominant.

Ainsi, nous nous appuierons sur les conclusions précédentes pour négliger les termes de transport de masse non classique, qui apparaissent dans notre modèle macroscopique de solidification des mélanges binaires.

II.6.2 Résumé du modèle simplifié

Finalement, nous obtenons un modèle macroscopique simplifié, en négligeant les termes :

- $-\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s$
- $-\nabla \cdot [\rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)]$
- $-\rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$
- $-\nabla \cdot [\rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)]$
- $\rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$
- $-\nabla \cdot [\rho_\ell \mathbf{d}_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)]$

partout où ils interviennent, dans le modèle macroscopique complet (Table 3).

Ainsi, malgré ces simplifications, les équations demeurent consistantes entre elles.

Les inconnues principales :

$$\varepsilon_s, \varepsilon_\ell, \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell, \langle \mathbf{p}_\ell \rangle^\ell, \langle C_s \rangle^s, \langle C_\ell \rangle^\ell, \langle T \rangle$$

sont solutions du système d'équations de la Table 5, et de la relation :

$$\varepsilon_s + \varepsilon_\ell = 1 \tag{II.6.4}$$

Table 5: *Modèle macroscopique simplifié*

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] \quad (\text{II.6.5})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = -\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) \quad (\text{II.6.6})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = -\varepsilon_\ell \nabla \langle p_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{g} - \varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{F}) \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{II.6.7})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s \langle C_s \rangle^s) - C_s^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) = \nabla \cdot (\varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s) + \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \quad (\text{II.6.8})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + C_\ell^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) = \nabla \cdot (\rho_\ell \mathbf{D}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \quad (\text{II.6.9})$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\langle \rho \rangle \langle H \rangle) + \nabla \cdot [\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell] - \sum_{k=\ell}^s \sum_{i=p}^q \nabla \cdot [\rho_k \langle H^i \rangle^k \mathbf{D}_k \cdot \nabla \langle C_k^i \rangle^k] = \nabla \cdot [\Lambda_t \cdot \nabla \langle T \rangle] + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle \quad (\text{II.6.10})$$

II.7 Conclusion

Une modélisation macroscopique des transferts de masse et de chaleur, dans un mélange binaire en cours de solidification, a été établie à l'aide d'une technique de prise de moyenne volumique (Table 5).

Le changement d'échelle s'est effectué dans le cadre de *contraintes d'échelles de longueur* précises (Table 2), caractérisant les *variations spatiales continues, modérées mais non petites, de la porosité*, ou hétérogénéités évolutives (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999). Les différents termes, apparaissant dans les équations moyennées, ont été évalués à l'aide d'analyses d'ordre de grandeur, fondées principalement sur ces contraintes géométriques.

Chacune des *propriétés de transport effectives* (Table 4), au sein de la zone double-phase du mélange binaire, sont définies par des problèmes de fermeture. Afin de découpler le calcul des propriétés relatives aux échanges de masse (coefficient de diffusion-dispersion, coefficients d'échange), et aux échanges thermiques (conductivité effective), les variations de concentration le long de l'interface solide-liquide ont été négligées. Les contraintes associées à cette hypothèse ont été établies et vérifiées dans un cas particulier, à partir des résultats d'une expérience de la littérature (sous-paragraphe II.3.2.2).

Le modèle macroscopique, ainsi établi, est fondé sur l'hypothèse classique d'*équilibre thermique local*, formulée et justifiée par la proximité des conductivités et des capacités calorifiques des phases solide et liquide, ainsi que par l'importance du nombre de Lewis des métaux à l'état liquide. Les principales originalités du modèle macroscopique, vis-à-vis des modèles de solidification actuels (Beckermann & Wang, 1995 ; Prescott & Incropera, 1996), résident dans les points suivants:

- La *dispersion massique et thermique* est introduite dans la définition du tenseur effectif de diffusivité massique, et du tenseur effectif de conductivité thermique. De plus, la tortuosité est également prise en compte dans la définition de ce dernier. Jusqu'à présent, ces phénomènes microscopiques n'avaient pas été pris en compte dans les modèles de solidification, bien que la nécessité de définir des tenseurs de diffusivité effectifs ait été parfois soulignée (Prescott & Incropera, 1996).
- Contrairement à l'hypothèse habituelle de liquide interdendritique parfaitement mélangé (Kurz & Fisher, 1989), la *microségrégation* est décrite *dans les deux phases* du mélange binaire. Cet échange de masse, à travers l'interface solide-liquide, est modélisé par des *coefficients d'échange massique*. Si de tels coefficients apparaissent dans des modèles de solidification (Beckermann & Wang, 1995), ils sont déterminés par des calculs analytiques de longueurs microscopiques de diffusion, ou par analogie entre les échanges de masse et de quantité de mouvement (Annexe C). En revanche, une résolution numérique bi- ou tridimensionnelle des problèmes de fermeture (II.3.36)-(II.3.38), sur des images ou des schématisations de dendrites, permet de tenir compte non seulement des caractéristiques géométriques des microstructures (tortuosité des cristaux), mais également de l'intensité de l'écoulement du liquide au sein de la zone pâteuse. Dès lors, cette méthode permet d'améliorer la définition des coefficients d'échange massique des modèles de solidification dendritique.
- Des *coefficients de transport de masse* (\mathbf{u}_ℓ , \mathbf{d}_ℓ , Table 4) ont été définis. Si ces propriétés effectives ont été mises en évidence dans des études de changement d'échelle en milieu poreux (Zanotti & Carbonell, 1984 ; Quintard & Whitaker, 1994a; Chella

et al., 1998), elles n'apparaissent pas, en revanche, dans les modèles macroscopiques de solidification. Ces coefficients, ainsi que certains termes non classiques, faisant intervenir les gradients de porosité, apparaissent dans la version « complète » de notre modèle (Table 3). Cependant, la résolution d'un tel modèle ne figure pas les perspectives de cette thèse. En effet, nous avons préféré négliger l'ensemble de ces termes non classiques. Toutefois, en nous appuyant sur des travaux précédents (Quintard & Whitaker, 1994a ; Quintard *et al.*, 1997), ainsi que sur une analyse d'ordre de grandeur, nous avons montré qu'il était raisonnable de négliger ces termes.

Chapitre III

Mise en œuvre numérique

Chapitre III

Mise en œuvre numérique

III.1 Introduction

Les modèles macroscopiques, utilisant l'une des *deux descriptions classiques* (modèles de type Scheil ou règle du levier) de la solidification dendritique, ont été résolus principalement à l'aide de la méthode des volumes finis ou des éléments finis. En particulier, la résolution du modèle continu (règle du levier) de Bennon & Incropera (1987a) et de ses extensions (Prescott *et al.*, 1992 ; Krane *et al.*, 1997 ; Krane & Incropera, 1997), a été réalisée au moyen de la méthode des volumes finis et d'un algorithme décrit par Bennon & Incropera (1988). Dans les techniques de volumes finis, le couplage vitesse-pression est traité au moyen de l'algorithme SIMPLE (Voller *et al.*, 1989) de Patankar (1980), ou de ses dérivées SIMPLER (Krane & Incropera, 1997) et SIMPLEC (Ahmad *et al.*, 1998). Felicelli et coauteurs, quant à eux, utilisent la méthode des éléments finis pour résoudre leur modèle de type Scheil (Felicelli *et al.*, 1991, 1993), à l'aide d'un algorithme détaillé par Felicelli *et al.* (1993). L'une des caractéristiques de cet algorithme réside dans le calcul de la concentration moyenne du solide au cours du phénomène de refusion. En effet, lorsque la diffusion microscopique d'espèce est nulle dans le solide, la concentration macroscopique du solide est calculée en cours de refusion à l'aide d'un stockage préalable des profils microscopiques de concentration (Felicelli *et al.*, 1991, 1993).

Parmi les algorithmes les plus récents appliqués en volumes finis, on peut également mentionner celui de Schneider & Beckermann (1995a) ainsi que ceux de Swaminathan & Voller (1997) et Voller (1998). Ces méthodes, en effet, sont un peu plus générales que les précédentes, car elles s'appliquent à des *modèles macroscopiques de solidification qui prennent en compte la diffusion de masse à l'échelle microscopique dans la phase solide, le liquide étant toutefois supposé parfaitement mélangé*.

En ce qui concerne les *modèles macroscopiques de non-équilibre massique, qui décrivent la microségrégation dans le solide et le liquide extradendritique* (Annexe C), les algorithmes utilisés dans les méthodes de volumes finis sont loin d'être triviaux : les phénomènes de solidification équiaxe en présence de convection (Wang, 1994, Wang & Beckermann, 1995, 1996b), ou de solidification colonnaire et équiaxe en régime de diffusion (Wang & Beckermann, 1994), sont résolus par une *méthode à deux pas de temps*, inspirée de Thévoz *et al.* (1989). En effet, les temps caractéristiques des différents phénomènes physiques mis en jeu sont très différents (Wang & Beckermann, 1995). Par exemple, l'évolution de la fraction de grain (rapport du volume occupé par l'enveloppe de dendrite (Annexe C) et du volume du V.E.R.) est gouvernée par la croissance du sommet de dendrite, qui est beaucoup plus rapide que les phénomènes de transport macroscopique. Par conséquent, la résolution du problème microscopique décrivant la croissance de la microstructure nécessite

un pas de temps très fin. En revanche, un grand pas de temps (pas de temps « macro ») est nécessaire pour résoudre les équations macroscopiques de transport, surtout pour des applications bi- ou tridimensionnelles (Wang & Beckermann, 1996b).

Pour l'application numérique du modèle macroscopique établi (Table 5), nous avons choisi la méthode des volumes finis, telle qu'elle est décrite par Patankar (1980). Cette méthode permet d'obtenir des solutions vérifiant les bilans de masse, de quantité de mouvement et d'énergie, à la fois localement et globalement (Patankar, 1980 ; Ferziger & Perić, 1999).

Le premier objectif de ce chapitre est de construire un algorithme à la fois stable et conservatif, et de démontrer la capacité de notre modèle macroscopique, et de l'algorithme élaboré, à résoudre un problème de solidification d'un mélange binaire en cavité.

De ce point de vue, *l'une des principales difficultés réside dans la résolution des équations de masse*, dans la mesure où notre modèle décrit le non équilibre massique, ou microségrégation, dans les deux phases du mélange binaire en cours de solidification. Il est en effet reconnu que la résolution de ce phénomène est délicate. Par exemple, Tardy & Quintard (1999), qui s'intéressent aux écoulements multi-phases compositionnels en milieu poreux, soulignent que la prise en compte des échanges de masse interfaciaux (ou *cinétique*) peut nécessiter des pas de temps très fins si ce phénomène n'est pas discrétisé correctement. En solidification, cette cinétique a été résolue jusqu'à présent par l'algorithme à deux pas de temps que nous venons d'évoquer. Les auteurs de cette méthode (Wang & Beckermann, 1995, 1996b) insistent sur *les précautions particulières qui sont requises pour le calcul du taux de changement de phase*, afin d'obtenir un algorithme de solidification robuste.

Les applications numériques (2-D), présentées dans ce chapitre, concernent la solidification des mélanges binaires en cavité rectangulaire, l'écoulement du liquide résultant uniquement du phénomène de convection naturelle thermosolutale.

Un cas-test (Voller *et al.*, 1989) est présenté afin de démontrer la robustesse de l'algorithme ainsi que d'illustrer les potentialités du modèle.

III.2 Discrétisation du modèle macroscopique

III.2.1 Cadre physique de l'étude

Le modèle établi (Table 5) a été appliqué à la solidification des mélanges binaires en cavité. Nous présentons tout d'abord les quelques hypothèses physiques supplémentaires qui ont été introduites.

En revanche, notre approche des phénomènes de refusion, et de solidification eutectique, est décrite dans le paragraphe III.2.5. La discussion relative à ces phénomènes, en effet, semblera plus claire une fois que l'algorithme de résolution du modèle sera établi.

Approximations physiques supplémentaires

L'application numérique du modèle macroscopique a été réalisée dans le cadre des approximations supplémentaires suivantes :

1. Les masses volumiques du solide et du liquide sont égales, et l'approximation de Boussinesq est adoptée :

$$\rho_s = \rho_0 \quad (\text{III.2.1})$$

$$\rho_\ell = \rho_0 \left[1 - \beta_T (\langle T \rangle - T^{eut}) - \beta_S (\langle C_\ell \rangle^\ell - C^{eut}) \right] \text{ dans } \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{g} \quad (\text{III.2.2})$$

$$\rho_\ell = \rho_0 \text{ dans tous les autres termes} \quad (\text{III.2.3})$$

2. Les autres propriétés physiques (λ_k , D_k , $k = \ell, s$) sont supposées constantes.
3. Le terme de frottement inertiel n'est pas considéré.
4. Les termes représentant le flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse sont négligés.
5. Les sources internes de chaleur ne sont pas considérées.
6. Le terme $\mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$ (Table 5) est négligé dans l'équation de quantité de mouvement.
7. La partie dispersive de la diffusivité massique effective du liquide n'est pas encore introduite. Cependant, elle le sera très prochainement.
8. Les parties tortueuse et dispersive du tenseur de conductivité ne sont pas considérées.
9. Les enthalpies massiques moyennes du solide et du liquide sont supposées indépendantes des concentrations, et elles varient linéairement avec la température de mélange :

$$\langle H_s \rangle^s = C_{ps} \langle T \rangle \quad (\text{III.2.4})$$

$$\langle H_\ell \rangle^\ell = C_{p\ell} \langle T \rangle + \mathcal{L} \quad (\text{III.2.5})$$

où l'enthalpie de référence \mathcal{L} a pour expression :

$$\mathcal{L} = (C_{ps} - C_{p\ell}) T^{eut} + \left(\langle H_\ell \rangle^\ell - \langle H_s \rangle^s \right) \Big|_{T^{eut}} \quad (\text{III.2.6})$$

III.2.2 Choix des inconnues

Formulation en température

Les relations (III.2.4)-(III.2.5) permettent de formuler l'équation macroscopique de l'énergie sous la forme suivante, compte tenu des approximations précédentes :

$$\frac{\partial}{\partial t} [(\rho C_p)_m \langle T \rangle] + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_0 C_{p\ell} \langle T \rangle \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = \nabla \cdot (\lambda_m \nabla \langle T \rangle) + \mathcal{L} \frac{\partial}{\partial t} (\varepsilon_s \rho_0) \quad (\text{III.2.7})$$

où

$$(\rho C_p)_m = \varepsilon_\ell \rho_0 C_{p\ell} + \varepsilon_s \rho_0 C_{ps} \quad (\text{III.2.8})$$

est la capacité calorifique du mélange, alors que λ_m désigne la partie diffusivité de la conductivité thermique effective :

$$\lambda_m = \varepsilon_\ell \lambda_\ell + \varepsilon_s \lambda_s \quad (\text{III.2.9})$$

Dans les modèles macroscopiques de solidification, les équations d'énergie sont exprimées sous diverses formes, dont les plus courantes sont décrites par Voller *et al.* (1990). La formulation en température (III.2.7) est par exemple utilisée par Swaminathan & Voller (1997) et Voller (1998).

Certains auteurs recommandent le choix de l'enthalpie totale du mélange pour l'inconnue principale de l'équation de l'énergie (Thévoz *et al.*, 1989 ; Combeau *et al.*, 1990 ; Roch *et al.*, 1990 ; Vannier *et al.*, 1992). En effet, cette méthode est considérée comme étant la plus sûre pour assurer la conservation globale de l'énergie (Rappaz, 1989). On trouve deux variantes de cette méthode :

1. La relation $\langle T \rangle$ ($\langle H \rangle$) est parfois linéarisée à l'aide d'une itération de Newton dans les termes de convection et de diffusion (Rappaz, 1989 ; Thévoz *et al.*, 1989 ; Vannier *et al.*, 1992 ; Ahmad *et al.*, 1998). La dérivée $d\langle T \rangle/d\langle H \rangle$ s'exprime alors en fonction de la capacité calorifique du mélange et de la chaleur latente sous quatre formes différentes, selon que le volume de contrôle se situe dans le liquide, la zone pâteuse ou la croûte solide, ou durant la réaction eutectique (Ahmad *et al.*, 1998).
2. Dans le cas particulier où les enthalpies de chaque phase dépendent linéairement de la température, les termes de convection et de diffusion sont parfois exprimés en fonction de $\langle H \rangle$. Des termes sources correctifs apparaissent alors dans l'équation de l'énergie (Benetton & Incropera, 1988 ; Krane *et al.*, 1997). Cependant, selon Yoo & Viskanta (1992), la discrétisation de ces termes sources peut s'avérer délicate et ils peuvent créer des difficultés numériques.

Par conséquent, malgré son caractère conservatif, il ressort que la méthode de l'enthalpie peut être difficile à appliquer (cas 1) (Rappaz, 1989), ou qu'elle met en jeu des termes sources pouvant causer des difficultés (cas 2).

C'est pourquoi nous avons choisi la formulation en température (III.2.7). L'avantage de cette formulation est que l'équation possède une forme classique, *les problèmes associés au changement de phase étant isolés dans un unique terme source* (Voller, 1990).

Introduction des concentrations superficielles

Afin de s'assurer de la conservation globale de la masse, il est utile d'introduire les concentrations superficielles :

$$\langle C_s \rangle = \varepsilon_s \langle C_s \rangle^s \quad (\text{III.2.10})$$

$$\langle C_\ell \rangle = \varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{III.2.11})$$

comme inconnues des équations d'espèces et de continuité du solide (Tardy & Quintard, 1999). C'est en effet le meilleur moyen d'obtenir une formulation implicite des termes d'accumulation dans l'algorithme de résolution.

Les termes de diffusion macroscopique d'espèce ont alors l'expression suivante dans la phase k ($= \ell, s$) :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \left(\varepsilon_k \rho_0 D_k \nabla \langle C_k \rangle^k \right) &= \nabla \cdot \left[\varepsilon_k \rho_0 D_k \nabla \left(\varepsilon_k^{-1} \langle C_k \rangle \right) \right] \\ &= \nabla \cdot \left(\rho_0 D_k \nabla \langle C_k \rangle \right) \\ &+ \nabla \cdot \left(-\varepsilon_k^{-1} \rho_0 D_k \langle C_k \rangle \nabla \varepsilon_k \right) \end{aligned} \quad (\text{III.2.12})$$

Les termes du second membre de cette expression ont pour estimation :

$$\nabla \cdot \left(\rho_0 D_k \nabla \langle C_k \rangle \right) = O \left(\rho_0 D_k \frac{\langle C_k \rangle}{L^2} \right) \quad (\text{III.2.13})$$

$$\nabla \cdot \left(-\varepsilon_k^{-1} \rho_0 D_k \langle C_k \rangle \nabla \varepsilon_k \right) = O \left(\rho_0 D_k \frac{\langle C_k \rangle}{L_\varepsilon L} \right) \quad (\text{III.2.14})$$

Par conséquent, on peut considérer que ces deux termes sont petits devant le terme d'échange interfacial :

$$\rho_0 h_{m_k} \left(C_k^* - \varepsilon_k^{-1} \langle C_k \rangle \right) = O \left(\varepsilon_k \rho_0 \frac{C_k^* - \varepsilon_k^{-1} \langle C_k \rangle}{\ell_k^2} \right) \quad (\text{III.2.15})$$

dès lors que la séparation d'échelles de longueur est vérifiée :

$$\ell_k \ll L_\varepsilon \sim L \quad (\text{III.2.16})$$

Les termes (III.2.13)–(III.2.14) sont donc du même ordre, et petits devant le terme d'échange interfacial au sein de la zone pâteuse. Ainsi, on ne conservera que le terme classique (III.2.13), qui est non négligeable dans la phase pure k . Rappelons de plus qu'en nous appuyant sur les mêmes arguments, nous avons déjà négligé des termes de diffusion massique macroscopique faisant intervenir les gradients de porosité (paragraphe II.6) et dont l'ordre de grandeur est identique à celui de (III.2.14).

Etant donné les approximations et les changements de variables introduits dans ce paragraphe, on obtient une nouvelle forme du modèle macroscopique (Table 5), utilisée dans cette application numérique.

Les inconnues ε_s , ε_ℓ , $\langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$, $\langle p_\ell \rangle^\ell$, $\langle C_s \rangle$, $\langle C_\ell \rangle$, $\langle T \rangle$ sont donc solutions de cette version simplifiée du modèle physique, résumée dans la Table 6, et de la relation :

$$\varepsilon_s + \varepsilon_\ell = 1 \quad (\text{III.2.17})$$

Les conditions aux limites et initiales n'étant pas identiques pour les différents cas-tests abordés, elles **seront décrites dans le paragraphe (III.4)** qui présente les résultats numériques obtenus.

La discrétisation et l'algorithme de résolution de ce système font l'objet des deux sous-paragraphe suivants.

III.2.3 Méthode et schémas numériques

Le modèle macroscopique est résolu par la méthode des volumes finis structurés en deux dimensions, telle qu'elle est décrite par Patankar (1980).

Dans cette méthode, le domaine d'étude considéré est partitionné par un ensemble de volumes de contrôle, sur lesquels les différentes équations aux dérivées partielles sont intégrées. Les grandeurs scalaires (pression, température, fractions massiques d'espèce, fractions volumiques de phase) sont calculées au centre de volumes de contrôle « scalaires » \mathcal{V} (figure F.1), alors que les deux composantes de la vitesse sont calculées sur les faces de ces volumes. Ceci est réalisé au moyen de grilles décalées : les projections des équations de quantité de mouvement, dans les deux directions de l'espace, sont intégrées sur des volumes de contrôles décalés par rapport aux volumes scalaires. Les nœuds associés à ces volumes décalés se situent au milieu des faces des volumes de contrôle scalaires, et la résolution des équations de quantité de mouvement permet de calculer la valeur des composantes de la vitesse sur ces nœuds.

Les schémas utilisés pour la discrétisation spatiale et temporelle des équations sont présentés dans l'Annexe F.

III.2.4 Algorithme de résolution

L'algorithme de résolution du modèle physique (Table 6) est présenté dans la Table 7. Cet algorithme a été implémenté dans un code bidimensionnel, en modifiant le module de thermohydraulique 2-D (FORTRAN 77) du code d'accident grave ICARE-CATHARE de l'I.P.S.N. (Fichot *et al.*, 2000).

Dans l'écriture de l'algorithme, les notations simplifiées suivantes ont été introduites :

$$\mathbf{V} = \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{III.2.18})$$

$$P = \langle p_\ell \rangle^\ell \quad (\text{III.2.19})$$

$$T = \langle T \rangle \quad (\text{III.2.20})$$

$$U_s = \langle C_s \rangle = \varepsilon_s \langle C_s \rangle^s \quad (\text{III.2.21})$$

$$U_\ell = \langle C_\ell \rangle = \varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (\text{III.2.22})$$

Description de l'algorithme :

La Table 7 (page 94) présente l'algorithme itératif (boucle p) permettant de calculer les inconnues :

$$\mathbf{V}, P, T, U_s, U_\ell, \varepsilon_s, \varepsilon_\ell$$

à un instant t^{n+1} , connaissant la solution à l'instant précédent t^n .

Les étapes successives sont les suivantes :

1. Calcul de la vitesse et de la pression :

Pour le traitement du couplage vitesse–pression, deux algorithmes différents sont laissés au choix de l'utilisateur :

- Nous avons programmé l'algorithme SIMPLEC (Van Doormaal & Raithby, 1984), qui dérive de SIMPLE (Patankar, 1980), mais qui est plus consistant et moins coûteux que ce dernier. De plus, lorsque la diffusion et la convection de quantité de mouvement sont négligeables devant le gradient de pression et les termes sources, les approximations introduites dans SIMPLEC deviennent exactes (Van Doormaal & Raithby, 1984). Ces conditions sont approchées dans les écoulements en milieu poreux, et l'algorithme est donc adapté à la résolution de l'équation de quantité de mouvement dans les zones de porosité petite ou modérée de la zone pâteuse. Dans cet algorithme, le terme convectif de l'équation de quantité de mouvement est linéarisé (Table 7) : la vitesse est supposée inconnue aux nœuds situés à l'intérieur des volumes de contrôle vectoriels, et exprimée de manière explicite (\mathbf{V}^p) sur les faces de ces volumes (Ferziger & Perić, 1999).
- Nous avons également conservé l'algorithme initialement programmé dans le module de thermohydraulique : la vitesse et la pression peuvent être calculées en résolvant simultanément les équations de continuité du liquide et de quantité de mouvement. La non linéarité du terme convectif est alors traitée par un algorithme de Newton. Nous avons constaté qu'il n'était pas nécessaire de faire converger cet algorithme, et une seule itération Newton assure une bonne convergence de la boucle principale (p).

Par défaut, l'algorithme SIMPLEC est utilisé car il permet de réduire assez nettement le temps de calcul.

2. Calcul de la température :

Connaissant le nouveau champ de vitesse, l'équation d'énergie est résolue pour calculer la température. Celle-ci est alors relaxée à l'aide d'un algorithme qui est fondé sur la méthode de la sécante (Fichot *et al.*, 2000) et qui permet d'amortir d'éventuelles oscillations du champ de température.

3. Calcul des concentrations superficielles et de la fraction volumique solide :

Après mise à jour des concentrations d'équilibre en fonction des nouvelles valeurs de la température, les concentrations superficielles des deux phases et la fraction volumique solide sont calculées simultanément.

Cette démarche s'inspire de celle de Tardy & Quintard (1999), appliquée aux écoulements multi-phases compositionnels en milieu poreux. En effet, ces derniers partent du même constat que Wang & Beckermann (1995, 1996b) selon lequel *les échanges de masse sont caractérisés par deux temps très différents* : le temps des phénomènes macroscopiques d'advection–dispersion est beaucoup plus grand que le temps du phénomène microscopique d'échange interfacial. Cependant, alors que Wang & Beckermann (1995, 1996b) utilisent un algorithme à deux pas de temps que nous avons évoqué, Tardy & Quintard (1999) préconisent la méthode que nous avons également adoptée :

- introduire les concentrations superficielles (III.2.21)–(III.2.22) (produit de la saturation et de la concentration dans leur cas) de manière à obtenir une expression totalement implicite des termes d'accumulation.
- calculer simultanément ces inconnues et la fraction volumique solide (la saturation dans leur cas) à l'aide du schéma temporel d'Euler implicite (Annexe F).

Cette méthode assure une très bonne stabilité dans la résolution des équations de masse.

Dans les équations d'espèce et de continuité du solide, les coefficients d'échange massique dépendent de la porosité. Cette non linéarité est traitée par la sous-boucle q de l'algorithme (Table 7), dans laquelle les valeurs des coefficients d'échange sont prises à l'itération précédente q , jusqu'à convergence de la porosité.

Les différents systèmes linéaires sont résolus à l'aide de la méthode itérative CGS (Saad, 1996).

Critères de convergence :

1. Convergence des différents champs :

Soit $N(\Phi^{p+1})$ la norme associée à chaque champ physique Φ à l'itération $p+1$ dans le domaine d'étude Ω :

$$N(\Phi^{p+1}) = \text{Max}_{\Omega} |\Phi^{p+1} - \Phi^p| \quad (\text{III.2.23})$$

Les critères de convergence des différents champs sont alors les suivants :

$$N(V_x^{p+1}) < \alpha^v = 10^{-5} \quad (\text{III.2.24})$$

$$N(V_y^{p+1}) < \alpha^v \quad (\text{III.2.25})$$

$$\text{Max}_{\Omega} |(P^{p+1} - P^p) / P^p| < \alpha^p = 10^{-4} \quad (\text{III.2.26})$$

$$\frac{N(T^{p+1})}{\text{Max}_{\Omega}(T^{p+1})} < \alpha^T = 10^{-5} \quad (\text{III.2.27})$$

$$N(U_s^{p+1}) < \alpha^u = 10^{-5} \quad (\text{III.2.28})$$

$$N(U_\ell^{p+1}) < \alpha^u \quad (\text{III.2.29})$$

$$N(\varepsilon_s^{p+1}) < \alpha_p^\varepsilon = 10^{-5} \quad (\text{III.2.30})$$

La convergence du sous-problème de conservation de la masse (boucle q de l'algorithme) est atteinte lorsque :

$$\text{Max}_{\Omega} |\varepsilon_s^{q+1} - \varepsilon_s^q| < \alpha_q^\varepsilon = 10^{-5} \quad (\text{III.2.31})$$

2. Bilans :

En plus des critères précédents, la solution est admise lorsque les résidus de l'équation de continuité du liquide et du bilan global d'énergie sont suffisamment petits :

$$\left\{ \frac{1}{N \times M} \sum_{I=1}^N \sum_{J=1}^M \left[\frac{1}{V(I, J)} \oint_{\partial V(I, J)} \mathbf{n} \cdot (\varepsilon_\ell^{p+1} \rho_0 \mathbf{V}^{p+1}) dS \right]^2 \right\}^{1/2} < 10^{-4} \quad (\text{III.2.32})$$

$$\frac{\left| \frac{1}{V_\Omega} \left[\int_{\Omega} [\partial_t ((\rho C_p)_m T) - \mathcal{L} \partial_t (\varepsilon_s \rho_0)] dV - \oint_{\partial V_\Omega} \lambda_m \mathbf{n} \cdot \nabla T dS \right]^{p+1} \right|}{\lambda_\ell T^{eut} / a^2} < 10^{-3} \quad (\text{III.2.33})$$

Cette expression du bilan d'énergie global est valable dans le cadre considéré des systèmes fermés, la vitesse vérifiant une condition d'adhérence sur les parois.

Parmi l'ensemble de ces critères de convergence, (III.2.33) s'est avéré le plus contraignant. Cependant, il est important de s'assurer que le bilan global d'énergie est bien vérifié à chaque instant.

La conservation globale de la masse, quant à elle, est assurée dès la première itération p , grâce à la structure implicite de l'algorithme de résolution des équations de masse (sous-boucle q). En effet, nous avons constaté que la quantité :

$$\left| \frac{1}{V_\Omega} \int_{V_\Omega} \left[1 - \frac{U_s + U_\ell}{C_0} \right] dV \right|$$

qui est physiquement nulle dans un système fermé, reste toujours inférieure à 10^{-5} quel que soit le pas de temps utilisé. En revanche, *il n'en est pas toujours de même si une discrétisation inappropriée des équations de masse est utilisée* : nous avons constaté qu'une tentative de résolution séquentielle des équations d'espèce et de continuité du solide n'assurait pas toujours la conservation globale de la masse. En effet, il est important de considérer chacun des termes sources des équations (III.2.34), (III.2.38) et (III.2.39) de manière implicite : ainsi, la somme des termes d'échange (dû au mouvement de l'interface et à la diffusion / convection) des deux équations d'espèce s'annule à chaque itération p , et l'algorithme conserve la masse.

Pour les calculs de solidification que nous avons effectués, *on peut évaluer à cinq le nombre (P) moyen d'itérations p nécessaires* à la convergence, pour un pas de temps de 0,1 s.

En ce qui concerne le problème de conservation de la masse (boucle q), sa convergence n'est pas nécessaire *a priori*. Toutefois, l'expérience nous a montré que si cette convergence n'est pas atteinte, des oscillations se produisent parfois dans la boucle principale p . Pour un pas de temps de 0,1 s, le nombre (Q) d'itérations q nécessaires est souvent égal à cinq pour $p = 1$, puis ce nombre diminue progressivement jusqu'à l'unité au cours des itérations p successives.

Table 6: *Version simplifiée du modèle macroscopique pour l'application numérique*

$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_0) = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} [\rho_0 \bar{h}_{m_s}(\varepsilon_s C_s^* - \langle C_s \rangle) + \rho_0 \bar{h}_{m_\ell}(\varepsilon_\ell C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle)]$	(III.2.34)
$\nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_0 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = 0$	(III.2.35)
$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_\ell \rho_0 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_0 \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = -\varepsilon_\ell \nabla \langle p_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + \varepsilon_\ell \rho_0 \mathbf{g} - \varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$	(III.2.36)
$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_0 \langle C_s \rangle) - C_s^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_0) = \nabla \cdot (\rho_0 D_s \nabla \langle C_s \rangle) + \rho_0 \bar{h}_{m_s}(\varepsilon_s C_s^* - \langle C_s \rangle)$	(III.2.37)
$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_0 \langle C_\ell \rangle) + \nabla \cdot (\rho_0 \langle C_\ell \rangle \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) + C_\ell^* \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_0) = \nabla \cdot (\rho_0 D_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle) + \rho_0 \bar{h}_{m_\ell}(\varepsilon_\ell C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle)$	(III.2.38)
$\frac{\partial}{\partial t}[(\rho C_p)_{m_s} \langle T \rangle] + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_0 C_{p_\ell} \langle T \rangle \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell) = \nabla \cdot (\lambda_m \nabla \langle T \rangle) + \mathcal{L} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_0)$	(III.2.39)

Table 7: *Algorithme de résolution du modèle macroscopique*

Calcul itératif des inconnues à l'instant t^{n+1} :

$\mathbf{p} = 1, \mathbf{P}$:

1. Calcul de $(\mathbf{V}^{p+1}, \mathbf{P}^{p+1})$ par l'algorithme SIMPLEC

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\varepsilon_\ell^p \rho_0 \mathbf{V}^{p+1}) dS = 0 \\ \partial_t (\varepsilon_\ell^p \rho_0 \mathbf{V}^{p+1}) + \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\varepsilon_\ell^p \rho_0 \mathbf{V}^p \mathbf{V}^{p+1}) dS = \\ -\varepsilon_\ell^p \nabla \mathbf{P}^{p+1} + \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\varepsilon_\ell^p \mu_\ell \nabla \mathbf{V}^{p+1}) dS + \varepsilon_\ell^p \rho_\ell^p \mathbf{g} - (\varepsilon_\ell^p)^2 \mu_\ell (\mathbf{K}^{-1})^p \cdot \mathbf{V}^{p+1} \end{array} \right.$$

2. Calcul de T^{p+1}

$$\begin{aligned} \partial_t \left[(\rho C_p)_m^p T^{p+1} \right] + \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\varepsilon_\ell^p \rho_0 C_{p\ell} T^{p+1} \mathbf{V}^{p+1}) dS = \\ \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\lambda_m^p \nabla T^{p+1}) dS + \mathcal{L} \partial_t (\varepsilon_s^p \rho_0) \end{aligned}$$

3. Calcul de $(U_s^{p+1}, U_\ell^{p+1}, \varepsilon_s^{p+1}, \varepsilon_\ell^{p+1})$

- $C_s^* = g_s (T^{p+1}), \quad C_\ell^* = g_\ell (T^{p+1})$

- $q = 1, Q$:

$$\left\{ \begin{array}{l} \partial_t (\rho_0 U_s^{q+1}) - C_s^* \partial_t (\varepsilon_s^{q+1} \rho_0) = \\ \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\rho_0 D_s \nabla U_s^{q+1}) dS + \rho_0 \bar{h}_{m_s}^q (\varepsilon_s^{q+1} C_s^* - U_s^{q+1}) \\ \partial_t (\rho_0 U_\ell^{q+1}) + \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\rho_0 U_\ell^{q+1} \mathbf{V}^{p+1}) dS + C_\ell^* \partial_t (\varepsilon_s^{q+1} \rho_0) = \\ \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial\mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\rho_0 D_\ell \nabla U_\ell^{q+1}) dS + \rho_0 \bar{h}_{m_\ell}^q \left[(1 - \varepsilon_s^{q+1}) C_\ell^* - U_\ell^{q+1} \right] \\ \partial_t (\varepsilon_s^{q+1} \rho_0) = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_0 \bar{h}_{m_s}^q (\varepsilon_s^{q+1} C_s^* - U_s^{q+1}) + \rho_0 \bar{h}_{m_\ell}^q \left((1 - \varepsilon_s^{q+1}) C_\ell^* - U_\ell^{q+1} \right) \right] \end{array} \right.$$

- $\varepsilon_\ell^{p+1} = 1 - \varepsilon_s^{p+1}$

III.2.5 Refusion et solidification eutectique

Nous décrivons ici l'approche adoptée pour traiter le phénomène important de la refusion, qui intervient souvent dans la solidification des mélanges binaires en cavité. Une méthode qui permettrait de simuler les réactions eutectiques est également évoquée, bien qu'elle n'ait pas encore été mise en œuvre.

III.2.5.1 Le phénomène de refusion

Au cours de la solidification d'un mélange binaire en cavité, en présence de convection naturelle, il est fréquent que des refusions du solide se produisent.

Dans les modèles d'équilibre massique (règle du levier), les refusions ne posent pas de problème particulier, le solide étant supposé homogène dans un volume de contrôle.

En revanche, *la modélisation des refusions devient complexe, et difficile à appréhender d'un point de vue théorique, lorsque la microségrégation est considérée dans le solide* (Rappaz & Voller, 1990).

Nous décrivons les modèles de refusion de la littérature, puis l'approche de ce phénomène que nous avons adoptée.

Approche de Felicelli et coauteurs :

Dans certains modèles de type Scheil, qui négligent la diffusion microscopique de masse dans le solide, les relations suivantes sont stockées en cours de solidification (Felicelli *et al.*, 1991, 1993) :

$$C_s^*(\varepsilon_\ell) \quad (\text{III.2.40})$$

$$\langle C_s \rangle(\varepsilon_\ell) \quad (\text{III.2.41})$$

où la concentration interfaciale C_s^* est reliée à la température de mélange par le diagramme de phase, alors que $\langle C_s \rangle$ est déterminée par le calcul de l'intégrale :

$$\langle C_s \rangle = \int_{\varepsilon_\ell}^1 C_s^*(\eta) d\eta \quad (\text{III.2.42})$$

Les relations (III.2.40)-(III.2.41) sont stockées pour des valeurs de ε_ℓ espacées d'un incrément de valeur arbitraire. Une interpolation linéaire est alors utilisée pour évaluer C_s^* et $\langle C_s \rangle$ aux autres valeurs de ε_ℓ .

Lorsque la phase solide refond localement, les concentrations moyennes et interfaciales ne sont plus déterminées par les relations d'équilibre thermodynamique. Au contraire, elles sont déduites de l'*histoire* de la solidification, représentée par les relations (III.2.40)-(III.2.41).

Cette méthode ne constitue néanmoins qu'une approximation monodimensionnelle. En effet, si Felicelli *et al.* (1991, 1993) ont utilisé cette approche dans des applications bidimensionnelles, elle supposerait dans ce cas que le phénomène de refusion conserve la géométrie que les dendrites possédaient lors de la solidification. Ceci constitue peut-être la limite principale de cette méthode.

Approche de Beckermann et coauteurs :

Les auteurs des *modèles décrivant la diffusion microscopique d'espèce dans le solide*, à l'aide d'un coefficient d'échange massique (Annexe C), supposent que la concentration moyenne du solide reste constante dans le temps durant la refusion :

$$\langle C_s \rangle^s = \text{constante} \quad \text{pendant la refusion} \quad (\text{III.2.43})$$

Cette hypothèse a notamment été adoptée pour les problèmes de solidification dendritique colonnaire (Schneider & Beckermann, 1995a), ou purement équiaxe en présence de convection (Wang & Beckermann, 1996a).

Cette approximation supprime la nécessité d'un stockage de l'histoire de solidification. Toutefois, Wang & Beckermann (1996a) précisent que des études expérimentales seraient nécessaires afin d'examiner sa pertinence.

Approche utilisée dans ce travail :

En ce qui nous concerne, *nous avons considéré que notre modèle pouvait simuler le phénomène de refusion sans modifications physiques ou algorithmiques* (Table 7) *particulières par rapport au phénomène de solidification.*

En particulier, les concentrations interfaciales sont reliées à la température de mélange, par les relations d'équilibre thermodynamique (diagramme de phase), quel que soit le sens du changement de phase :

$$C_s^* = g_s(\langle T \rangle) \quad (\text{III.2.44})$$

$$C_\ell^* = g_\ell(\langle T \rangle) \quad (\text{III.2.45})$$

Qualitativement, la validité de cette approche dépend de l'importance de la diffusion microscopique de masse dans le solide, représentée par le coefficient d'échange h_{m_s} .

En effet, si cette diffusion est suffisamment rapide devant la vitesse de solidification, le changement de phase a lieu dans une situation de quasi-équilibre local (proche de la règle du levier). En revanche, si la diffusion microscopique de masse est trop lente dans le solide, les profils microscopiques de concentration restent quasiment figés. Dès lors, la concentration interfaciale C_s^* devrait plutôt être déduite de l'histoire de la solidification. Dans le cas particulier d'une refusion du solide à température constante, ou dissolution, la relation (III.2.44) semble en effet inappropriée car C_s^* resterait constante au cours du temps, alors qu'une certaine microségrégation existe dans la phase solide.

Cependant, nous pensons intuitivement que les erreurs induites par l'application des relations (III.2.44)-(III.2.45), au cours des refusions, sont minimales dans le cas où ces refusions restent *locales* dans le temps et dans l'espace.

Dans tous les cas, il serait intéressant dans le futur de confronter les résultats obtenus par l'application des deux modèles de refusion que l'on trouve dans la littérature (III.2.40)-(III.2.42), (III.2.43) et des relations (III.2.44)-(III.2.45) que nous avons utilisées jusqu'à présent.

III.2.5.2 Solidification eutectique

Dans un volume de contrôle où une réaction eutectique se produit, le changement de phase est identique à celui d'un corps pur puisqu'il a lieu à la température constante T^{eut} .

C'est pourquoi Wang (1994) a utilisé l'algorithme de Voller (1990), initialement établi pour les corps purs, afin de simuler les réactions eutectiques dans son modèle de non-équilibre massique décrivant la solidification équiaxe d'un mélange binaire.

Ainsi, lorsque la température T^{eut} est atteinte dans un volume de contrôle, Wang (1994) simule la réaction eutectique en deux étapes :

1. La température est maintenue à T^{eut} par une méthode de pénalisation : dans le système linéaire associé à l'équation de l'énergie, les éléments diagonaux de la matrice, relatifs à chaque volume de contrôle où la réaction eutectique se produit, sont remplacés par un nombre arbitrairement grand a_P (10^{30}), et la quantité $a_P T^{eut}$ est ajoutée au second membre de l'équation discrète. Le champ de température est alors calculé.
2. Dans chaque volume de contrôle où la réaction eutectique se produit, la porosité est déduite de l'équation d'énergie dans laquelle la relation $T = T^{eut}$ est introduite.

Nous avons réfléchi à la possibilité d'adapter cette technique à notre modèle. Il ressort que *cette méthode demanderait une modification importante des équations de masse par rapport à notre algorithme de solidification non eutectique* (Table 7), décrit précédemment dans ce chapitre. En effet :

- L'équation de continuité du solide ne peut plus être résolue car elle perd son sens durant la réaction eutectique, dans la mesure où $C_s^* = C_l^* = C^{eut}$.
- Les deux équations d'espèce seraient alors résolues en exprimant la fraction volumique solide de manière explicite (déduite de l'étape 2 ci-dessus), alors qu'elle est implicite dans l'algorithme de solidification non eutectique. Pour assurer la conservation de la masse, il faudrait de plus annuler les termes d'échange interfacial dans ces deux équations.

Confrontés aux difficultés évoquées, *nous n'avons pas tenté de simuler les solidifications non eutectiques.*

Cependant, ce phénomène nous intéresse tout de même, et notre réflexion pourra déboucher dans le futur sur la mise au point d'un algorithme.

III.3 Validation de la méthode numérique en convection naturelle

Dans ce travail, le modèle macroscopique établi a été appliqué au problème de solidification des mélanges binaires en cavité. Dès lors, il était important de valider la méthode numérique utilisée sur des problèmes classiques de convection naturelle.

Plus particulièrement, nous avons choisi d'aborder le cas-test de convection thermique d'un fluide (convection naturelle de l'air en cavité carrée, de Valh Davis & Jones, 1983 ;

Le Quéré & Alziary de Roquefort, 1985). Nous avons aussi résolu le problème de convection thermique en milieu poreux, avec transport d'espèce. Les résultats relatifs à ce cas-test ont été comparés à ceux de (Goyeau *et al.*, 1996).

La description de ces problèmes, ainsi que les résultats obtenus sur ces cas-tests, sont donnés dans l'Annexe G.

Ces résultats sont en bon accord avec les solutions de référence, en particulier pour des valeurs relativement élevées du nombre de Rayleigh thermique (jusqu'à 10^7) dans le cas de la convection naturelle de l'air (Tables G.1 et G.2).

Bien entendu, ces calculs ne valident que la discrétisation des termes de diffusion et de convection, ainsi que celle des termes de Boussinesq et de Darcy. Ils ne valident en aucune manière les termes associés au changement de phase.

III.4 Solidification des mélanges binaires en cavité

III.4.1 Solidification du mélange NH_4Cl (10%) – H_2O

Afin de tester et de mettre au point l'algorithme de résolution établi (Table 7), nous avons choisi de confronter les résultats du modèle à ceux de Voller *et al.* (1989). Ce cas-test permet aussi de faire une première évaluation de la pertinence et des potentialités du modèle physique. Il a été sélectionné pour les raisons suivantes :

- La cavité est de petite dimension (2,5 cm de côté). Les nombres de Grashof thermique et solutal sont alors relativement modérés (page 105).
- La solidification est *entièrement non eutectique*, la température restant supérieure à T^{eut} . En effet, nous n'avons pas encore mis au point une méthode permettant de simuler les réactions eutectiques. Or, nous voulions tester la robustesse de la méthode numérique sur la solidification complète d'un système.
- Les résultats de Voller *et al.* (1989) n'indiquent pas de refusions importantes. En effet, comme nous l'avons évoqué dans le sous-paragraphe III.2.5.1, nous pensons que notre approche du phénomène de refusion conduit à des erreurs minimales lorsque ce phénomène reste local.

III.4.1.1 Description du cas-test

Le système considéré est représenté par la figure III.1.

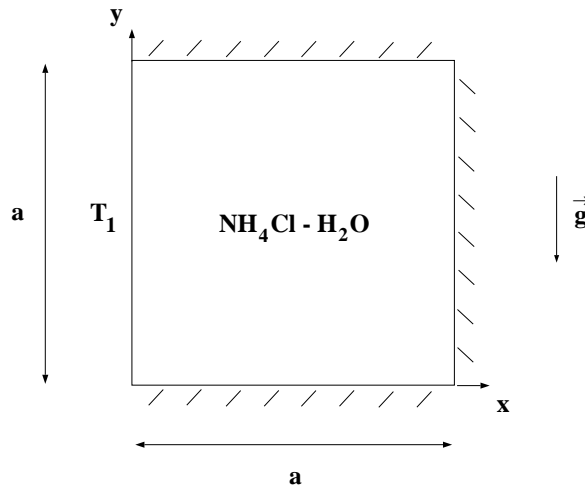


Figure III.1: Cas test de Voller *et al.* (1989)

Les conditions aux limites et initiales sont les suivantes :

Conditions aux limites :

$$\mathbf{V} = 0 \quad \text{en} \quad x = 0, x = a, y = 0, y = a \quad (\text{III.4.1})$$

$$T = T_1 = 400 \text{ K} \quad \text{en} \quad x = 0 \quad (\text{III.4.2})$$

$$\frac{\partial T}{\partial x} = 0 \quad \text{en} \quad x = a \quad (\text{III.4.3})$$

$$\frac{\partial T}{\partial y} = 0 \quad \text{en} \quad y = 0, y = a \quad (\text{III.4.4})$$

$$\frac{\partial U_s}{\partial x} = 0, \frac{\partial U_\ell}{\partial x} = 0 \quad \text{en} \quad x = 0, x = a \quad (\text{III.4.5})$$

$$\frac{\partial U_s}{\partial y} = 0, \frac{\partial U_\ell}{\partial y} = 0 \quad \text{en} \quad y = 0, y = a \quad (\text{III.4.6})$$

Conditions initiales :

$$\mathbf{V} = 0 \text{ m.s}^{-1}, P = 1 \text{ Pa}, T = T^{ini} = 600 \text{ K} \quad (\text{III.4.7})$$

$$U_\ell = \frac{\varepsilon_\ell^{ini} C_0}{\varepsilon_\ell^{ini} (1 - k) + k} \quad (\text{III.4.8})$$

$$U_s = k (1 - \varepsilon_\ell^{ini}) \frac{U_\ell}{\varepsilon_\ell^{ini}} \quad (\text{III.4.9})$$

$$\varepsilon_\ell = \varepsilon_\ell^{ini} = 1 - \varepsilon_s^{ini} \quad (\text{III.4.10})$$

$$\varepsilon_s = \varepsilon_s^{ini} = 10^{-4} \quad (\text{III.4.11})$$

$$C_0 = 0, 1 \quad (\text{III.4.12})$$

Les conditions (III.4.8)–(III.4.12) traduisent un état d'équilibre massique initial (règle du levier) :

$$U_\ell + U_s = C_0 \quad (\text{III.4.13})$$

$$\frac{U_s}{\varepsilon_s} = k \frac{U_\ell}{\varepsilon_\ell} \quad (\text{III.4.14})$$

où k est le coefficient de ségrégation du diagramme de phase linéarisé, dont le liquidus et le solidus sont décrits par les relations :

$$C_\ell^* = g_\ell(T) = \frac{T - T_f}{m_\ell} \quad (\text{III.4.15})$$

$$C_s^* = g_s(T) = k g_\ell(T) \quad (\text{III.4.16})$$

L'ensemble des données relatives au cas-test sont les suivantes (Voller *et al.*, 1989) :

Conditions aux limites et initiales	a	0,025 m
	C_0	0,1
	T^{ini}	600 K
	T_1	400 K
Diagramme de phase	T_f	630 K
	T^{eut}	250 K
	C^{eut}	0,8
	m_ℓ	- 475 K
	k	0,3
Propriétés physiques	$C_{p\ell}$	3000 J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
	C_{ps}	3000 J.kg ⁻¹ .K ⁻¹
	λ_ℓ	0,4 W.K ⁻¹ .m ⁻¹
	λ_s	0,4 W.K ⁻¹ .m ⁻¹
	ρ_0	1000 kg.m ⁻³
	μ_ℓ	10 ⁻³ Pa.s
	D_ℓ	4,8.10 ⁻⁹ m ² .s ⁻¹
	D_s	10 ⁻¹³ m ² .s ⁻¹
	\mathcal{L}	3.10 ⁵ J.kg ⁻¹
	K_0	5.10 ⁻¹⁰ m ²
	β_T	4.10 ⁻⁵ K ⁻¹
	β_s	0,025

Table 8: *Données du cas-test de Voller et al. (1989)*

La valeur de D_s n'est pas donnée dans la littérature, car jugée quasiment nulle. Pour les calculs, nous avons pris $D_s = 10^{-13}$ m².s⁻¹ dans le terme de diffusion macroscopique.

III.4.1.2 Propriétés effectives utilisées

Les phénomènes de dispersion ne sont pas pris en compte dans ce premier cas test. Les modèles utilisés pour la perméabilité et les coefficients d'échange massique sont décrits dans ce sous-paragraphe.

Perméabilité :

Nous avons suivi la démarche de Voller *et al.* (1989), qui utilisent le modèle isotrope de Kozeny-Carman (Annexe B, B.1). La valeur de la constante K_0 , qui intervient dans ce modèle, est donnée dans la Table (8).

Coefficients d'échange massique :

Pour déterminer le coefficient d'échange massique de la phase liquide, h_{m_ℓ} , nous avons

résolu le problème de fermeture (II.3.36) dans une cellule unité, représentative d'un arrangement périodique de cylindres de révolution (figure III.2).

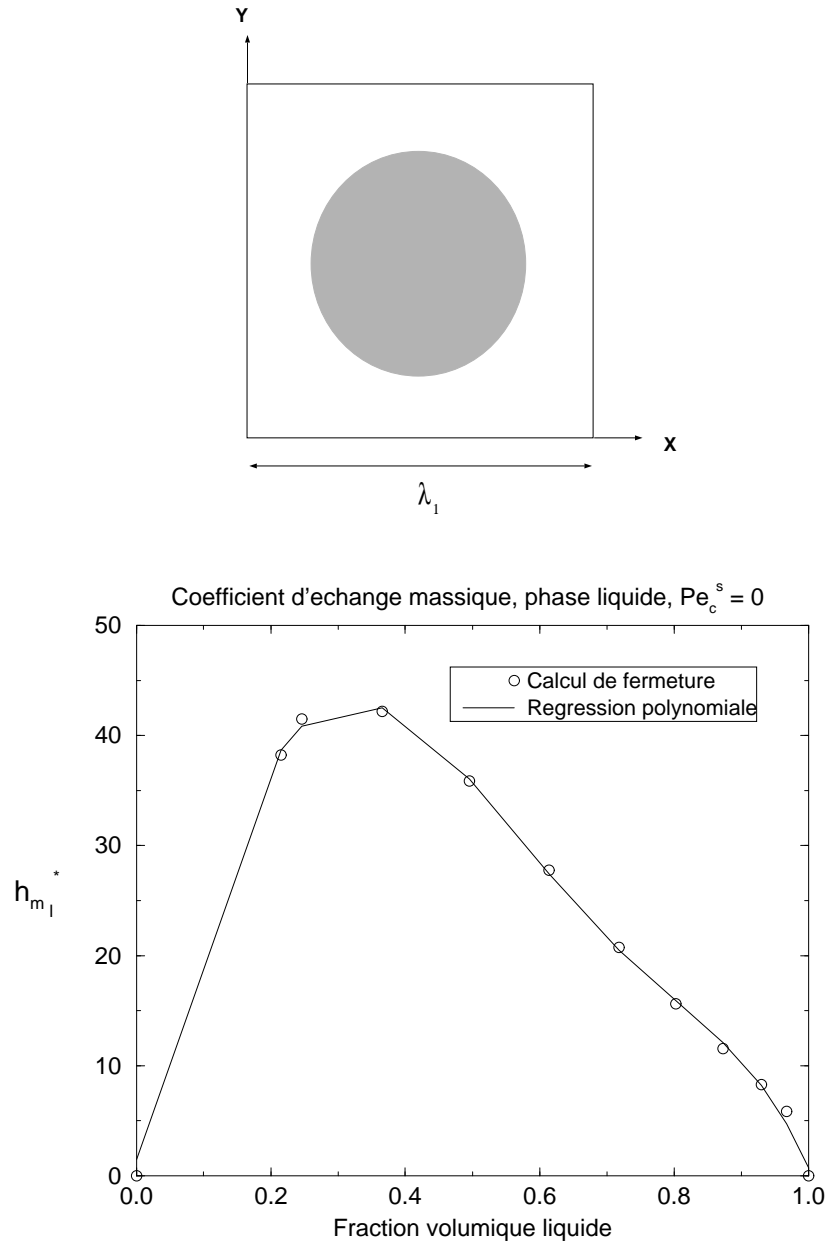


Figure III.2: cellule unité et coefficient d'échange massique calculé

Les calculs correspondent à un régime de diffusion pure ($Pe_c^s = \langle v_\ell \rangle^\ell \lambda_1 / D_\ell = 0$). Ils ont été effectués à l'aide du code de fermeture, initialement développé par Michel Quintard (Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse) pour les problèmes de transport de contaminants en milieu poreux (Quintard & Whitaker, 1994a), puis modifié pour la résolution du problème de fermeture (II.3.36).

Le coefficient d'échange adimensionné :

$$h_{m\ell}^* = \frac{\lambda_1^2}{D_\ell} h_{m\ell} \quad (\text{III.4.17})$$

a été calculé pour 10 valeurs différentes de la porosité, comprises entre 0,215 et 0,9675 et supposé nul dans les phases pures ($\varepsilon_\ell = 0$ ou 1), pour que les équations macroscopiques de conservation de la masse dégénèrent correctement. Une régression non linéaire a permis d'obtenir la corrélation suivante, qui approche de manière très précise les valeurs numériques obtenues (figure III.2) :

$$h_{m\ell} = \frac{D_\ell}{\lambda_1^2} [256 \varepsilon_\ell - 300 \varepsilon_\ell^2 - 653 \varepsilon_\ell^3 + 1320 \varepsilon_\ell^4 - 623 \varepsilon_\ell^5] \quad (\text{III.4.18})$$

Cette corrélation a été étendue au coefficient d'échange massique de la phase solide :

$$h_{m_s} = \frac{D_s}{\lambda_1^2} [256 \varepsilon_s - 300 \varepsilon_s^2 - 653 \varepsilon_s^3 + 1320 \varepsilon_s^4 - 623 \varepsilon_s^5] \quad (\text{III.4.19})$$

Les deux coefficients étant nuls pour $\varepsilon_s = 0$, il est nécessaire de considérer une phase solide résiduelle ($\varepsilon_s^{ini} > 0$) de manière à initier la solidification selon le modèle de nucléation suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bullet \quad h_{m_s} = h_{m_\ell} = 0 \quad \text{durant la période de surchauffe initiale } (T > g_\ell^{-1}(\langle C \rangle)) \\ \bullet \quad h_{m_s}(\varepsilon_s^{ini}) \neq 0, h_{m_\ell}(\varepsilon_\ell^{ini}) \neq 0 \quad \text{dès que } T \leq g_\ell^{-1}(\langle C \rangle) \end{array} \right.$$

Cette approche est d'ailleurs identique à celle que Wang & Beckermann (1994) ont utilisée pour initier la solidification dans le problème de transition colonnaire / équiaxe qu'ils ont traité.

Nous avons vérifié que la valeur $\varepsilon_s^{ini} = 10^{-4}$ était suffisamment petite pour ne pas influencer les résultats numériques.

Modèle de microségrégation résultant :

Le phénomène de microségrégation est souvent illustré par les variations de la fraction volumique solide en fonction de la température (Clyne & Kurz, 1981 ; Flemings, 1991), ou de la concentration interfaciale du solide (Rappaz, 1989), dans un élément de volume à température uniforme (0-D), et diminuant dans le temps.

Afin de déterminer la relation $\varepsilon_s(C_s^*)$, les équations de masse du modèle macroscopique ont été résolues dans un volume élémentaire soumis à un refroidissement constant :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = 10^{-1} \text{ K.s}^{-1} \quad (\text{III.4.20})$$

en utilisant les définitions (III.4.18)–(III.4.19) des coefficients d'échange massique.

Ce calcul a été fait pour le mélange binaire Fe–0,8% C avec les données thermophysiques de Schneider & Beckermann (1995a). L'espacement primaire de dendrites λ_1 a été pris égal à 350 μm , valeur typique des aciers selon les mêmes auteurs.

La figure III.3 présente les résultats obtenus pour deux valeurs différentes de la diffusivité massique du solide D_s , et comparés aux solutions analytiques qui correspondent à la règle du levier et au modèle de Scheil.

Pour les faibles valeurs de C_s^* , on constate un certain déséquilibre massique (surfusion solutale), qui retarde la solidification par rapport aux deux modèles analytiques classiques.

Lorsque C_s^* augmente, les courbes se rapprochent d'autant plus de celle de la règle du levier que la diffusivité D_s est surestimée. Pour la valeur $D_s = 10^{-13} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, typique des alliages métalliques (tels que Al-Cu, Kurz & Fisher, 1989), la courbe n'est pas ici représentée mais nous avons constaté qu'elle coïncidait avec celle du modèle de Scheil.

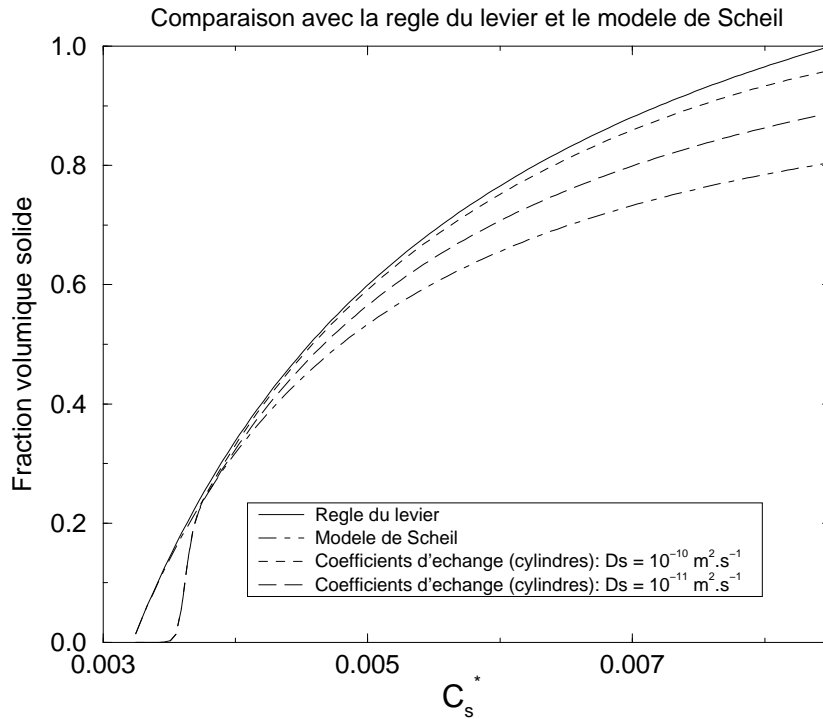


Figure III.3: *Microségrégation : relation entre ε_s et C_s^**

III.4.1.3 Résultats et discussion

Les calculs ont été effectués pour deux valeurs différentes du coefficient d'expansion solutale β_s . Les valeurs des nombres de Grashof thermique Gr_T et solutal Gr_s , et du rapport des forces volumiques N :

$$Gr_T = \frac{\beta_T g (T^{ini} - T^{eut}) a^3}{\nu_\ell^2} \quad (\text{III.4.21})$$

$$Gr_s = \frac{\beta_s g (C_0 - C^{eut}) a^3}{\nu_\ell^2} \quad (\text{III.4.22})$$

$$N = \frac{Gr_s}{Gr_T} \quad (\text{III.4.23})$$

sont les suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \beta_s = 0,025 : Gr_T = 3,38.10^5, Gr_s = -4,23.10^5, N = -1,25 \quad (a) \\ \beta_s = 0,25 : Gr_T = 3,38.10^5, Gr_s = -4,23.10^6, N = -12,5 \quad (b) \end{array} \right. \quad (\text{III.4.24})$$

Nous avons fait varier le paramètre β_s car nos résultats sont très différents de ceux de Voller *et al.* (1989) pour la valeur $\beta_s = 0,025$ qu'ils utilisent, en ce qui concerne les effets de convection solutale et de macroségrégation qui en résultent.

La diffusivité massique D_s a été prise égale $4,8.10^{-9} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ ($= D_\ell$) dans l'expression du coefficient d'échange massique h_{m_s} , qui est ainsi surestimé de manière à confronter nos résultats à ceux du modèle de règle du levier de Voller *et al.* (1989).

L'espacement primaire de dendrite λ_1 est un paramètre du modèle, qui intervient dans la définition des coefficients d'échange massique (III.4.19)-(III.4.18). Dans la mesure où le mélange binaire $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ cristallise avec une morphologie similaire à celle des alliages métalliques (Prescott & Incropera, 1996), nous avons pris $\lambda_1 = 300\mu\text{m}$, valeur caractéristique de l'alliage Pb-Sn (Fellicelli *et al.*, 1993). L'influence de la valeur de λ_1 , dans l'expression des coefficients d'échange massique, sur la solidification, devra être examinée dans les recherches futures.

Les paramètres numériques, relatifs aux trois calculs effectués, sont les suivants :

Table 9: *Calculs effectués sur le cas-test de Voller et al. (1989)*

Cas n ⁰	β_s	Maillage régulier	Pas de temps	Temps final
1	0,025	30 × 30	0,1 s	3000 s
2	0,25	30 × 30	0,1 s	3000 s
3	0,25	60 × 60	0,05 s	150 s

Le schéma amont du premier ordre (Annexe F) a été utilisé dans l'ensemble des équations de transport pour chacun des trois cas.

L'évolution du champ de porosité au cours du temps est représentée dans la Table 10 pour les calculs n° 1 et 2 (Table 9). Le système étant totalement solidifié à 3000 s, la cinétique globale de solidification est identique à celle de Voller *et al.* (1989) dans le cas 1. Elle est un peu plus lente dans le cas 2, car la valeur maximale de la porosité est égale à 0,4 à 3000 secondes.

• **Comparaisons des résultats des cas 1 et 2 :**

Dans le cas 1, le rapport N est très proche de -1. Dès lors, il est difficile de prévoir le sens de rotation de l'écoulement dans la cavité car les forces volumiques thermiques et solutales s'opposent et ont quasiment la même intensité.

Selon les résultats de Voller *et al.* (1989), qui correspondent au cas 1, une cellule de convection thermique se développe en début de solidification, puis une deuxième cellule d'origine solutale apparaît dans la région inférieure de la zone pâteuse, et se développe avec le degré de macroségrégation dans le mélange, aux dépens de la cellule thermique. A 500 s, celle-ci a totalement disparu au profit de la cellule solutale.

Structures d'écoulement :

Les lignes de courant, à 200 et 500 secondes, sont représentées dans la Table 11.

La fonction de courant Ψ étant définie par les relations :

$$\varepsilon_\ell V_x = -\frac{\partial \Psi}{\partial y} \quad (\text{III.4.25})$$

$$\varepsilon_\ell V_y = \frac{\partial \Psi}{\partial x} \quad (\text{III.4.26})$$

elle est solution du problème suivant :

$$\nabla^2 \Psi = \frac{\partial(\varepsilon_\ell V_y)}{\partial x} - \frac{\partial(\varepsilon_\ell V_x)}{\partial y} \quad \text{dans } \Omega \quad (\text{III.4.27})$$

$$\Psi = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega \quad (\text{III.4.28})$$

Contrairement à Voller *et al.* (1989), nous obtenons dans le cas 1 une unique cellule thermique à $t = 500$ s : le signe négatif de la fonction de courant indique que l'écoulement est descendant dans la région la plus froide, à l'intérieur de la zone pâteuse.

En revanche, dans le cas 2 caractérisé par une valeur de N nettement inférieure à -1 ($N = -12,5$), les forces solutales sont dominantes : on constate à 500 secondes qu'une cellule de convection solutale s'est développée aux dépens de la cellule thermique initiale que l'on peut voir à 200 secondes. Il ne reste de celle-ci à 500 secondes qu'un petit tourbillon dans la partie inférieure droite de la cavité.

Macroségrégation :

L'évolution au cours du temps de la macroségrégation, correspondant aux cas 1 et 2, est représentée dans la Table 12 par les isovaleurs du champ $\langle C \rangle / C_0 - 1$.

Dans le cas 1, le degré de macroségrégation demeure très faible, de -5% à 5% environ. On remarque tout de même que le soluté, rejeté par le solide au sein de la zone pâteuse, est advecté par le liquide, qui descend dans la zone pâteuse et s'accumule donc dans la partie inférieure gauche de la cavité.

Dans le cas 2, en revanche, la convection solutale génère une macroségrégation beaucoup plus importante. Le soluté, rejeté dans le liquide interdendritique, est advecté par l'écoulement qui est ascendant dans la zone pâteuse, et s'accumule dans la partie supérieure de la cavité. Un cône de macroségrégation négative se développe, au contraire, dans la région inférieure du système. La répartition de la composition finale du mélange dans le cas 2, à 3000 secondes, est qualitativement comparable à celle que Voller *et al.* (1989) ont obtenue avec des données correspondant au cas 1.

- **Sensibilité des solutions au maillage**

L'influence de la finesse du maillage est illustrée dans la Table 13 par les champs de porosité à 100 secondes et de lignes de courant à 100 et 150 secondes dans les cas 2 et 3.

Le champ de porosité obtenu avec le maillage grossier (30×30 , cas 2) possède une forme légèrement plus irrégulière que dans le cas du maillage fin, à la frontière délimitant la zone pâteuse et la région liquide (matérialisée par la ligne de porosité égale à 0,9). En conséquence, les lignes de courant sont également irrégulières, et on remarque trois petits tourbillons au sein de la cellule solutale principale.

Dans le cas du maillage 60×60 , les lignes d'isovaleurs de la porosité et les lignes de courant possèdent une forme plus régulière, et un seul tourbillon solutal apparaît au sein de la zone pâteuse à 100 secondes, avant de se diviser en deux cellules à 150 secondes.

Table 10: *Cas-test de Voller et al. (1989) : évolution de la porosité au cours du temps*

Cas 1 : $\beta_s = 0,025$, maillage 30×30

Cas 2 : $\beta_s = 0,25$, maillage 30×30

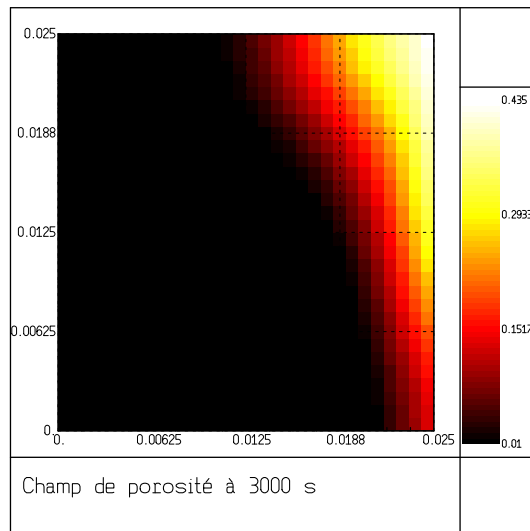
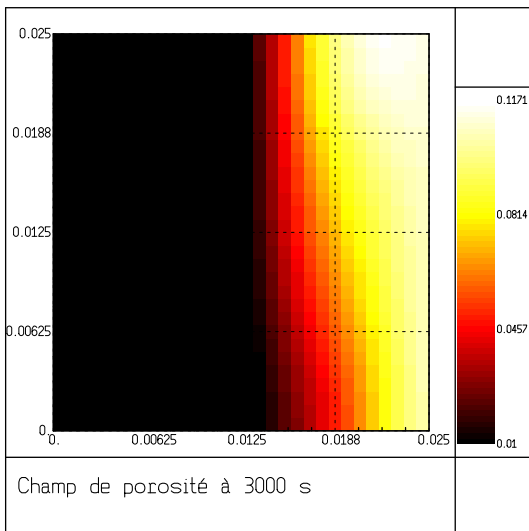
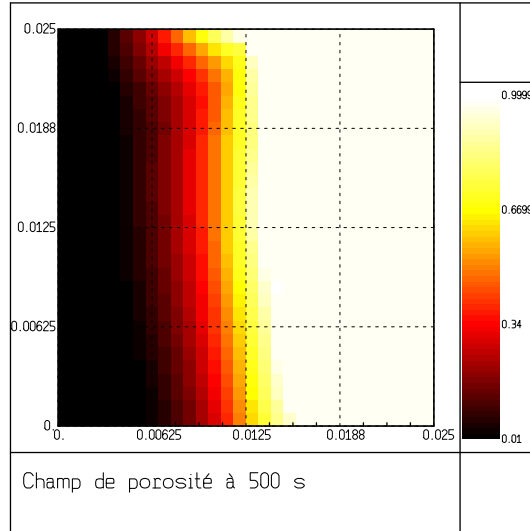
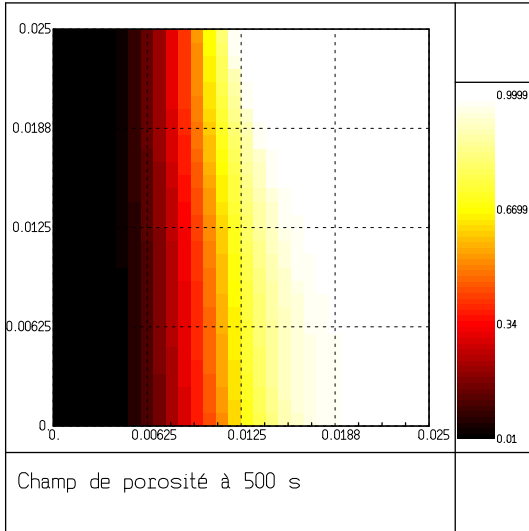
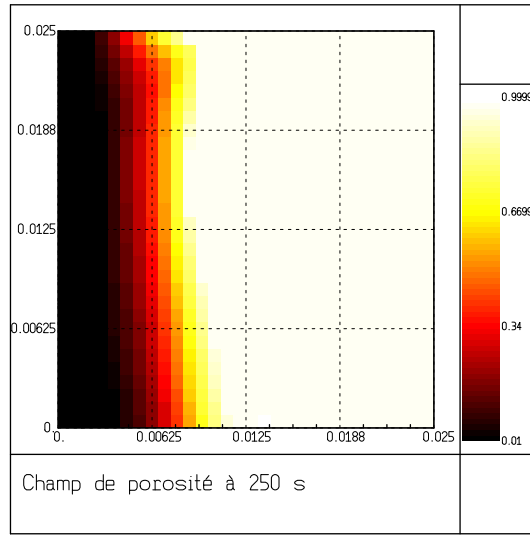
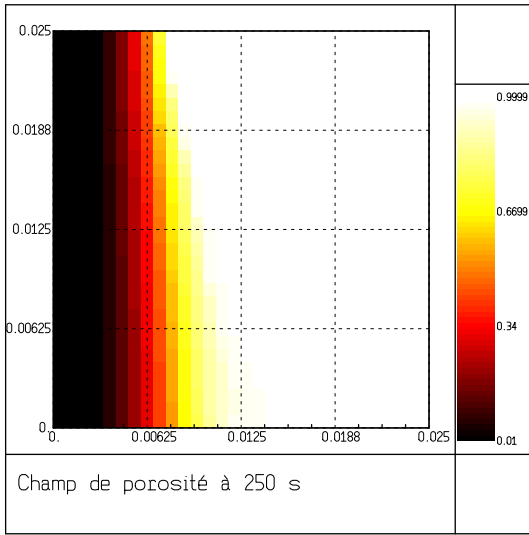


Table 11: *Cas-test de Voller et al. (1989) : influence de β_S sur l'écoulement*

Cas 1 : $\beta_S = 0,025$, maillage 30×30

Cas 2 : $\beta_S = 0,25$, maillage 30×30

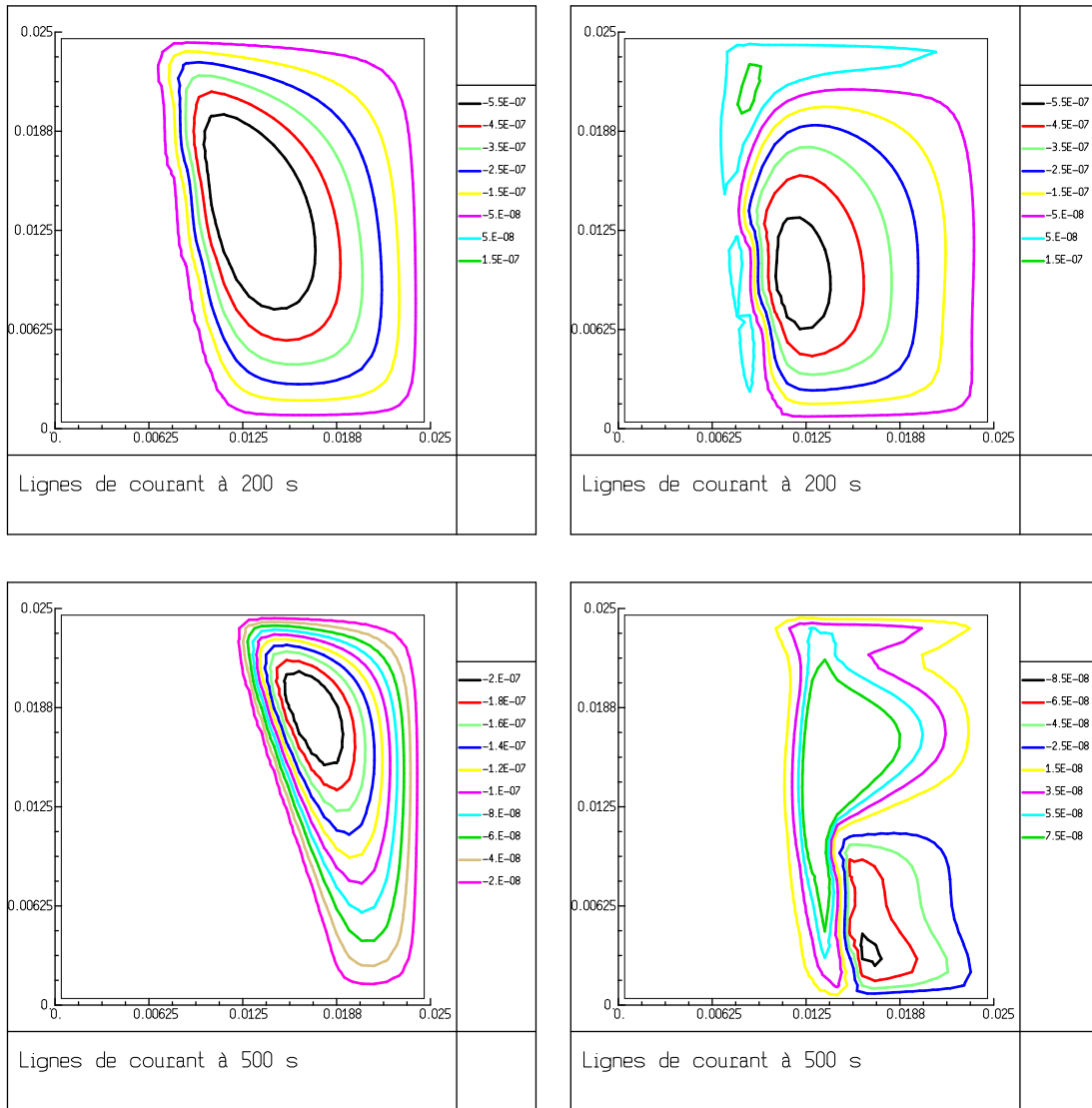


Table 12: *Cas-test de Voller et al. (1989) : isovaleurs du champ $\frac{\langle C \rangle}{C_0} - 1$*

Cas 1 : $\beta_S = 0,025$, maillage 30×30

Cas 2 : $\beta_S = 0,25$, maillage 30×30

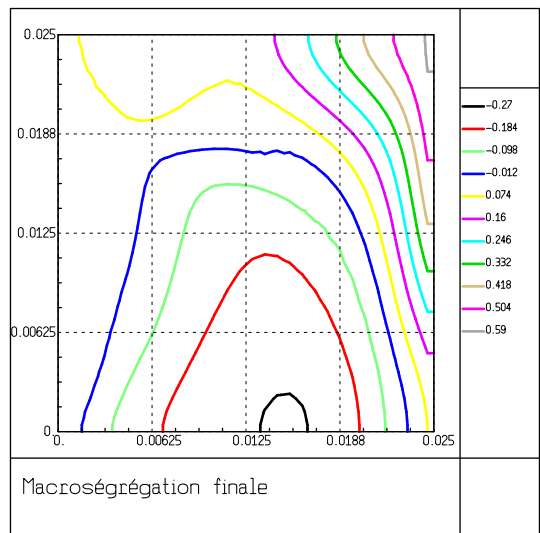
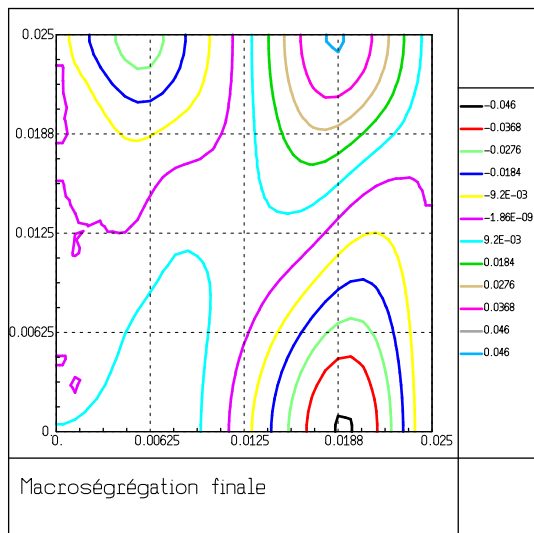
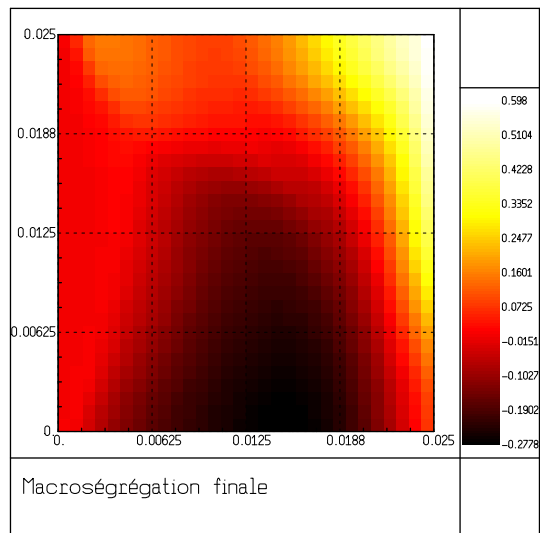
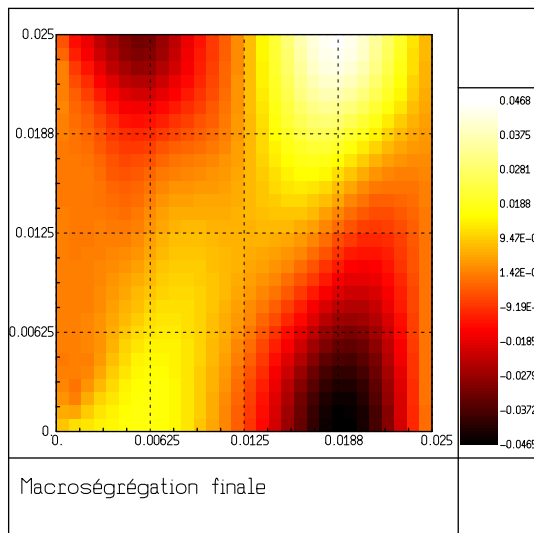
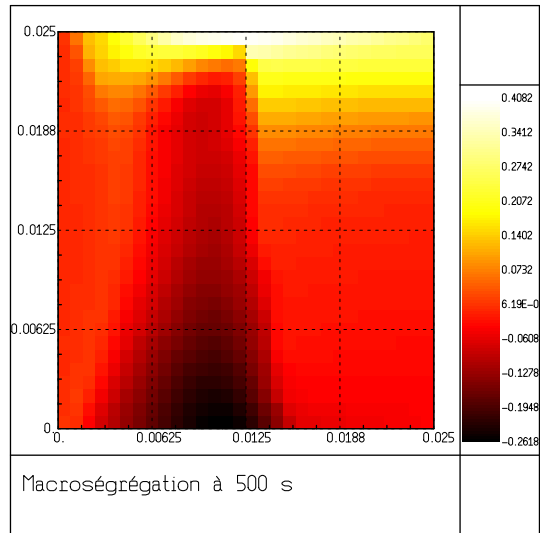
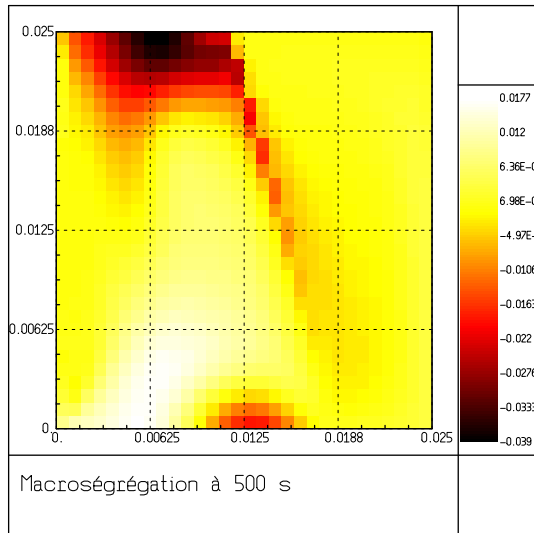
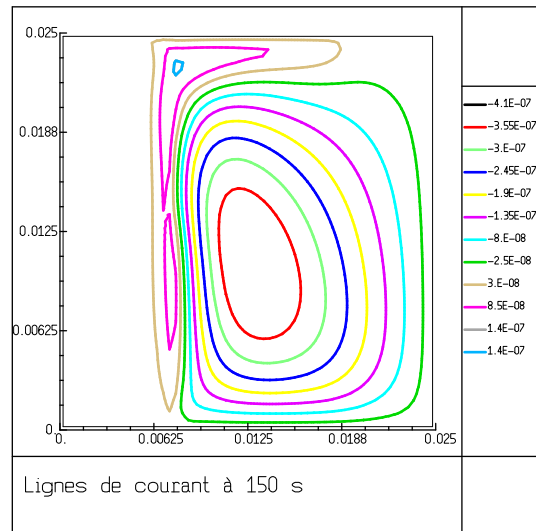
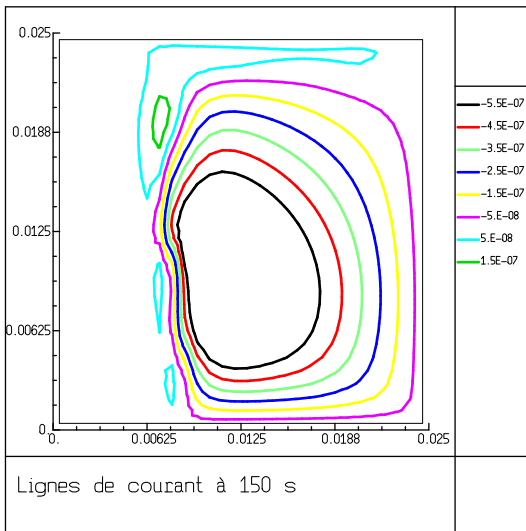
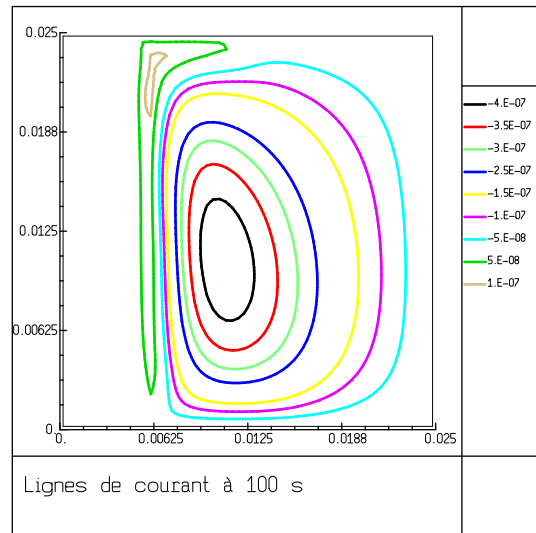
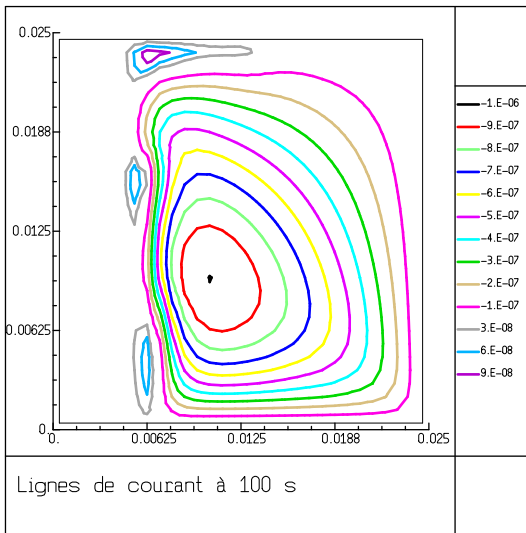
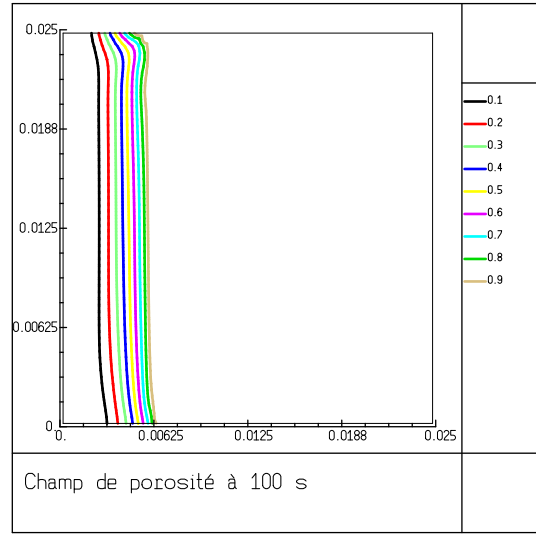
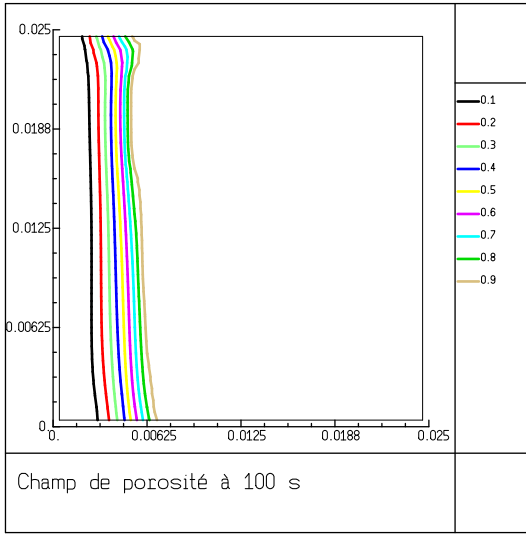


Table 13: *Cas-test de Voller et al. (1989) : influence du maillage sur les champs de porosité et de lignes de courant*

Cas 2 : $\beta_s = 0,25$, maillage 30×30

Cas 3 : $\beta_s = 0,25$, maillage 60×60



III.5 Conclusion

Une méthode numérique a été mise au point pour la résolution du modèle macroscopique de solidification des mélanges binaires.

Une attention particulière a été portée sur la discrétisation de équations de masse, qui s'avère délicate lorsque les phénomènes d'échange interfacial sont pris en compte (Wang & Beckermann, 1996b ; Tardy & Quintard, 1999) : un choix judicieux d'inconnues (produit des concentrations et des fractions volumiques de phase) et d'algorithme (calcul simultané de ces inconnues et de la fraction volumique solide) a permis d'obtenir une résolution stable et conservative des équations de masse.

L'algorithme établi (Table 7) est une alternative au schéma à deux pas de temps qui a été conçu et appliqué jusqu'à présent pour la résolution des modèles multiphasiques (Annexe C) de solidification des mélanges binaires (Wang, 1994 ; Wang & Beckermann, 1995, 1996b).

En abordant un premier cas-test (Voller *et al.*, 1989), nous voulions avant tout tester et démontrer la pertinence et la robustesse de la méthode numérique développée. La solidification complète du mélange binaire $\text{NH}_4\text{Cl}(10\%)\text{-H}_2\text{O}$, dans une cavité carrée, a été simulée. Les résultats illustrent les potentialités du modèle physique, au niveau du couplage existant entre la macroségrégation et les structures d'écoulement.

Dans cette application, la méthode de fermeture des équations moyennées, développée dans le Chapitre II, a été utilisée pour définir les coefficients d'échange massique des deux phases du mélange. L'espacement primaire de dendrites λ_1 est un paramètre physique du modèle macroscopique, qui intervient dans la définition de ces coefficients. L'influence de la valeur de λ_1 sur la solidification devra être examinée prochainement.

Une étude plus approfondie de l'influence de la finesse du maillage est également nécessaire. Dans cette perspective, un travail de vectorisation du code de calcul est en cours, afin d'optimiser les temps de calcul. Par ailleurs, l'influence du schéma du deuxième ordre QUICK (Annexe F), que nous avons testé, jusqu'à présent, uniquement en convection naturelle (Annexe G), pourra aussi être examinée sur des calculs de solidification.

Dans des simulations numériques qui seront bientôt effectuées, les lois de perméabilité et de dispersion massique, obtenues par la résolution des problèmes de fermeture, seront utilisées. Cette exploitation du modèle macroscopique, physiquement plus fine, sera réalisée sur des cas-tests permettant davantage de comparaisons quantitatives (Fellicelli *et al.*, 1993 ; Ahmad *et al.*, 1998).

Chapitre IV

Conclusion

Chapitre IV

Conclusion

Cette thèse est une contribution à la modélisation macroscopique des transferts de quantité de mouvement, de masse et de chaleur, au cours de la solidification des mélanges binaires. L'étude présentée porte sur la croissance des zones solide-liquide constituées de dendrites colonnaires, en présence d'écoulement laminaire de liquide et en l'absence de transport de la phase solide.

D'un point de vue théorique, l'étude a été motivée par le constat du caractère semi-empirique des approches jusqu'ici mises en œuvre, dans l'établissement des modèles macroscopiques de solidification. La thèse fournit, en effet, les éléments d'une discussion approfondie sur l'importance relative des termes issus des méthodes de changement d'échelle, afin de justifier la forme des équations macroscopiques de transport, et d'affiner la définition des propriétés effectives de la zone pâteuse.

Dans ce but, la méthode de prise de moyenne volumique, avec fermeture, nous a semblé particulièrement adaptée à l'introduction des effets de la géométrie locale de la zone pâteuse (tortuosité), et des phénomènes microscopiques (dispersion, échange interfacial), dans le modèle macroscopique. L'établissement de problèmes de fermeture, définissant chacune des propriétés de transport effective, constitue de plus une approche originale, dans la modélisation actuelle de la solidification des mélanges.

Le développement complet de l'établissement du modèle a été présenté dans le Chapitre II du manuscrit. Après une description des hypothèses et des équations de transport couplées, à l'échelle des microstructures cristallines, la méthode de prise de moyenne a été mise en œuvre. Le changement d'échelle a été effectué dans le cadre de contraintes géométriques précises, déjà établies (Benihaddadene, 1997 ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999), caractéristiques de la structure dendritique représentée par un milieu poreux à variations continues de propriétés macroscopiques (*hétérogénéité évolutive*). Les équations de quantité de mouvement, d'espèce et d'énergie ont été moyennées de manière séquentielle, grâce à un découplage des différents problèmes de fermeture. Ce découplage s'appuie en partie sur l'hypothèse négligeant les effets de la vitesse d'interface dans les problèmes de fermeture, mais aussi sur certaines approximations, clairement identifiées dans le développement théorique du modèle. Les différents termes, apparaissant dans les équations moyennées et dans les problèmes de fermeture, ont été évalués à l'aide d'analyses d'ordre de grandeurs, fondées principalement sur les contraintes d'échelles de longueur associées à la géométrie dendritique à hétérogénéité évolutive.

Un modèle macroscopique complet a été ainsi établi, décrivant les transferts de quantité de mouvement, de masse et d'énergie dans un mélange binaire en cours de solidification. Si ce modèle est fondé sur l'hypothèse classique d'*équilibre thermique local*, en revanche, la description des échanges macroscopiques de masse est *diphase*. Autrement dit, la modélisation décrit les effets de diffusion microscopique d'espèce, à l'aide de *coefficients d'échange massique*, dans les deux phases du mélange en cours de solidification. De ce point de vue, le modèle étend les deux descriptions classiques de la règle du levier et du modèle de Scheil, habituellement utilisées dans la littérature. Cette approche permet alors de prendre en compte les effets, parfois non négligeables, de diffusion microscopique d'espèce dans le solide, et de surfusion solutale. Si cette extension n'est pas nouvelle en elle-même, car récemment introduite (Beckermann & Wang, 1995), la forme des termes d'échange trouve dans la thèse une justification théorique, alors qu'elle avait été établie précédemment d'une manière plus heuristique. En outre, les coefficients d'échange massique sont ici définis par des problèmes de fermeture. Etant donné la capacité de la méthode à prendre en compte la tortuosité des dendrites, ainsi que l'intensité de l'écoulement du liquide au sein de la zone pâteuse, cette approche est à même d'améliorer la définition, habituellement analytique ou semi-empirique, des coefficients d'échange massique des modèles de solidification des mélanges. De même, la *dispersion* massique et thermique est introduite dans la définition de la diffusivité massique et de la conductivité thermique effectives. La tortuosité est également introduite dans cette dernière. Jusqu'à présent, ces phénomènes microscopiques n'avaient pas été pris en compte dans les modèles de solidification, bien que la nécessité de définir des tenseurs effectifs de diffusivité ait été parfois soulignée (Beckermann & Wang, 1995 ; Prescott & Incropera, 1996).

Une méthode numérique de volumes finis, bidimensionnelle, a été élaborée et mise en œuvre, pour la résolution du modèle macroscopique. Conscients de la complexité d'une telle résolution, un choix réfléchi d'inconnues et d'algorithme a été fait, et argumenté d'une manière détaillée dans le Chapitre III du manuscrit. Une attention particulière a été portée sur la discrétisation des équations de masse, qui s'avère délicate dans les modèles décrivant les transferts d'espèce interfaciaux. Cette difficulté est en effet reconnue, et attribuée à la disparité des échelles de temps associées aux échanges de masse microscopiques (interfaciaux) et macroscopiques (advection / diffusion–dispersion) (Wang & Beckermann, 1995 ; Tardy & Quintard, 1999). Un choix particulier d'inconnues (concentrations superficielles) et d'algorithme (calcul simultané de ces inconnues et des fractions volumiques de phase), a permis d'obtenir une résolution stable et conservative des équations de masse. Dès lors, l'algorithme établi se distingue des schémas à deux pas de temps, développés jusqu'à présent pour la résolution des modèles macroscopiques, multiphasiques, de solidification dendritique (Wang, 1994 ; Wang & Beckermann, 1996b).

Cette méthode numérique a été mise en œuvre, pour simuler la solidification non eutectique du mélange binaire NH_4Cl (10%)– H_2O dans une cavité. Pour aborder ce calcul, la méthode de fermeture, développée dans le Chapitre II, a été appliquée pour déterminer les coefficients d'échange massique de la zone pâteuse. La solidification complète du mélange binaire a permis de démontrer la pertinence et la robustesse de l'algorithme établi. Les résultats illustrent le potentiel du modèle physique, et le couplage existant entre les structures d'écoulement et la macroségrégation dans le mélange binaire : les calculs, effectués pour deux valeurs différentes du nombre de Grashof solutal, ont conduit à l'observation de deux structures d'écoulement différentes, associées à deux structures de macroségrégation d'une nature et d'une intensité nettement distinctes. Une étude de sensibilité des solutions à la finesse du maillage, qui a également été abordée, a révélé une certaine influence de la taille des mailles sur les structures d'écoulement observées, ainsi que sur la régularité

de la frontière délimitant la zone pâteuse et la région liquide du mélange. Nous pourrions envisager d'affiner encore davantage les maillages, et ce travail nécessitera une optimisation des performances du code numérique développé, au niveau des temps de calcul.

A partir du travail effectué, on peut envisager plusieurs améliorations et extensions de la modélisation physique et de sa mise œuvre numérique, ainsi que de multiples perspectives nouvelles.

Les tenseurs de perméabilité, ainsi que le tenseur de diffusion–dispersion et le coefficient d'échange massique de la phase liquide, ont déjà été déterminés par la résolution des problèmes de fermeture établis sur une structure dendritique réelle. Ce travail, effectué au laboratoire FAST d'Orsay, pourra se poursuivre, et le tenseur effectif de conductivité thermique pourra être calculé de la même manière. Ainsi, le modèle macroscopique pourra être exploité de manière intensive, sur différents cas–tests permettant des comparaisons quantitatives, et se confrontant aussi à l'expérience (Ahmad *et al.*, 1998). Il sera bien-sûr intéressant de comparer les résultats numériques obtenus en utilisant des valeurs théoriques des propriétés effectives, déterminées par la méthode de fermeture, et des lois physiques plus classiques. En particulier, l'influence des lois de perméabilité, obtenues par les fermetures, pourront être confrontées à celle du modèle classique de Kozeny-Carman. La sensibilité des résultats physiques à la prise en compte ou non de la dispersion pourra aussi être examinée. Par ailleurs, les difficultés associées à la simulation des phénomènes de refusion et de réaction eutectique ont été expliquées dans le Chapitre III de la thèse. Nous avons souligné que notre approche de la refusion semble raisonnable lorsque ce phénomène demeure local dans le temps et dans l'espace. Dans le cas où les refusions s'étendent au contraire sur des distances comparables à la taille macroscopique du système (formation de canaux ségrégués), une réflexion sera nécessaire, et la prise en compte de l'histoire de solidification pourrait s'avérer nécessaire (Felicelli *et al.*, 1991, 1993). La solidification eutectique, quant à elle, ne pose des problèmes que d'un point de vue algorithmique, et il sera bientôt possible de l'intégrer dans la résolution du modèle.

Parmi les extensions envisageables du modèle physique, la prise en compte du transport du solide apparaît très intéressante. Actuellement, la modélisation du transport de cristaux équiaxes est fondée sur un formalisme d'enveloppe de dendrite, séparant les liquides inter- et extradendritiques (Annexe C). Ceci peut notamment se justifier par des observations du phénomène de consolidation de la phase solide, qui se produit pour des valeurs critiques de la fraction de grain (rapport du volume occupé par l'enveloppe sur le volume du V.E.R.), et non pas de la fraction volumique solide (Wang & Beckermann, 1996a). Dès lors, le formalisme d'enveloppe, et la description triphasique des transferts macroscopiques de masse qui en résulte (Annexe C), constituent une approche possible pour la prise en compte du transport du solide. On notera ici que dans le cadre de cette approche, aucun modèle n'a encore couplé les phénomènes de croissance colonnaire et équiaxe en présence d'écoulement du liquide.

Dans le contexte des recherches en sûreté nucléaire, dans lequel la thèse s'inscrit, les expériences RASPLAV, réalisées en Russie par l'institut Kurchatov, étudient la phénoménologie du bain de matériaux fondus (*corium*), que l'on pourrait trouver dans la cuve d'un réacteur nucléaire dans une situation accidentelle (Wright, 1996). Des expériences à petite échelle étudient la solidification d'un sel binaire simulant le corium (Asmolov *et al.*, 1998) dans une cavité, en présence de convection naturelle et d'une génération interne de chaleur. Ce projet fournit une base de données très intéressante, adaptée aux caractéristiques actuelles du modèle macroscopique. L'un des régimes étudiés, en effet, met en jeu la formation d'une zone solide-liquide par une solidification non eutectique du sel. Le modèle est *actuellement*

exploité au LECTA (Cadarache) pour simuler cette expérience, et une extension prochaine de l'algorithme permettra de simuler les régimes qui mettent en jeu des réactions eutectiques.

Dans les applications en matière de sûreté, envisagées à *plus long terme* pour le développement physique du code ICARE–CATHARE (Fichot *et al.*, 2000), il est prévu de calculer les transferts couplés dans le bain de corium de fond de cuve, avec génération interne de chaleur et formation de croûtes solides au voisinage des parois, voire également dans la région située au sommet du bain. Outre la nécessité d'une meilleure connaissance des propriétés physiques des matériaux et des diagrammes de phase, cette application nécessite également une extension du modèle aux mélanges multi-composants. Il est à noter qu'un modèle macroscopique, décrivant la diffusion microscopique de masse dans le solide, n'a été appliqué que très récemment à la solidification d'un alliage (à onze composants) dans un lingot de grande taille (Gu & Beckermann, 1999). Comme le soulignent les auteurs de cette étude, de telles applications peuvent évidemment nécessiter des temps de calcul très importants. De plus, dans ce type de mélange, la forme complexe des relations d'équilibre thermodynamique (température / concentrations) peut favoriser la formation d'une phase solide dispersée (Schneider & Beckermann, 1995a). La modélisation du transport du solide se poserait alors d'une manière accrue. Enfin, l'une des principales difficultés, posées par le problème du bain de corium, réside dans le régime turbulent de l'écoulement de convection naturelle. En effet, malgré quelques études (Prescott & Incropera, 1995 ; Thomas *et al.*, 2000), la turbulence n'a reçu que peu d'attention dans la modélisation actuelle de la solidification des mélanges (Prescott & Incropera, 1996).

Annexes

Annexe A : La méthode de prise de moyenne volumique

Pour établir les équations de conservation macroscopiques décrivant les transferts de masse, de chaleur et de quantité de mouvement, nous utilisons la méthode classique de prise de moyenne volumique (Gray, 1975 ; Carbonell & Whitaker, 1984). Cette annexe propose une description des aspects techniques de cette méthode. Pour l'utilisation des moyennes pondérées et des produits de convolution, on peut se référer à Marle (1982), ainsi qu'à Quintard & Whitaker (1994d,c,b).

Définitions

On considère une grandeur physique ψ supposée continue dans chacune des phases s et ℓ d'un système :

$$\psi = \begin{cases} \psi_\ell & \text{dans la phase } \ell \\ \psi_s & \text{dans la phase } s \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

Dans (A.1), ψ_ℓ et ψ_s sont définis de sorte que :

$$\begin{cases} \psi_\ell = 0 & \text{dans la phase } s \\ \psi_s = 0 & \text{dans la phase } \ell \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

La méthode consiste à moyenner ψ dans un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) du système diphasique considéré :

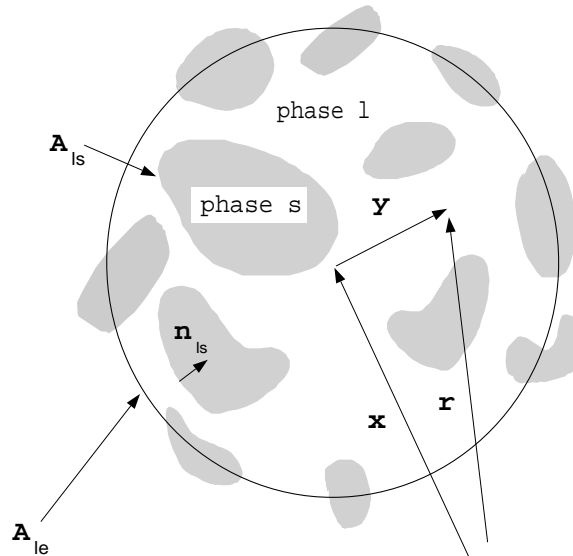


Figure A.1: *Volume Elémentaire Représentatif d'un système diphasique ℓ - s*

On définit alors les volumes suivants :

$$\begin{cases} V & : \text{ volume du V.E.R.} \\ V_\ell & : \text{ volume de la phase } \ell \text{ présente dans le V.E.R.} \\ V_s & : \text{ volume de la phase } s \text{ présente dans le V.E.R.} \end{cases}$$

Les fractions volumiques des phases ℓ et s sont respectivement définies par :

$$\varepsilon_\ell = \frac{V_\ell}{V} \quad , \quad \varepsilon_s = \frac{V_s}{V} \quad (\text{A.3})$$

On définit deux types de moyenne de la quantité ψ_ℓ dans la phase ℓ :

– La moyenne volumique de phase :

$$\langle \psi_\ell \rangle |_{\mathbf{x}} = \frac{1}{V} \int_{V_\ell} \psi_\ell(\mathbf{x} + \mathbf{y}) dV_{\mathbf{y}} \quad (\text{A.4})$$

– La moyenne intrinsèque volumique de phase :

$$\langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} = \frac{1}{V_\ell} \int_{V_\ell} \psi_\ell(\mathbf{x} + \mathbf{y}) dV_{\mathbf{y}} \quad (\text{A.5})$$

La notation $dV_{\mathbf{y}}$ est utilisée pour indiquer que l'intégration se fait par rapport à la variable \mathbf{y} (figure A1.1).

Il est important de noter que ces deux types de moyenne sont calculées au centre \mathbf{x} du V.E.R. Toutefois, pour alléger l'écriture, on utilise les notations simplifiées :

$$\begin{aligned} \langle \psi_\ell \rangle &= \frac{1}{V} \int_{V_\ell} \psi_\ell dV & (a) \\ \langle \psi_\ell \rangle^\ell &= \frac{1}{V_\ell} \int_{V_\ell} \psi_\ell dV & (b) \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

$\langle \psi_\ell \rangle$ et $\langle \psi_\ell \rangle^\ell$ sont par ailleurs reliées par la propriété suivante :

$$\langle \psi_\ell \rangle = \varepsilon_\ell \langle \psi_\ell \rangle^\ell \quad (\text{A.7})$$

Chaque grandeur physique ψ (densité, vitesse, pression, température, concentration, ...) est décomposée selon Gray (1975) en sa partie moyenne $\langle \psi_\ell \rangle^\ell$ et sa partie fluctuante notée $\tilde{\psi}_\ell$:

$$\psi_\ell = \gamma_\ell \langle \psi_\ell \rangle^\ell + \tilde{\psi}_\ell \quad (\text{A.8})$$

où γ_ℓ désigne l'indicateur de la phase ℓ , défini par :

$$\gamma_\ell = \begin{cases} 1 & \text{ dans la phase } \ell \\ 0 & \text{ dans la phase } s \end{cases} \quad (\text{A.9})$$

Théorèmes

Pour la prise de moyenne des équations de conservation, on utilise les deux théorèmes suivants (Gray, 1975) qui relient la moyenne volumique de phase des dérivées partielles spatiale et temporelle aux dérivées partielles de la moyenne volumique de phase. Pour la démonstration de ces théorèmes, on peut se référer à Marle (1967), ainsi qu'à Whitaker (1969).

$$\begin{aligned}
 \left\langle \frac{\partial \psi_\ell}{\partial x_i} \right\rangle &= \frac{\partial \langle \psi_\ell \rangle}{\partial x_i} + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} n_{\ell s i} \psi_\ell dA & (a) \\
 \left\langle \frac{\partial \psi_\ell}{\partial t} \right\rangle &= \frac{\partial \langle \psi_\ell \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \mathbf{n}_{\ell s} \cdot \mathbf{w}_{\ell s} \psi_\ell dA & (b)
 \end{aligned}
 \tag{A.10}$$

où x_i est l'une des trois variables d'espace, $\mathbf{w}_{\ell s}$ est la vitesse d'un point de l'interface, et $\mathbf{n}_{\ell s}$ le vecteur normal à l'interface, de composantes $n_{\ell s i}$, orienté de la phase ℓ vers la phase s .

Propriétés

La prise de moyenne d'une équation de transport conduit également à utiliser les trois propriétés *approchées* suivantes :

- Pour moyenner un terme de transport, on utilise la relation :

$$\langle \psi_\ell |_{\mathbf{r}} \mathbf{v}_\ell |_{\mathbf{r}} \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} = \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \langle \tilde{\psi}_\ell |_{\mathbf{r}} \tilde{\mathbf{v}}_\ell |_{\mathbf{r}} \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} \tag{A.11}$$

où \mathbf{v}_ℓ est la vitesse de la phase ℓ , et $\langle \tilde{\psi}_\ell \tilde{\mathbf{v}}_\ell \rangle^\ell$ représente la dispersion de ψ_ℓ (Bear & Bachmat, 1984), c'est-à-dire le transport des fluctuations de ψ par l'écoulement microscopique dans la phase ℓ .

Cette propriété est généralement admise dans le cadre de la contrainte :

$$\left(\frac{r_0}{L} \right)^2 \ll \frac{\ell_\ell}{L} \tag{A.12}$$

qui est vérifiée dans les milieux poreux homogènes (Carbonell & Whitaker, 1984).

Cependant, Benihaddadene (1997) a étudié des structures dendritiques schématisées, présentant des variations continues de porosité (*hétérogénéité évolutive*). Dans le cas où ces variations sont modérées, il a montré que l'approximation (A.11) reste valable, dans le cadre de la contrainte :

$$\left(\frac{r_0}{L} \right)^2 < \frac{\ell_\ell}{L} \tag{A.13}$$

- La prise de moyenne d'un terme de diffusion conduit à utiliser les deux approximations suivantes :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \cdot \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}} dA = -(\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} \quad (\text{A.14})$$

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}} dA = -(\nabla \varepsilon_\ell) \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} \quad (\text{A.15})$$

Si ces deux propriétés ont été souvent qualifiées de théorèmes (Gray, 1975), ce sont en réalité des approximations, dont la validité dépend de la géométrie du milieu diphasique considéré (Quintard & Whitaker, 1994c, ; Goyeau *et al.*, 1997, 1999).

Voici la démonstration de (A.15), telle qu'on peut la trouver dans les quatre références précédentes, qui traitent de la prise de moyenne des équations de Stokes en milieu poreux.

Dans l'intégrale de surface de (A.15), la quantité $\langle \psi_\ell \rangle^\ell$ est évaluée au point courant \mathbf{r} (figure A.1). Comme on souhaite exprimer toutes les moyennes au centre \mathbf{x} du V.E.R., on développe $\langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}}$ en série de Taylor autour de $\langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}}$:

$$\langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}} = \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \mathbf{y} \cdot \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \frac{1}{2} \mathbf{y} \mathbf{y} : \nabla \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \dots \quad (\text{A.16})$$

où $\mathbf{y} = \mathbf{r} - \mathbf{x}$.

D'où :

$$\begin{aligned} \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{r}} dA &= \left(\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} dA \right) \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \left(\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \mathbf{y} dA \right) \cdot \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} \\ &+ \frac{1}{2} \left(\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \mathbf{y} \mathbf{y} dA \right) : \nabla \nabla \langle \psi_\ell \rangle^\ell |_{\mathbf{x}} + \dots \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Or,

- le terme $\left(\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} dA \right)$ est donné par le théorème (A.10a), appliqué pour $\psi_\ell = \gamma_\ell$:

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} dA = -\nabla \varepsilon_\ell \quad (\text{A.18})$$

- Goyeau *et al.* (1997, 1999) ont montré que les termes :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \mathbf{y} dA, \quad \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_{\ell_s} \mathbf{y} \mathbf{y} dA, \dots \quad (\text{A.19})$$

appelés *moments géométriques*, sont petits devant l'unité dans des structures dendritiques schématisées et réelles, toutes deux caractérisées par la contrainte d'échelles de longueur :

$$\ell_\ell < r_0 < L \quad (\text{A.20})$$

Par conséquent, en négligeant les moments géométriques et en utilisant (A.18) dans (A.17), on obtient la propriété (A.15).

Une démonstration, tout à fait analogue à la précédente, permet d'établir la propriété (A.14).

Annexe B : Modèles de perméabilité des zones dendritiques colonnaires

Cette annexe décrit le modèle de Kozeny–Carman, dans ses variantes isotrope ou anisotrope, qui est largement le plus utilisé pour représenter la perméabilité des zones dendritiques colonnaires.

1. Définition du modèle de Kozeny–Carman

Dans la théorie de Kozeny–Carman, le milieu poreux, homogène et isotrope, est assimilé à un arrangement de tubes capillaires de longueurs égales (Bear, 1972). La perméabilité K s'exprime alors en fonction de la porosité ε_ℓ , selon l'équation de Kozeny–Carman (Bear, 1972) :

$$K = K_0 \frac{\varepsilon_\ell^3}{(1 - \varepsilon_\ell)^2} \quad (\text{B.1})$$

où la constante géométrique K_0 s'exprime en fonction de la surface spécifique par unité de volume du solide M_s :

$$\begin{cases} M_s = \frac{A}{V_s} = \varepsilon_s^{-1} A_v & (a) \\ K_0 = \frac{1}{5M_s^2} & (b) \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

Si l'on définit une taille moyenne de particule $d_m = 6/M_s$, qui représente le diamètre d'une sphère hypothétique de même surface spécifique que le milieu poreux considéré, la constante K_0 s'exprime également sous la forme :

$$K_0 = \frac{d_m^2}{180} \quad (\text{B.3})$$

2. Application aux zones dendritiques colonnaires

2.1 Version isotrope du modèle

L'équation de Kozeny–Carman (B.1) a été très souvent utilisée dans les modèles macroscopiques de solidification dendritique (Beckermann, 1987 ; Bennon & Incropera, 1987a; Ahmad *et al.*, 1998). Pour cela, certains auteurs déterminent la constante K_0 selon (B.3) (Precott & Incropera, 1991 ; Prescott & Incropera, 1994 ; Schneider & Beckermann, 1995b), où d_m est remplacé par des valeurs expérimentales de l'espacement secondaire de dendrite λ_2 (Nasser-Rafi *et al.*, 1985). Pour le mélange binaire Pb–Sn, la valeur caractéristique de K_0 est alors de l'ordre de 10^{-11} m^2 . Parfois, la constante K_0 est plutôt reliée, à partir de déterminations expérimentales ou numériques de perméabilité, à l'espacement primaire de dendrite λ_1 (Schneider *et al.*, 1997 ; Gu & Beckermann, 1999).

2.2 Version anisotrope du modèle

Plusieurs expériences ont nettement montré la nature anisotrope des zones dendritiques colonnaires (Nasser-Rafi *et al.*, 1985 ; Poirier, 1987). C'est pourquoi Poirier (1987) a établi, à partir de mesures expérimentales de perméabilité, dans la zone pâteuse colonnaire d'un mélange Pb–Sn, un modèle anisotrope dérivé du modèle de Kozeny–Carman. L'établissement de ce modèle est ici résumé. Une extension de ce modèle (Schneider & Beckermann, 1995b) est également décrite.

• Modèle de Poirier (1987) :

- **Perméabilité pour l'écoulement parallèle aux axes primaires de dendrites, $K^{//}$:**

La constante de Kozeny K_0 est exprimée sous la forme :

$$K_0 = C_1 D^2 \quad (\text{B.4})$$

où D est une dimension caractéristique de la phase solide, qui est supposée être reliée à ε_ℓ et λ_1 de la sorte :

$$1 - \varepsilon_\ell \sim \left(\frac{D}{\lambda_1} \right)^2 \quad (\text{B.5})$$

et C_1 est déterminée en fonction de ε_ℓ , à partir des mesures expérimentales :

$$C_1 = 4,53 \cdot 10^{-4} + 4,02 \cdot 10^{-6} (\varepsilon_\ell + 0,1)^{-5} \quad (\text{B.6})$$

- **Perméabilité pour l'écoulement normal aux axes primaires de dendrites, K^\perp :**

K_0 s'exprime à nouveau sous la forme :

$$K_0 = C_2 D^2 \quad (\text{B.7})$$

où la dimension caractéristique du solide D est supposée être liée à ε_ℓ , λ_1 et λ_2 par l'expression :

$$1 - \varepsilon_\ell = b \left(\frac{D}{\lambda_1^p \lambda_2^{2-p}} \right)^m \quad (\text{B.8})$$

où b est une constante.

Alors, l'équation de Kozeny–Carman (B.1) donne la corrélation suivante :

$$K^\perp = C_3 \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)^p \lambda_2^2 \frac{\varepsilon_\ell^3}{(1 - \varepsilon_\ell)^n} \quad (\text{B.9})$$

où $n = 2(m - 1)/m$. Une régression multilinéaire, sur les données expérimentales, a permis de déterminer les valeurs $n = 0,749$ et $p = 1,09$.

Finalement, le modèle de Kozeny–Carman anisotrope de Poirier (1987) se résume ainsi :

$$\begin{cases} K^{//} &= \left[4, 53 \cdot 10^{-4} + 4, 02 \cdot 10^{-6} (\varepsilon_\ell + 0.1)^{-5} \right] \lambda_1^2 \frac{\varepsilon_\ell^3}{1 - \varepsilon_\ell} & (a) \\ K^\perp &= 1.73 \cdot 10^{-3} \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)^{1,09} \lambda_2^2 \frac{\varepsilon_\ell^3}{(1 - \varepsilon_\ell)^{0,749}} & (b) \end{cases} \quad (\text{B.10})$$

On peut constater que les écoulements parallèles aux axes primaires de dendrites ne sont pas influencés par la valeur des espacements secondaires (Nasser-Rafi *et al.*, 1985 ; Goyeau *et al.*, 1999). En revanche, les valeurs de λ_1 et de λ_2 ont une influence à peu près équivalente sur les écoulements normaux aux axes primaires de dendrites.

• Modèle de Schneider & Beckermann (1995b) :

L'une des limites du modèle précédent, outre son caractère semi–heuristique, réside dans la gamme restreinte de porosité $[0,19; 0,66]$ à partir de laquelle il a été établi. En effet, la fragilité des cristaux empêche les mesures de perméabilité pour des porosités supérieures. Ceci a motivé le développement de méthodes de calcul numérique de perméabilité (Ganesan *et al.*, 1992 ; Bhat *et al.*, 1995 ; Goyeau *et al.*, 1999). Ces simulations ont d'ailleurs montré que le modèle anisotrope de Poirier (1987) sous–estimait la perméabilité dans les régions de porosité importante.

Par ailleurs, Ganesan *et al.* (1992) ont constaté un excellent accord entre leurs résultats numériques et les corrélations analytiques, pour des écoulements parallèles à des arrangements triangulaires ou carrés de cylindres de révolution (Drummond & Tahir, 1984), pour $\varepsilon_\ell > 0,7$.

C'est pourquoi Schneider & Beckermann (1995b) ont construit un modèle anisotrope, qui combine le modèle de Poirier (1987), pour les porosités inférieures à 0,7, et les corrélations analytiques pour les écoulements parallèles (Drummond & Tahir, 1984) et normaux (Sangani & Acrivos, 1982) à des arrangements de cylindres. Le modèle anisotrope de Schneider & Beckermann (1995b) a pour expression :

$$\begin{cases} K^{//} = \begin{cases} \text{(B.10a)} & , \varepsilon_\ell < 0,7 \\ 0,07425 \lambda_1^2 \left[-\ln(1 - \varepsilon_\ell) - 1,487 + 2(1 - \varepsilon_\ell) - 0,5(1 - \varepsilon_\ell)^2 \right] & , \varepsilon_\ell \geq 0,7 \end{cases} \\ K^\perp = \begin{cases} \text{(B.10b)} & , \varepsilon_\ell < 0,7 \\ 0,03979 \lambda_1^2 \left[-\ln(1 - \varepsilon_\ell) - 1,476 + 2(1 - \varepsilon_\ell) - 1,774(1 - \varepsilon_\ell)^2 + 4,076(1 - \varepsilon_\ell) \right] & , \varepsilon_\ell \geq 0,7 \end{cases} \end{cases} \quad (\text{B.11})$$

Dans ce modèle, un saut de perméabilité, environ d'un facteur 100, se produit à $\varepsilon_\ell = 0,7$. Les calculs de Ganesan *et al.* (1992) ont mis en évidence une transition dans l'évolution spatiale de la perméabilité, dans la direction parallèle aux axes primaires de dendrites, pour $\varepsilon_\ell = 0,65$. Cependant, cette transition ne peut être que continue, et Schneider & Beckermann (1995b) reconnaissent eux–mêmes que l'utilisation d'un saut, dans la loi de perméabilité, n'est pas physiquement réaliste.

De plus, il est notable que $K'' > K^\perp$, et $0,5 < K^\perp/K'' < 0,6$ lorsque $\varepsilon_\ell \geq 0,7$. Bien que ce rapport soit modéré, Yoo & Viskanta (1992) ont toutefois montré qu'une faible valeur de ce dernier pouvait avoir un effet important, sur les structures d'écoulement, ainsi que sur la nature et l'importance de la macroségrégation.

D'autres modèles semi-empiriques, mais plus anciens, sont également décrits par Prescott & Incropera (1996). Parmi les modèles les plus élaborés, on peut également mentionner celui de Felicelli *et al.* (1991), qui combine les régressions multilinéaires et le modèle d'Hagen-Poiseuille de Poirier (1987), aux corrélations analytiques relatives aux cylindres (Sangani & Acrivos, 1982 ; Drummond & Tahir, 1984), suivant les valeurs de la porosité.

Annexe C :

Coefficients d'échange massique des modèles de solidification dendritique

Les termes représentant l'échange de masse dans la phase k ($= \ell, s$), dû à la diffusion et à la convection, à travers l'interface solide–liquide, sont exprimés à l'aide d'une loi constitutive (Ni & Beckermann, 1991) :

$$\frac{1}{V} \int_{A_{\ell s}} \rho_k D_k \mathbf{n}_k \cdot \nabla C_k dA = \rho_k h_{m_k} (C_k^* - \langle C_k \rangle^k) \quad (\text{C.1})$$

où h_{m_k} est un coefficient d'échange massique, exprimé en fonction de la surface spécifique A_v (aire de l'interface par unité de volume) et d'une longueur microscopique de diffusion solutale, ℓ_k :

$$h_{m_k} = A_v \frac{D_k}{\ell_k} \quad (\text{C.2})$$

Dans les différents modèles macroscopiques, décrivant le non–équilibre massique (Beckermann & Wang, 1995), h_{m_k} est alors obtenu par les déterminations analytiques de A_v et de ℓ_k .

1 Modèles diphasiques

Dans les modèles diphasiques, qui s'appliquent à la solidification dendritique colonnaire (Schneider & Beckermann, 1995a; Schneider *et al.*, 1997 ; Gu & Beckermann, 1999), les liquides inter– et extradendritiques constituent une phase unique, complétée par la phase solide dans chaque volume de contrôle.

Schneider & Beckermann (1995a) adoptent la démarche d'Ohnaka (1986) : ils considèrent une représentation plane monodimensionnelle des branches secondaires de dendrites. En supposant, de plus, que les profils microscopiques de concentration sont paraboliques, la détermination de ℓ_k et de A_v fournissent une expression analytique du coefficient d'échange massique de la phase solide :

$$h_{m_s} = \frac{D_s}{\lambda_2^2} \frac{12}{\varepsilon_s} \quad (\text{C.3})$$

Dans ces modèles diphasiques, compte tenu de l'importance du rapport de la diffusivité du liquide sur celle du solide (typiquement de l'ordre de 10^4 dans les alliages métalliques), le liquide est supposé parfaitement mélangé dans le volume de contrôle. Ceci signifiant que le coefficient d'échange de la phase liquide est infini, il n'est donc pas défini.

L'approche diphasique a également été utilisée pour la solidification globulaire (cristaux sphériques, non dendritiques), en régime de diffusion pure (Feller & Beckermann, 1993), ainsi qu'en présence de convection (Ni & Beckermann, 1993).

Dans cette dernière référence, des coefficients d'échange massique et thermique sont définis dans les deux phases du mélange binaire considéré. Pour le solide, l'hypothèse de profils

paraboliques de température et de concentration, à l'échelle des grains, est également adoptée, et permet de déterminer les coefficients d'échange. Dans la phase liquide, ces derniers proviennent des corrélations expérimentales de Rowe & Claxton (1965), qui correspondent à des arrangements de sphères.

2 Modèles triphasiques

L'approche triphasique a été initialement introduite par Rappaz & Thévoz (1987a,b), dans un modèle microscopique décrivant la nucléation équiaxe en régime de diffusion. Le mélange binaire est constitué de la phase solide (s) et des liquides interdendritiques (d) et extradendritiques (ℓ). Ces derniers définissent deux phases distinctes, séparées par l'enveloppe de dendrite (surface tangente aux sommets de dendrites, figure C.1).

Par la suite, cette approche a été étendue aux modes mixtes de solidification (colonnaire et équiaxe), en régime de diffusion pure (Wang & Beckermann, 1992, 1993, 1994), puis à la nucléation équiaxe en présence de convection (Wang, 1994 ; Beckermann & Wang, 1995 ; Wang & Beckermann, 1996a,b), dans des modèles macroscopiques.

Les expressions analytiques des coefficients d'échange massique, utilisés dans ces modèles, ont été établies par Wang (1994). Elles sont ici résumées, pour les régimes de solidification diffusifs et convectifs.

2.1 Solidification en régime de diffusion

Le coefficient d'échange massique de la phase solide, h_{m_s} , est déterminé selon la même procédure que celle décrite pour les modèles diphasiques (représentation plane monodimensionnelle des branches secondaires de dendrite, profils de concentration paraboliques à l'échelle microscopique).

Le liquide interdendritique (d) est supposé parfaitement mélangé, et le coefficient n'est donc pas défini pour cette phase.

En revanche, le non-équilibre massique est décrit dans le liquide extradendritique (ℓ), par le coefficient h_{m_ℓ} , défini selon (C.2). Ce coefficient est déterminé analytiquement par la méthode suivante :

- La surface spécifique de l'enveloppe est calculée en considérant un cylindre équivalent, ou une sphère équivalente, associé à une dendrite colonnaire ou équiaxe, respectivement, occupant le même volume que la dendrite.
- La longueur microscopique, associée à la diffusion solutale dans le liquide extradendritique, est calculée par une résolution analytique de l'équation de la diffusion, supposée stationnaire dans un repère lié à l'enveloppe.

Les coefficients d'échange massique de Wang (1994), ainsi obtenus pour les régimes diffusifs, sont résumés dans la Table C.1.

Dans celle-ci, Pe désigne le nombre de Péclet solutal, associé à la croissance de l'enveloppe :

$$Pe = \frac{W_{ne} R_f}{D_\ell} \quad (C.4)$$

	h_{m_s}	h_{m_ℓ} (extra-dendritique)
Dendrites colonnaires	$\frac{D_s}{\lambda_2^2} \frac{12(1-\varepsilon_\ell)}{\varepsilon_s}$	$\frac{D_\ell}{\lambda_1^2} \frac{2\pi^4(1-\varepsilon_\ell)^{1/2}}{\Phi_e} \frac{\text{Pe}}{F_1(\varepsilon_\ell, \text{Pe})}$
Dendrites équiaxes	$\frac{D_s}{\lambda_2^2} \frac{12(1-\varepsilon_\ell)}{\varepsilon_s}$	$\frac{D_\ell}{n^{-2/3}} \frac{3\left(\frac{4}{3}\pi\right)^{2/3}}{\Phi_e} (1-\varepsilon_\ell)^{2/3} \frac{\text{Pe}}{F_2(\varepsilon_\ell, \text{Pe})}$

Table C.1: *Coefficients d'échange massique en régime de diffusion : modèle de Wang (1994)*

où W_{ne} est la vitesse de croissance moyenne de l'enveloppe, alors que R_f désigne le rayon final du cristal (Rappaz & Thévoz, 1987a), relié à λ_1 , pour les cristaux colonnaires, ou au nombre de grains par unité de volume n , pour les cristaux équiaxes. Wang (1994) utilise le modèle de nucléation instantané de Stefanescu *et al.* (1990) pour déterminer n .

Φ_e est un rapport de forme (aire du cylindre ou de la sphère équivalente sur l'aire de l'enveloppe réelle du cristal, quantité toujours comprise entre zero et l'unité), qui toutefois est souvent proche de l'unité (Wang, 1994).

Les fonctions F_1 et F_2 proviennent de l'expression des longueurs microscopiques de diffusion, et s'expriment en fonction de Pe et de ε_ℓ :

$$F_1(\varepsilon_\ell, \text{Pe}) = 1 - \frac{2}{\varepsilon_\ell} \exp\left[\frac{\text{Pe}}{2}(1-\varepsilon_\ell)^{1/2} \ln(1-\varepsilon_\ell)\right] \int_{(1-\varepsilon_\ell)^{1/2}}^{1/2} x \exp\left[-\text{Pe}(1-\varepsilon_\ell)^{0.5} \ln x\right] dx$$

$$F_2(\varepsilon_\ell, \text{Pe}) = 1 - \frac{3}{\varepsilon_\ell} \exp\left[-\text{Pe}(1-\varepsilon_\ell)^{1/3}\right] \int_{(1-\varepsilon_\ell)^{1/3}}^1 x^2 \exp\left[\frac{\text{Pe}(1-\varepsilon_\ell)^{2/3}}{x}\right] dx$$

Il est important de noter que les corrélations analytiques de la Table C.1 ont été établies dans le cas où W_{ne} est petite devant la vitesse de diffusion solutale à l'échelle microscopique (Wang, 1994).

Afin de fermer l'expression de ces coefficients d'échange, la vitesse de croissance moyenne de l'enveloppe W_{ne} est reliée au champ de concentration macroscopique. Pour cela, la croissance de l'enveloppe est supposée être gouvernée par celle du sommet de dendrite. W_{ne} est donc reliée au nombre de Péclet de sommet de dendrite, $\text{Pe}_t = V_t R_f / 2D_\ell$, V_t désignant la vitesse du sommet. Si l'on suppose que ce dernier croît dans des conditions de stabilité marginale, on peut établir la loi cinétique suivante (Wang & Beckermann, 1992) :

$$W_{ne} = \frac{D_\ell m (k-1) C_e^*}{\pi\Gamma} \text{Pe}_t^2 \quad (\text{C.7})$$

où $m = 1/M_\ell$ et $k = M_\ell/M_s$ est le coefficient de ségrégation, défini pour les diagrammes de phase linéarisés. C_e^* est la concentration de l'enveloppe (supposée uniforme), Γ le coefficient de Gibbs-Thomson (Kurz & Fisher, 1989).

Enfin, pour les régimes de diffusion, Pe_t peut être relié à la supersaturation solutale Ω (non-équilibre massique adimensionné, force motrice de la croissance) :

$$\Omega = \frac{C_e^* - \langle C_\ell \rangle^\ell}{C_e^* (1 - k)} \quad (\text{C.8})$$

par la fonction d'Ivantsov Iv ($Pe_t = Iv^{-1}(\Omega)$, Kurz & Fisher, 1989). Cette fonction représente, en effet, la solution exacte du problème de la diffusion dans ℓ , autour d'une dendrite d'enveloppe parabolique, en l'absence de diffusion dans le solide.

2.2 Solidification en régime de convection dominante

Pour ce régime, des coefficients d'échange massique ont été définis par Wang (1994), uniquement dans le cas de la nucléation équiaxe.

Pour la phase solide, la définition de h_{m_s} , donnée dans la Table (C.1), reste bien-sûr utilisable.

Le liquide interdendritique est toujours supposé parfaitement mélangé. En revanche, le coefficient d'échange massique, associé au liquide extradendritique, est défini selon (C.2). La longueur de diffusion microscopique dans cette phase, $\ell_{\ell d}$, est liée au nombre de Sherwood local :

$$\text{Sh} = \frac{d_e}{\ell_{\ell d}} \quad (\text{C.9})$$

où d_e est le diamètre de la sphère équivalente associée au grain équiaxe.

Par ailleurs, Agarwal (1988) a établi la corrélation suivante, pour les échanges de masse fluide / particule, fondée sur une analogie entre les transferts de masse et de quantité de mouvement (analogie coefficients d'échange / coefficients de frottement) :

$$\text{Sh} = 2 + 0,6 \left(\frac{C_{D\varepsilon}}{8\varepsilon_\ell^2} \right)^{1/3} Pe_\varepsilon^{2/3} \quad (\text{C.10})$$

où Pe_ε est le nombre de Péclet multiphase :

$$Pe_\varepsilon = \frac{\varepsilon_\ell \|\mathbf{v}_\ell - \mathbf{v}_s\| d_e}{D_\ell} \quad (\text{C.11})$$

et $C_{D\varepsilon}$ est un coefficient de frottement, qui peut être relié à ε_ℓ et à Pe_ε par des lois empiriques (Wang, 1994).

Finalement, pour obtenir l'expression du coefficient d'échange massique, associé au liquide extradendritique :

$$h_{m_\ell} = \frac{D_\ell A_{ve}}{\ell_{\ell d}} \quad (\text{C.12})$$

il suffit de combiner (C.9)–(C.11) aux expressions de la surface spécifique de l'enveloppe, A_{ve} , et du diamètre d_e de la sphère équivalente, en fonction de la fraction volumique du liquide extradendritique, ε_ℓ , et du nombre de grains par unité de volume, n (Wang, 1994) :

$$A_{ve} = 3(1 - \varepsilon_\ell)^{2/3} \left(\frac{4}{3}\pi n \right)^{1/3} \quad (\text{C.13})$$

$$d_e = \left[\frac{6(1 - \varepsilon_\ell)}{n\pi} \right]^{1/3} \quad (\text{C.14})$$

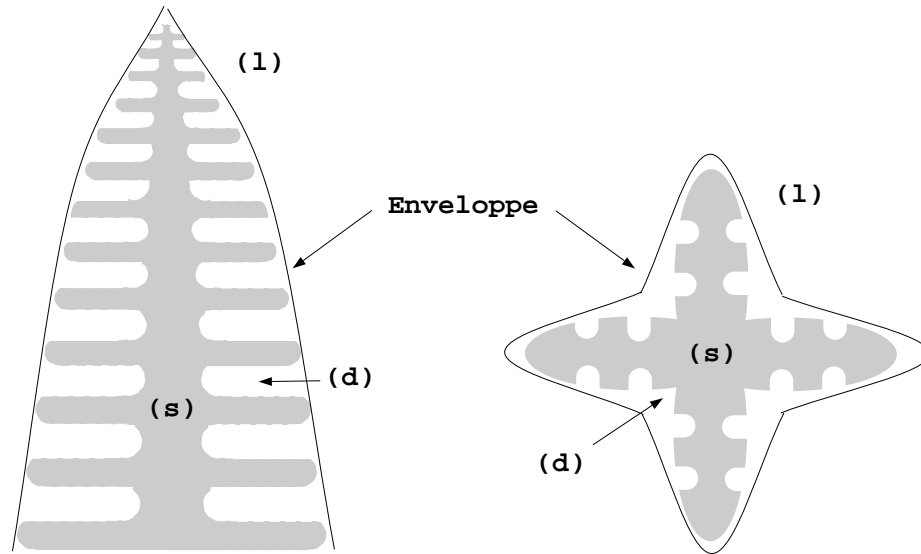


Figure C.1: *Modélisation triphasique des zones dendritiques colonnaires ou équiaxes*

Annexe D :

Prise de moyenne du flux d'enthalpie associé à la diffusion de masse

Il s'agit de moyenniser la quantité $\langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle$ afin de démontrer l'expression (II.4.11).

Pour cela, on considère la propriété (A.11), valable dans le cadre des contraintes (A.12) ou (A.13), et appliquée à une quantité ψ_k , transportée par la vitesse \mathbf{v}_k de la phase k :

$$\langle \psi_k \mathbf{v}_k \rangle = \varepsilon_k \langle \psi_k \rangle^k \langle \mathbf{v}_k \rangle^k + \varepsilon_k \langle \tilde{\psi}_k \tilde{\mathbf{v}}_k \rangle^k \quad (\text{D.1})$$

Le flux de diffusion massique \mathbf{J}_k^i s'exprime en fonction de la vitesse barycentrique \mathbf{v}_k , de la vitesse absolue \mathbf{v}_k^i et de la densité partielle $\bar{\rho}_k^i$ de l'espèce i dans la phase k :

$$\mathbf{J}_k^i = \bar{\rho}_k^i (\mathbf{v}_k^i - \mathbf{v}_k) \quad (\text{D.2})$$

Dès lors, les fluctuations de vitesses vérifiant l'estimateur classique :

$$\tilde{\mathbf{v}}_k = O(\langle \mathbf{v}_k \rangle^k) \quad , \quad \tilde{\mathbf{v}}_k^i = O(\langle \mathbf{v}_k^i \rangle^k) \quad (\text{D.3})$$

on a aussi :

$$\tilde{\mathbf{J}}_k^i = O(\langle \mathbf{J}_k^i \rangle^k) \quad (\text{D.4})$$

Ainsi, \mathbf{J}_k^i dans $\langle H_k \mathbf{J}_k^i \rangle$ jouera le rôle de \mathbf{v}_k dans l'équation (D.1).

De plus, on a établi l'estimateur de \tilde{H}^i (II.4.33) :

$$\tilde{H}^i = O\left(\frac{\ell_k}{L} \langle H^i \rangle^k\right) \quad (\text{D.5})$$

et H^i peut donc jouer le rôle de la quantité ψ_k dans (D.1) (ψ_k vérifie un estimateur analogue à D.5).

On a donc :

$$\langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle = \varepsilon_k \langle H^i \rangle^k \langle \mathbf{J}_k^i \rangle^k + \varepsilon_k \langle \tilde{H}^i \tilde{\mathbf{J}}_k^i \rangle^k \quad (\text{D.6})$$

Il s'agit à présent de trouver les expressions $\langle \mathbf{J}_k^i \rangle^k$ et $\tilde{\mathbf{J}}_k^i$. On introduit d'abord la loi de Fick :

$$\mathbf{J}_k^i = -\rho_k D_k \nabla C_k^i \quad (\text{D.7})$$

Alors, en négligeant les variations de ρ_k et D_k dans le V.E.R., ainsi que les moments géométriques, la prise de moyenne de \mathbf{J}_k^i est classique :

$$\langle \mathbf{J}_k^i \rangle = -\rho_k D_k \left(\varepsilon_k \nabla \langle C_k^i \rangle^k + \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right) \quad (\text{D.8})$$

Pour calculer $\tilde{\mathbf{J}}_k^i$, il suffit de considérer la décomposition de Gray de \mathbf{J}_k^i :

$$\tilde{\mathbf{J}}_k^i = \mathbf{J}_k^i - \gamma_k \langle \mathbf{J}_k^i \rangle^k \quad (\text{D.9})$$

ainsi que celle de C_k^i dans (D.7), et (D.8) pour obtenir :

$$\tilde{\mathbf{J}}_k^i = -\rho_k D_k \nabla \tilde{C}_k^i + \frac{1}{V_k} \int_{A_{\ell_s}} \rho_k D_k \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \quad (\text{D.10})$$

Finalement, l'utilisation de (D.8) et (D.10) dans (D.6) permet de conclure :

$$\begin{aligned} \langle H^i \mathbf{J}_k^i \rangle &= -\varepsilon_k \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \nabla \langle C_k^i \rangle^k \\ &\quad - \rho_k D_k \langle H^i \rangle^k \frac{1}{V} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \\ &\quad - \varepsilon_k \rho_k D_k \langle \tilde{H}^i \nabla \tilde{C}_k^i \rangle^k \\ &\quad + \varepsilon_k \rho_k D_k \left\langle \tilde{H}^i \frac{1}{V_k} \int_{A_{\ell_s}} \mathbf{n}_k \tilde{C}_k^i dA \right\rangle^k \end{aligned} \quad (\text{D.11})$$

Annexe E :
Propriétés des mélanges binaires usuels et d'UO₂

	ΔH_f (kJ/kg)	C_{ps} (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	C_{pe} (J.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	λ_s (W.K ⁻¹ .m ⁻¹)	λ_ℓ (W.K ⁻¹ .m ⁻¹)	D_s (m ² .s ⁻¹)	D_ℓ (m ² .s ⁻¹)
SCN – 1% ACE [1]	4,66	1900	2020	0.225	0.223	–	1,3.10 ⁻⁹
NH ₄ Cl – 70% H ₂ O [2]	31,4	1870	3250	0.393	0.468	–	4,8.10 ⁻⁹
Pb – 19% Sn [3]	23,0	132	159	34	16	–	1,5.10 ⁻⁹
Al – 2% Cu [4]	39,7	1180	1080	210	95	3,0.10 ⁻¹³	3,0.10 ⁻⁹
Fe – 1% C [5]	27,2	753	753	60	30	4,8.10 ⁻¹²	1,0.10 ⁻⁹
UO ₂ [6]	30,0	625	500	5	10		

- [1] : Kurz & Fisher (1989) [4] : Kurz & Fisher (1989)
 [2] : Bennon & Incropera (1987b) [5] : Singh & Basu (1995)
 [3] : Prescott & Incropera (1994) [6] : Gonzalez *et al.* (1997)

Table E.1: Propriétés des mélanges binaires usuels et d'UO₂

Annexe F : Schémas utilisés dans la méthode numérique

Si l'on suppose que chaque inconnue principale Φ est uniforme par volume de contrôle (figure F.1) dans l'expression des termes d'accumulation et des termes sources (Patankar, 1980), l'intégration d'une équation du modèle macroscopique (Table 6) sur un volume de contrôle \mathcal{V} s'écrit sous la forme générale (en notant $\mathbf{V} = \langle \mathbf{v}_\ell \rangle^\ell$) :

$$\partial_t (r_t \Phi) + \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial \mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (r_c \Phi \mathbf{V}) dS = \frac{1}{\mathcal{V}} \oint_{\partial \mathcal{V}} \mathbf{n} \cdot (\Gamma \nabla \Phi) dS + S \quad (\text{F.1})$$

La discrétisation spatiale et temporelle de (F.1) est décrite dans cette annexe.

- **Les termes d'accumulation** d'une inconnue principale Φ sont discrétisés par le **schéma d'Euler implicite**, qui possède une *précision du premier ordre*. La dérivée temporelle de Φ à l'instant t^{n+1} est approchée par l'expression :

$$\{\partial_t (r_t \Phi)\}^{n+1} \simeq \frac{(r_t \Phi)^{n+1} - (r_t \Phi)^n}{\Delta t} \quad (\text{F.2})$$

où $\Delta t = t^{n+1} - t^n$.

- **Les flux de diffusion** à travers une face donnée sont obtenus par une interpolation linéaire des grandeurs de Φ aux nœuds voisins de cette face (Patankar, 1980). L'expression qui résulte de cette hypothèse est le **schéma aux différences centré** :

$$\int_{S_e} \mathbf{n} \cdot (\Gamma \nabla \Phi) dS \simeq \Gamma_e \frac{\Phi_E - \Phi}{(\delta x)_e} S_e \quad (\text{F.3})$$

La valeur du coefficient de diffusion Γ_e sur la face e est évaluée par la moyenne harmonique de Γ aux nœuds voisins de cette face.

Dans le cas particulier des grilles uniformes, ce schéma possède une précision du deuxième ordre. Pour les maillages non uniformes et lorsque les nœuds se situent au centre des volumes de contrôle (nous utilisons cette convention pour les nœuds scalaires), ce schéma est *formellement du premier ordre*. Toutefois, sa précision devient proche de celle d'une approximation du deuxième ordre lorsque le maillage non uniforme est suffisamment raffiné (Ferziger & Perić, 1999).

- **Les flux convectifs** à travers une face e :

$$F_e = \int_{S_e} \mathbf{n} \cdot (r_c \Phi \mathbf{V}) dS \quad (\text{F.4})$$

sont approchés par l'expression :

$$F_e \simeq (r_c)_e (V_x)_e \Phi_e S_e \quad (\text{F.5})$$

où le coefficient $(r_c)_e$ est évalué sur la face e par la moyenne harmonique de ses valeurs aux nœuds voisins de cette face.

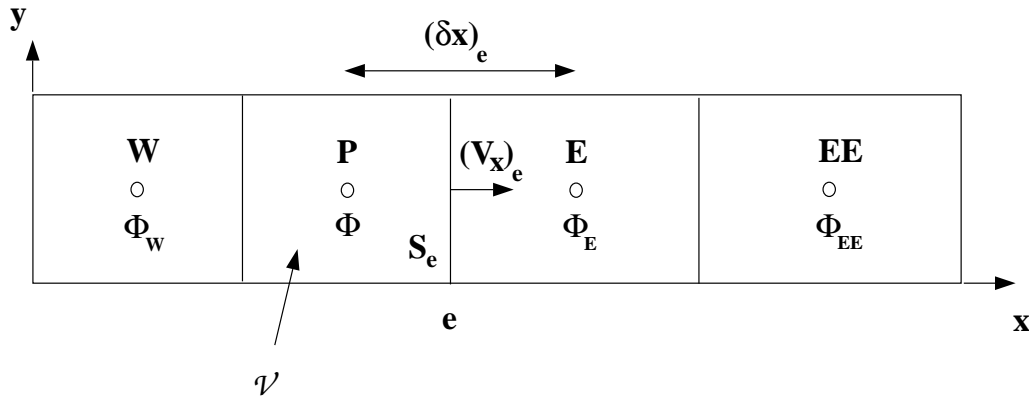


Figure F.1: Volumes de contrôles (\mathcal{V}) et nœuds scalaires (P) dans la direction x

Φ_e est évaluée par l'un ou l'autre des deux schémas suivants :

- **Dans l'équation de quantité de mouvement**, Φ_e s'obtient par le **schéma amont du premier ordre** (e désignant alors une face d'un volume de contrôle « décalé » et P, E les nœuds vectoriels voisins de cette face, Patankar, 1980):

$$\Phi_e = \begin{cases} \Phi & \text{si } (V_x)_e \geq 0 \\ \Phi_E & \text{si } (V_x)_e < 0 \end{cases} \quad (\text{F.6})$$

- **Pour les équations de transport d'espèce dans le liquide, et d'énergie**, le choix est laissé à l'utilisateur du code entre le schéma amont du premier ordre précédent, et la méthode suivante du deuxième ordre (Leonard & Drummond, 1995) :

$$F_e = F_e^{(1)} + [F_e^{(2)} - F_e^{(1)}]^p \quad (\text{F.7})$$

où les exposants (1) et (2) représentent une approximation amont du premier ordre, et une expression obtenue par un schéma du deuxième ordre, respectivement. L'exposant p désigne une quantité évaluée à l'itération précédente de la boucle (p) dans la méthode itérative permettant de calculer les différentes inconnues à un instant donné (Table 7).

Cette méthode permet de *conserver la stabilité du schéma amont du premier ordre*, les matrices possédant une structure de diagonale dominante.

A la convergence, la contribution du schéma amont du premier ordre disparaît, et la solution est identique à celle obtenue par le schéma du deuxième ordre. De plus, le terme source (entre crochets) étant petit par rapport au terme implicite, il n'affecte pas la convergence de manière significative (Ferziger & Perić, 1999).

De même qu'Hayase *et al.* (1992), nous avons choisi de calculer l'expression du deuxième ordre $F_e^{(2)}$ à l'aide du **schéma QUICK** (*Quadratic Upwind Interpolation for Convective Kinematics*) : la quantité Φ_e de (F.5) a pour expression (Ferziger & Perić, 1999) :

$$\Phi_e = \begin{cases} \Phi + g_1 (\Phi_{EE} - \Phi) + g_2 (\Phi - \Phi_W) & \text{si } (V_x)_e \geq 0 \\ \Phi_E + g_3 (\Phi - \Phi_E) + g_4 (\Phi_E - \Phi_{EE}) & \text{si } (V_x)_e < 0 \end{cases} \quad (\text{F.8})$$

où

$$\begin{aligned}
 g_1 &= \frac{(x_e - x_P)(x_e - x_W)}{(x_E - x_P)(x_E - x_W)} \quad , \quad g_2 = \frac{(x_e - x_P)(x_E - x_e)}{(x_P - x_W)(x_E - x_W)} \\
 g_3 &= \frac{(x_e - x_E)(x_e - x_{EE})}{(x_P - x_E)(x_P - x_{EE})} \quad , \quad g_4 = \frac{(x_e - x_E)(x_P - x_e)}{(x_E - x_{EE})(x_P - x_{EE})}
 \end{aligned}
 \tag{F.9}$$

Ce schéma amont du deuxième ordre s'obtient en approchant le profil de Φ par un arc de parabole passant par les points P, E et W (respectivement EE) lorsque $(V_x)_e \geq 0$ (respectivement $(V_x)_e < 0$).

L'erreur de troncature associée à ce schéma est du troisième ordre. Cependant, lorsque l'intégrale de surface F_e est évaluée par le produit de l'intégrande au centre de la face e et de l'aire de la face S_e (F.5), l'approximation (F.8) produit des solutions dont la précision est *globalement du deuxième ordre* (Ferziger & Perić, 1999).

Enfin, l'approximation (F.8) de Φ_e est utilisée dans l'expression explicite du flux convectif $F_e^{(2)}$ de (F.7).

Pour un traitement efficace des conditions aux limites, associé à ce schéma, nous avons utilisé les expressions décrites par Hayase *et al.* (1992) qui possèdent une précision du troisième ordre.

Comme la plupart des schémas amont d'ordre élevé, QUICK peut produire des solutions spatialement oscillantes au voisinage des fronts (Hirsch, 1998). Lorsque ce schéma est utilisé de manière explicite selon (F.7), Leonard & Drummond (1995) proposent l'utilisation d'une technique de *limiteur de flux*, facile à mettre en œuvre : si la valeur de $F_e^{(2)}$ sur une face donnée, initialement calculée au moyen du schéma QUICK, produit une solution localement oscillante, cette valeur est remplacée par une approximation du premier ordre qui supprime les oscillations. Cette stratégie est d'ailleurs voisine de celle utilisée dans la famille des schémas TVD (*Total Variation Diminishing*) (Hirsch, 1998).

Ce limiteur de flux a été introduit dans le code de calcul. Toutefois, pour les applications abordées, sa mise en œuvre n'a pas été nécessaire, les champs de température et de concentration obtenus étant non oscillants.

Annexe G : Validation de la méthode numérique en convection naturelle

1 Convection naturelle de l'air en cavité carrée

1.1 Description du problème

Ce cas-test de référence est décrit par de Vahl Davis (1983). Il s'agit du problème de l'écoulement laminaire, visqueux, bidimensionnel et stationnaire de l'air dans une cavité carrée. Les parois verticales sont maintenues chacune à une température donnée, tandis que les parois horizontales sont adiabatiques (Figure G.1). L'approximation de Boussinesq est adoptée, et les propriétés physiques de l'air sont supposées constantes.

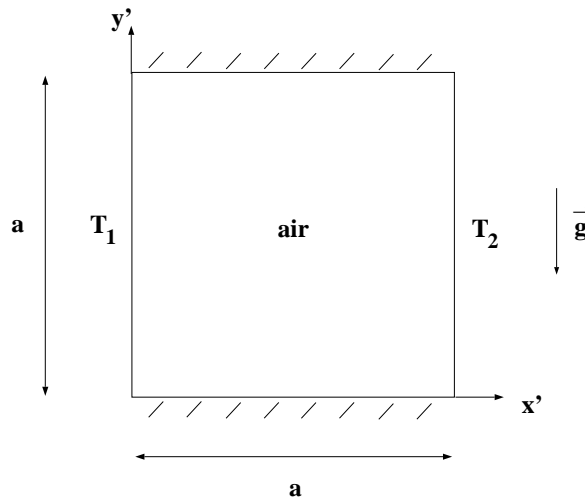


Figure G.1: Description du cas-test de de Vahl Davis (1983)

Adimensionnement :

Les variables adimensionnelles du problème sont les suivantes, les différentes notations étant définies dans la nomenclature de cette annexe :

$$x = x' / a, y = y' / a \quad (\text{G.1})$$

$$\mathbf{V} = \mathbf{V}' / V_0 \quad (\text{G.2})$$

$$P = (P' + \rho_0 g y') / (\rho_0 V_0^2) \quad (\text{G.3})$$

$$T = (T' - T_2) / (T_1 - T_2) \quad (\text{G.4})$$

$$t = t' \kappa_0 / a^2 \quad (\text{G.5})$$

Equations de bilan :

Les équations physiques sont ici considérées sous leur forme instationnaire, contrairement à l'approche de de Vahl Davis (1983). Leur expression adimensionnelle est la suivante :

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (\text{G.6})$$

$$\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}\mathbf{V}) = -\nabla P + \text{Pr} \nabla^2 \mathbf{V} + \text{Ra}_T \cdot \text{Pr} \cdot T \mathbf{e}_y \quad (\text{G.7})$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (T\mathbf{V}) = \nabla^2 T \quad (\text{G.8})$$

Conditions aux limites :

$$\mathbf{V} = 0 \quad \text{en} \quad x = 0, x = 1, y = 0, y = 1 \quad (\text{G.9})$$

$$T = 1 \quad \text{en} \quad x = 0 \quad (\text{G.10})$$

$$T = 0 \quad \text{en} \quad x = 1 \quad (\text{G.11})$$

$$\frac{\partial T}{\partial y} = 0 \quad \text{en} \quad y = 0, y = 1 \quad (\text{G.12})$$

Conditions initiales :

$$\mathbf{V} = 0, P = 1, T = \frac{1}{2} \quad \text{à} \quad t = 0 \quad (\text{G.13})$$

Pour résoudre le problème (G.6)–(G.13) à l'aide du code de calcul, une comparaison formelle est faite entre ce problème et la formulation du modèle de solidification en variables physiques (Table 6), résolu par l'algorithme de la Table 7 :

ε_ℓ	ε_s	ρ_0	μ_ℓ	$\beta_T g$	β_S	$(\rho C_p)_m$	$C_{p\ell}$	λ_m	\mathbf{K}	D_s	D_ℓ	\bar{h}_{m_s}	\bar{h}_{m_ℓ}
1	0	1	Pr	$\text{Ra}_T \cdot \text{Pr}$	0	1	1	1	$10^{30} \mathbf{I}$	0	0	0	0

où β_T et β_S sont les coefficients d'expansion thermique et solutale, qui interviennent dans l'équation de Boussinesq (III.2.2).

Les valeurs initiales des champs de concentration dans le solide et le liquide, qui ne jouent ici aucun rôle, sont prises égales à 0 et 0,5 respectivement, et des conditions de flux nul sur les parois sont imposées pour ces deux champs.

1.2 Résultats

La Table G.1 résume les résultats numériques obtenus, alors que les visualisations des isothermes et des lignes de courant figurent dans la Table G.2.

Nous avons calculé le nombre de Nusselt Nu_0 représentant le flux de chaleur global adimensionné, calculé sur la paroi de gauche de la cavité :

$$Nu_0 = - \int_0^1 \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} dy \quad (\text{G.14})$$

ainsi que le maximum Ψ_{max} de la valeur absolue de la fonction de courant Ψ . Cette dernière étant définie par les relations :

$$V_x = - \frac{\partial \Psi}{\partial y} \quad (\text{G.15})$$

$$V_y = \frac{\partial \Psi}{\partial x} \quad (\text{G.16})$$

elle est solution du problème suivant :

$$\nabla^2 \Psi = \frac{\partial V_y}{\partial x} - \frac{\partial V_x}{\partial y} \quad \text{dans } \Omega \quad (\text{G.17})$$

$$\Psi = 0 \quad \text{sur } \partial\Omega \quad (\text{G.18})$$

Le schéma amont du premier ordre a été utilisé dans la résolution de l'équation d'énergie, pour les nombres de Rayleigh inférieurs ou égaux à 10^6 , avec un maillage assurant la présence d'au moins cinq volumes de contrôle scalaires dans l'épaisseur de diffusion visqueuse δ_v , qui représente la distance entre une paroi verticale et le pic du profil de vitesse au voisinage de cette paroi. Lorsque le nombre de Prandtl est inférieur à l'unité ($Pr = 0,71$ pour l'air), δ_v est en effet inférieure à l'épaisseur de couche limite thermique. Les valeurs de δ_v peuvent s'estimer grâce à la loi d'échelle suivante, pour les fluides de nombre de Prandtl inférieur à l'unité (Bejan, 1995) :

$$\delta_v \sim a \left(\frac{Ra_T}{Pr} \right)^{-1/4} \quad (\text{G.19})$$

La convergence au maillage de la méthode numérique est démontrée pour les valeurs 10^5 et 10^7 du nombre de Rayleigh. Pour cette dernière valeur, l'équation de l'énergie a été résolue à l'aide du schéma QUICK (Annexe F). On peut remarquer que les résultats sont déjà proches de la solution de référence avec le maillage 48×48 (régulier selon y et sinusoidal selon x) qui assure la présence de 2 volumes de contrôle scalaires dans δ_v .

Les comparaisons avec les solutions de référence (Table G.1) sont très satisfaisantes pour le nombre de Nusselt. En ce qui concerne les valeurs de Ψ_{max} , l'erreur relative par rapport à ces solutions est très légèrement plus grande que pour Nu_0 , mais toujours inférieure à 2%. Cela peut s'expliquer par l'utilisation du schéma amont du premier ordre dans la résolution des équations de Navier–Stokes. Par ailleurs, la valeur de Ψ_{max} se situe dans la région du centre de la cavité, où la taille des mailles, réparties de manière sinusoidale dans la direction horizontale, est la plus importante.

Les visualisations des champs d'isothermes et de lignes de courant, obtenus pour les valeurs 10^5 , 10^6 et 10^7 du nombre de Rayleigh, sont conformes à ceux des solutions de référence.

2 Convection naturelle en cavité poreuse

2.1 Description du problème

Il s'agit du problème de l'écoulement laminaire, visqueux, bidimensionnel et stationnaire d'un fluide binaire, dans une cavité rectangulaire remplie d'un milieu poreux homogène et isotrope. Les parois verticales sont maintenues chacune à température et concentration données, tandis les flux de chaleur et de masse sont nuls sur les parois horizontales (Figure G.2). L'approximation de Boussinesq est adoptée, et les propriétés physiques du fluide et du milieu poreux sont supposées constantes.

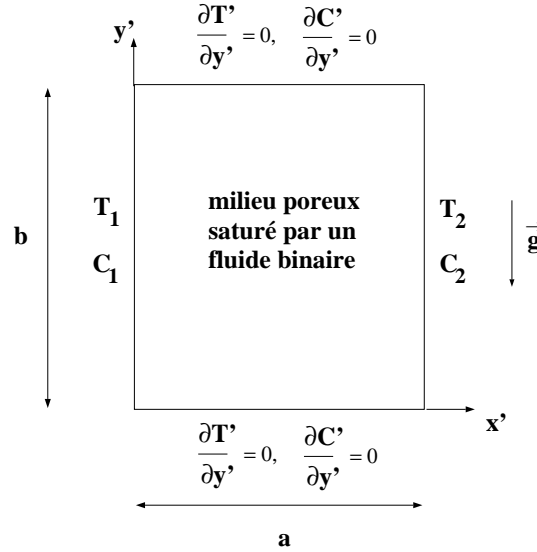


Figure G.2: *Cas-test de convection naturelle en cavité poreuse*

Adimensionnement :

$$x = x' / b, y = y' / b \quad (\text{G.20})$$

$$\mathbf{V} = \mathbf{V}' / V_1, P = (P' + \rho_0 g y') / (\rho_0 V_1^2) \quad (\text{G.21})$$

$$T = (T' - T_2) / (T_1 - T_2), C = (C' - C_2) / (C_1 - C_2) \quad (\text{G.22})$$

$$t = t' \nu_0 / b^2 \quad (\text{G.23})$$

Equations de bilan :

Les équations de bilan s'écrivent sous la forme :

$$\nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \quad (\text{G.24})$$

$$\frac{\partial \mathbf{V}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{V}\mathbf{V}) = -\nabla P + \nabla^2 \mathbf{V} + (\text{Gr}_T T + \text{Gr}_S C) \mathbf{e}_y - \frac{\varepsilon}{\text{Da}} \mathbf{V} \quad (\text{G.25})$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot (C\mathbf{V}) = \text{Sc}^{-1} \nabla^2 C \quad (\text{G.26})$$

$$\sigma \frac{\partial T}{\partial t} + \varepsilon \nabla \cdot (T\mathbf{V}) = \text{R}_\lambda \text{Pr}^{-1} \nabla^2 T \quad (\text{G.27})$$

où les différents nombres adimensionnels sont définis dans la nomenclature de cette annexe.

Conditions aux limites :

$$\mathbf{V} = 0 \quad \text{en} \quad x = 0, x = A^{-1}, y = 0, y = 1 \quad (\text{G.28})$$

$$C = 1, T = 1 \quad \text{en} \quad x = 0 \quad (\text{G.29})$$

$$C = 0, T = 0 \quad \text{en} \quad x = A^{-1} \quad (\text{G.30})$$

$$\frac{\partial C}{\partial y} = 0, \frac{\partial T}{\partial y} = 0 \quad \text{en} \quad y = 0, y = 1 \quad (\text{G.31})$$

Conditions initiales :

$$\mathbf{V} = 0, P = 1, C = \frac{1}{2}, T = \frac{1}{2} \quad \text{à} \quad t = 0 \quad (\text{G.32})$$

Le problème (G.24)–(G.32) a été résolu dans le cadre des hypothèses de travail de Goyeau *et al.* (1996) :

$$A = 1, \sigma = 1, \text{R}_\lambda = 1 \quad (\text{G.33})$$

Formellement, la porosité ε est prise égale à l'unité.

Une comparaison formelle est faite entre ce problème et la formulation du modèle de solidification en variables physiques (Table 6), résolu par l'algorithme de la Table 7 :

ε_ℓ	ε_s	ρ_0	μ_ℓ	$\beta_T g$	$\beta_S g$	$(\rho C_p)_m$	$C_{p\ell}$	λ_m	\mathbf{K}	D_s	D_ℓ	\bar{h}_{m_s}	\bar{h}_{m_ℓ}
1	0	1	1	Gr_T	Gr_S	1	1	Pr^{-1}	Da I	0	Sc^{-1}	0	0

où β_T et β_S sont les coefficients d'expansion thermique et solutale, qui interviennent dans l'équation de Boussinesq (III.2.2).

2.2 Résultats

La Table G.3 résume les résultats obtenus dans le cadre suivant :

$$A = 1, \text{Pr} = 10, \text{Le} = 10, \text{Da} = 10^{-7}, \text{N} = 0 \quad (\text{G.34})$$

Cette valeur de Da correspond à un régime d'écoulement darcéen, où les forces de frottement, qui s'exercent sur l'interface solide-fluide du milieu poreux, sont prédominantes devant la diffusion visqueuse.

De plus, la valeur nulle de N signifie que l'écoulement de convection naturelle est généré uniquement par les forces volumiques thermiques. Le transfert de masse résulte alors de l'écoulement, mais il n'influe pas sur le transfert de chaleur.

Les nombres de Nusselt Nu_0 (G.14) et de Sherwood Sh_0 :

$$Sh_0 = - \int_0^1 \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0} dy \quad (\text{G.35})$$

sont déterminés en fonction du nombre de Rayleigh thermique du milieu poreux Ra^* .

Le maillage est sinusoidal dans les deux directions, et sa taille a été choisie de manière à assurer la présence d'au moins deux volumes de contrôle scalaires dans l'épaisseur de couche limite solutale δ_s (qui est ici la couche la plus petite, car les nombres de Schmidt et de Lewis sont supérieurs à l'unité). δ_s s'évalue par la relation :

$$\delta_s \sim \frac{b}{Sh_0} \quad (\text{G.36})$$

dans laquelle Sh_0 s'estime par la loi d'échelle suivante, valable lorsque $\text{Le} > 1$ et $|\text{N}| \ll 1$ (Nield & Bejan, 1998) :

$$Sh_0 \sim \left(\text{Ra}^* \text{Le} \right)^{1/2} \quad (\text{G.37})$$

Les valeurs des nombres de Nusselt et de Sherwood, pour les valeurs 100 et 200 du nombre de Rayleigh, sont très proches de celles obtenues par Goyeau *et al.* (1996).

Pour $\text{Ra}^* = 1000$, les valeurs du nombre de Sherwood diffèrent davantage de celles de Goyeau *et al.* (1996). Toutefois, la convergence au maillage de la méthode numérique est démontrée pour cette valeur de Ra^* , par les résultats obtenus sur des maillages 62×62 et 92×92 .

Les différences entre nos résultats et ceux de Goyeau *et al.* (1996) sont tout de même modérées. Le schéma hybride (Patankar, 1980), utilisé par ces auteurs, pourrait être à l'origine de ces différences : ce schéma possède une précision du deuxième ordre lorsque le nombre de Péclet de maille est inférieur à deux en valeur absolue, alors que le schéma amont que nous avons utilisé n'est que du premier ordre.

Nomenclature de l'Annexe G

A	rapport de forme (b / a)
a	largeur de cavité, m
b	hauteur de cavité, m
C_1	concentration imposée sur la paroi de gauche
C_2	concentration imposée sur la paroi de droite
Da	K_0 / b^2 : nombre de Darcy
$C_{p\ell}$	capacité calorifique du fluide, $J.kg^{-1}.K^{-1}$
D_0	diffusivité massique du fluide, $m^2.s^{-1}$
e_y	vecteur unitaire dans la direction y
g	accélération de la pesanteur, $m^2.s^{-1}$
Gr_S	$\frac{\beta_S g (C_1 - C_2) b^3}{\nu_0^2}$: nombre de Grashof solutal
Gr_T	$\frac{\beta_T g (T_1 - T_2) b^3}{\nu_0^2}$: nombre de Grashof thermique
K_0	perméabilité de référence, m^2
Le	κ_0 / D_0 : nombre de Lewis
N	Gr_S / Gr_T : rapport des forces volumiques
Nu_0	nombre de Nusselt global (calculé sur la paroi de gauche)
P	pression adimensionnelle
Pr	ν_0 / κ_0 : nombre de Prandtl
Ra^*	$Gr_T \cdot Pr \cdot Da$: nombre de Rayleigh thermique du milieu poreux
Ra_T	$\frac{\beta_T g (T_1 - T_2) a^3}{\nu_0 \kappa_0}$: nombre de Rayleigh thermique du fluide
R_λ	λ_m / λ_ℓ
Sc	ν_0 / D_0 : nombre de Schmidt
Sh_0	nombre de Sherwood global (calculé sur la paroi de gauche)

t	temps adimensionnel
T	température adimensionnelle
T_1	température imposée sur la paroi verticale de gauche, K
T_2	température imposée sur la paroi verticale de droite, K
\mathbf{V}	vitesse adimensionnelle
V_0	$\frac{\kappa_0}{a}$: vitesse de référence, m.s ⁻¹
V_1	$\frac{\nu_0}{b}$: vitesse de référence, m.s ⁻¹
V_x	composante horizontale de \mathbf{V}
$V_{x_{max}}$	valeur maximale de V_x sur le plan médian horizontal ($y = 0.5$)
V_y	composante verticale de \mathbf{V}
$V_{y_{max}}$	valeur maximale de V_y sur le plan médian vertical ($x = 0.5$)
x	abscisse adimensionnelle
y	ordonnée adimensionnelle

Lettres grecques

β_s	coefficient d'expansion solutale
β_T	coefficient d'expansion thermique, K^{-1}
δ_s	épaisseur de couche limite solutale, m
δ_v	épaisseur de diffusion visqueuse, m
Δt	pas de temps adimensionnel
κ_0	diffusivité thermique du fluide, $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
λ_ℓ	conductivité thermique du fluide, $\text{W}.\text{K}^{-1}.\text{m}^{-1}$
λ_m	conductivité thermique du milieu poreux, $\text{W}.\text{K}^{-1}.\text{m}^{-1}$
ν_0	viscosité cinématique du fluide, $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$
ρ_0	masse volumique, $\text{kg}.\text{m}^{-3}$
$(\rho C_p)_m$	capacité calorifique volumique du milieu poreux, $\text{J}.\text{m}^{-3}.\text{K}^{-1}$
σ	$(\rho C_p)_m / (\rho_0 C_{p\ell})$
Ψ	fonction de courant adimensionnelle
Ψ_{max}	maximum de la valeur absolue de Ψ dans la cavité

Exposant

' grandeur physique dimensionnelle

Table G.1: *Résultats du cas-test de convection naturelle de l'air*

Ra_T	Maillage, pas de temps x : sinusoidal y : régulier	Quantité	Résultats	Solution de référence $Ra_T \leq 10^6$: [1] $Ra_T = 10^7$: [2]	Erreur	Schéma
10^3	27×27 $\Delta t = 10^{-2}$	Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max}	1,138 3,401 3,583 1,115	1,117 3,649 3,697 –	1,8 %	UDS1 *
10^4	41×41 $\Delta t = 10^{-2}$	Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max}	2,249 15,68 19,09 4,593	2,238 16,18 19,62 –	0,5 %	UDS1
10^5	60×60 $\Delta t = 10^{-2}$ 73×73 $\Delta t = 1,25 \cdot 10^{-4}$	Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max} Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max}	4,543 35,78 67,77 9,766 4,538 36,02 68,05 9,742	4,509 34,73 68,59 9,612 – – – –	0,8 % 1,6 % 0,6 % 1,3 %	UDS1
10^6	85×85 $\Delta t = 10^{-4}$	Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max}	8,866 66,59 219,92 16,996	8,817 64,63 219,36 16,75	0,6 % 1,5 %	UDS1
10^7	48×48 $\Delta t = 10^{-4}$ 70×70 $\Delta t = 10^{-4}$	Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max} Nu_0 V_{xmax} V_{ymax} Ψ_{max}	16,65 130,8 687,0 29,56 16,517 132,0 690,0 29,79	16,52 148,8 699,3 30,17 – – – –	0,8 % 2 % 0,02 % 1,25 %	QUICK

[1] : de Valh Davis & Jones (1983)

[2] : Le Quéré & Alziary de Roquefort (1985)

* : schéma amont du premier ordre

Table G.2: Convection naturelle de l'air : isothermes et lignes de courant

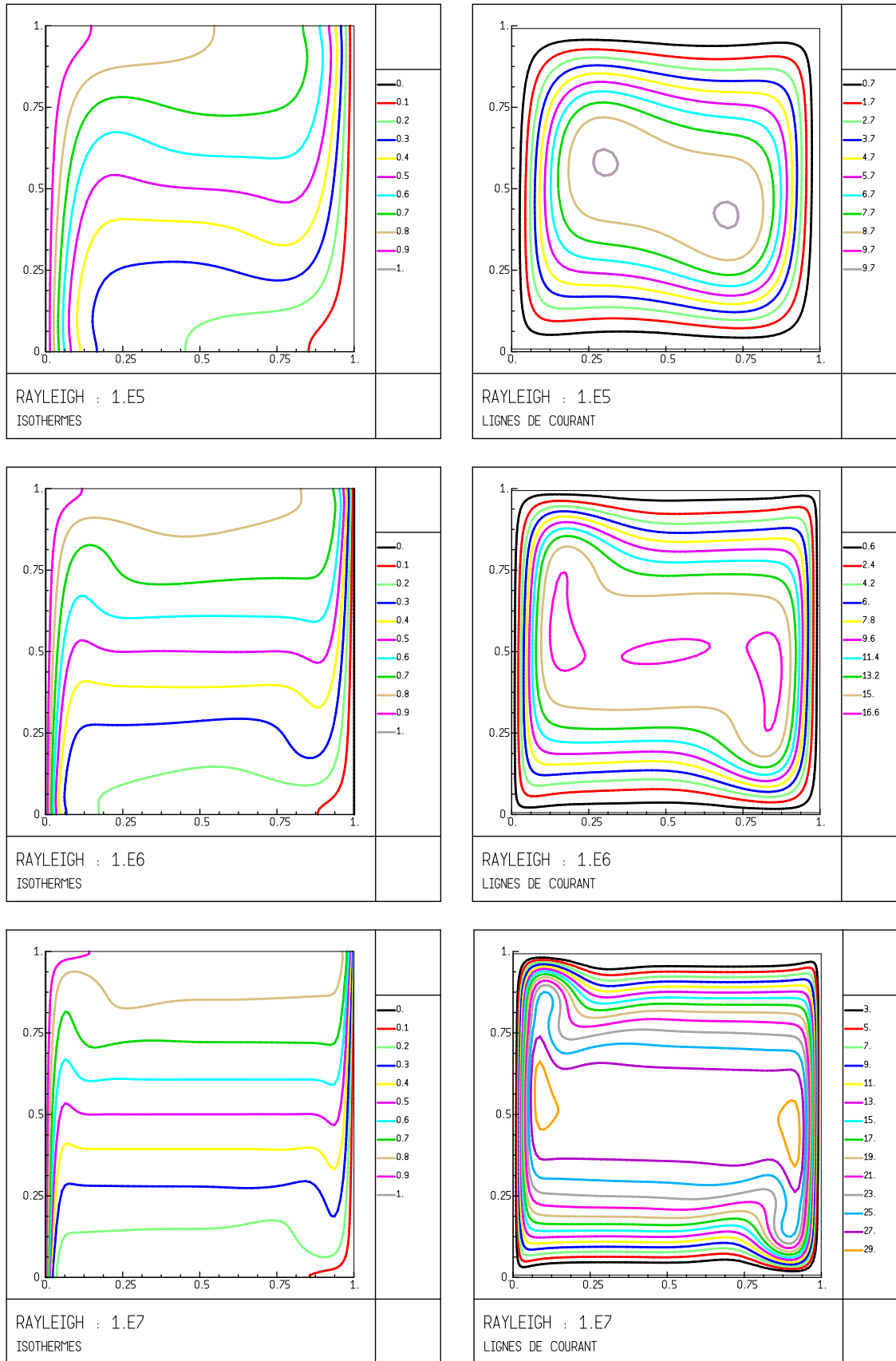


Table G.3: *Résultats du cas-test de convection naturelle en cavité poreuse*

$$A = 1, \text{Pr} = 10, \text{Le} = 10, \text{Da} = 10^{-7}, \text{N} = 0$$

Ra*	Maillage, pas de temps x : sinusoidal y : sinusoidal	Quantité	Résultats	Solution de référence [1]	Erreur	Schéma
100	33 × 33 $\Delta t = 5.10^{-1}$	Nu_0 Sh_0	3,109 13,22	3,11 13,25	0,3 % 0,2 %	UDS1 †
200	40 × 40 $\Delta t = 5.10^{-1}$	Nu_0 Sh_0	4,935 19,89	4,96 19,86	0,5 % 0,15 %	UDS1
1000	62 × 62 $\Delta t = 10^{-2}$ 92 × 92 $\Delta t = 10^{-2}$	Nu_0 Sh_0 Nu_0 Sh_0	13,47 49,20 13,48 49,28	13,47 48,32	0 % 1,78 % 0,07 % 2,01 %	UDS1

[1] : Goyeau *et al.* (1996)

† : schéma amont du premier ordre

Bibliographie

- Adda, Y., Dupouy, J., Philibert, J. & Quéré, Y. (1987), *Eléments de Métallurgie Physique*, volume 3, Commissariat à l’Energie Atomique, INSTN, CEN Saclay, France.
- Agarwal, P. (1988), Transport phenomena in multi-particle systems–II. Particule–fluid heat and mass transfer, *Chemical Engineering Science*, **43**(9), 2501–2510.
- Ahmad, N., Combeau, H., Desbiolles, J., Jalanti, T., Lesoult, G., Rappaz, J., Rappaz, M. & Stomp, C. (1998), Numerical simulation of macrosegregation : a comparison between finite volume method and finite element method. Predictions and a confrontation with experiments, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **29A**, 617–630.
- Asmolov, V., Abalin, S., Surenkov, A., Gnidoi, I. & Strizhov, V. (1998), Results of salt experiments performed during phase I of RASPLAV project, Technical report, Institute of Nuclear Safety (IBRAE) Russian Academy of Science.
- Barrère, J., Gipouloux, O. & Whitaker, S. (1992), On the closure problem for Darcy’s law, *Transport in Porous Media*, **7**, 209–222.
- Batsale, J., Gobbé, C. & Quintard, M. (1996), Local non-equilibrium heat transfer in porous media, *Recent Research Developments in Heat, Mass & Momentum Transfer*, **1**, 1–24.
- Bear, J. (1972), *Dynamics of Fluids in Porous Media*, Dover.
- Bear, J. & Bachmat, Y. (1984), Transport phenomena in porous media – Basic equations, in J. Bear & M. Corapciogli, editors, *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media*, pages 1–61, Martinus Nijhoff.
- Beckermann, C. (1987), *Melting and Solidification of Binary Mixtures with Double-Diffusive Convection in the Melt*, Ph.D. thesis, Purdue University.
- Beckermann, C. & Viskanta, R. (1988), Double-diffusive convection during dendritic solidification of a binary mixture, *PhysicoChemical Hydrodynamics*, **10**, 195–213.
- Beckermann, C. & Viskanta, R. (1993), Mathematical modeling of transport phenomena during alloy solidification, *Applied Mechanics Review*, **46**(1), 1–27.
- Beckermann, C. & Wang, C. (1995), Multiphase / scale modeling of alloy solidification, *Annual Review of Heat Transfer*, **6**, 115–198.
- Beckermann, C. & Wang, C. (1996), Equiaxed dendritic solidification with convection : Part III. Comparisons with nh_4cl – h_2o experiments, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **27A**, 2784–2795.
- Bejan, A. (1995), *Convection Heat Transfer*, John Wiley.

- Benihaddadene, T. (1997), *Modélisation Macroscopique des Ecoulements et des Transferts dans un Milieu Poreux Hétérogène : Application à la Solidification*, Ph.D. thesis, Université de Paris VI.
- Bennon, W. & Incropera, F. (1987a), A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems-I. Model formulation, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **30**(10), 2161–2170.
- Bennon, W. & Incropera, F. (1987b), A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems-II. Application to solidification in a rectangular cavity, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **30**(10), 2171–2187.
- Bennon, W. & Incropera, F. (1988), Numerical analysis of binary solid-liquid phase change using a continuum model, *Numerical Heat Transfer*, **13**, 277–296.
- Bhat, M., Poirier, D. & Heinrich, J. (1995), Permeability for cross flow through columnar-dendritic alloys, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **26B**, 1049–1056.
- Bird, R., Stewart, W. & Lightfoot, E. (1960), *Transport Phenomena*, John Wiley, New York.
- Blair, M. & Monroe, R. (2000), Future modeling needs in the casting industry, in P. Sahn, P. Hansen & J. Conley, editors, *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes IX*, pages XIX–XXIV, Aachen, Shaker, Germany.
- Bouré, J. & Delhayé, J. (1982), General equations and two-phase flow modeling, in G. Hetsroni, editor, *Handbook of Multiphase Systems*, Mc Graw Hill.
- Broughton, J., Kuan, P., Petti, D. & Tolman, E. (1989), A scenario of the Three Mile Island unit 2 accident, *Nuclear Technology*, **87**, 34–53.
- Carbonell, R. & Whitaker, S. (1983), Dispersion in pulsed systems–II. Theoretical developments for passive dispersion in porous media, *Chemical Engineering Science*, **38**(11), 1795–1802.
- Carbonell, R. & Whitaker, S. (1984), Heat and mass transfer in porous media, in J. Bear & M. Corapciogli, editors, *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media*, pages 121–198, Martinus Nijhoff.
- Caroli, B., Caroli, C., Misbah, C. & Roulet, R. (1985), Solutal convection and morphological instability in directionnal solidification of binary alloys, *J. Physique*, **46**, 401–413.
- Caroli, B., Caroli, C. & Roulet, B. (1991), Instabilities of planar solidification fronts, in C. Godrèche, editor, *Solids Far From Equilibrium*, Cambridge University Press.
- Chella, R., Lasseux, D. & Quintard, M. (1998), Multiphase, multicomponent fluid flow in homogeneous and heterogeneous porous media, *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, **53**(3), 335–346.
- Chiareli, A. & Worster, M. (1995), Flow focusing instability in a solidifying mushy layer, *Journal of Fluid Mechanics*, **297**, 293–305.
- Christenson, M., Bennon, W. & Incropera, F. (1989), Solidification of an aqueous ammonium chloride solution in a rectangular cavity - II. comparison of predicted and measured results, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **32**(1), 69–79.

- Clyne, T. & Kurz, W. (1981), Solute redistribution during solidification with rapid solid state diffusion, *Metallurgical Transactions A*, **12A**, 965–971.
- Combeau, H., Roch, F., Poitroult, I., Chevrier, J. & Lesoult, G. (1990), Numerical study of heat and mass transfer during solidification of steel ingots, in *The First International Conference in Advanced Computational Methods in Heat Transfer*, pages 79–90, Portsmouth, UK.
- Coriell, S., Cordes, M., Boettinger, W. & Sekerka, R. (1980), Convective and interfacial instabilities during unidirectional solidification of a binary alloy, *Journal of Crystal Growth*, **49**, 13–28.
- Coriell, S. & McFadden, G. (1993), Morphological stability, in D. Hurle, editor, *Handbook of Crystal Growth*, volume 1b, Transport and Stability, pages 785–857.
- Crapiste, G., Rotsein, E. & Whitaker, S. (1986), A general closure scheme for the method of volume averaging, *Chemical Engineering Science*, **41**(2), 227–235.
- Cushman, J. (1983), Multiphase transport equations : I - General equation for macroscopic statistical, local, space-time homogeneity, *Transport Theory and Statistical Physics*, **12**(1), 35–71.
- Cvetković, V. (1986), A continuum approach to high velocity flow in a porous medium, *Transport in Porous Media*, **1**, 63–97.
- Davis, H. (1993), Effects of flow on morphological stability, in D. Hurle, editor, *Handbook of Crystal Growth*, volume 1b, Transport and Stability, pages 861–897, North-Holland.
- de Vahl Davis, G. (1983), Natural convection of air in a square cavity : A bench mark numerical solution, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, **3**, 249–264.
- de Valh Davis, D. & Jones, I. (1983), Natural convection of air in a square cavity : A comparison exercise, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, **3**, 227–248.
- Drummond, J. & Tahir, M. (1984), Laminar viscous flow through regular arrays of parralel solid cylinders, *International Journal of Multiphase Flow*, **10**(5), 515–540.
- Dybbs, A. & Edwards, R. (1984), A new look at porous media fluid mechanics - Darcy to turbulent, in J. Bear & M. Corapcioglu, editors, *Fundamentals of Transport Phenomena in Porous Media*, Martinus Nijhoff.
- Felicelli, S., Heinrich, J. & Poirier, D. (1991), Simulation of freckles during vertical solidification of binary alloys, *Metallurgical Transactions B*, **22B**, 847–859.
- Felicelli, S., Poirier, D. & Heinrich, J. (1998), Modeling freckle formation in three dimensions during solidification of multicomponent alloys, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **29B**, 847–855.
- Feller, R. & Beckermann, C. (1993), Modeling of the globulitic solidification of a binary metal alloy, *Int. Comm. Heat Mass Transfer*, **20**, 311–322.
- Fellicelli, S., Heinrich, J. & Poirier, D. (1993), Numerical model for dendritic solidification of binary alloys, *Numerical Heat Transfer*, **23**, 461–481.
- Ferziger, J. & Perić, M. (1999), *Computational Methods for Fluid Dynamics*, Springer.

- Fichot, F., Barrachin, M., Chatelard, P., Guillard, V., Mélis, S., Zabiego, M. & Lefèvre, B. (2000), A computer code for analysis of severe accidents in LWRs ICARE2 V3mod1 : Description of physical models, Technical Report 00/03, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire – DRS/SEMAR, CEN Cadarache, 13108 Saint Paul Lez Durance, France.
- Firdaouss, M. & Guermond, J. (1995), Sur l’homogénéisation des equations de Navier-Stokes à faible nombre de Reynolds, *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences, Série I*, **320**, 245–251.
- Flemings, M. (1974), *Solidification Processing*, McGraw-Hill.
- Flemings, M. (1991), Behavior of metal alloys in the semisolid state, *Metallurgical Transactions B*, **22B**, 269–293.
- Ganesan, S., Chan, C. & Poirier, D. (1992), Permeability for flow parallel to primary dendrite arms, *Materials Science and Engineering A*, **151**, 97–105.
- Ganesan, S. & Poirier, D. (1990), Conservation of mass and momentum for the flow of interdendritic liquid during solidification, *Metallurgical Transactions B*, **21B**, 173–181.
- Ganić, E., Hartnett, J. & Rohsenow, W. (1985), Basic concepts of heat transfer, in W. Rohsenow, J. Hartnett & E. Ganić, editors, *Handbook of Heat Transfer Fundamentals*, McGraw-Hill.
- Gobbé, C. & Quintard, M. (1994), Macroscopic description of unsteady heat transfer in heterogeneous media, *High Temperatures-High Pressures*, **26**, 1–14.
- Gobbé, C., Ramond, L. & Quintard, M. (1998), Macroscopic description of unsteady heat transfer in heterogeneous media with consideration of interfacial thermal barriers, *High Temperatures-High Pressures*, **30**, 365–372.
- Gonzalez, R., Chatelard, P., Fichot, F. & Jacq, F. (1997), ICARE2 : A computer program for severe core damage analysis in LWRs, Technical Report 97-12, *Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire – DRS/SEMAR/LECTA*, Centre de Cadarache (France).
- Goyeau, B., Benihaddadene, T., Gobin, D. & Quintard, M. (1997), Averaged momentum equation for flow through a non homogeneous porous structure, *Transport in Porous Media*, **28**, 19–50.
- Goyeau, B., Benihaddadene, T., Gobin, D. & Quintard, M. (1998), Numerical determination of the permeability tensor, in *Modeling of Casting, Welding and Advances Solidification Processes VIII*, pages 353–360, San Diego, California.
- Goyeau, B., Benihaddadene, T., Gobin, D. & Quintard, M. (1999), Numerical calculation of the permeability tensor in a dendritic mushy zone, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **30B**, 613–622.
- Goyeau, B., Songbe, J. & Gobin, D. (1996), Numerical study of double-diffusive natural convection in a porous cavity using the Darcy–Brinkman formulation, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **39**(7), 1363–1378.
- Gray, W. (1975), A derivation of the equations for multi-phase transport, *Chemical Engineering Science*, **30**, 229–233.
- Gray, W. & O’Neill, K. (1976), On the general equations for flow in porous media and their reduction to Darcy’s law, *Water Resources Research*, **12**(2), 148–154.

- Gu, J. & Beckermann, C. (1999), Simulation of convection and macrosegregation in a large steel ingot, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **30A**, 1357–1366.
- Gu, J., Beckermann, C. & Giamei, A. (1997), Motion and remelting of dendrite fragments during directional solidification of a nickel–base superalloy, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **28A**, 1533–1542.
- Hassanizadeh, S. & Gray, W. (1987), High velocity flow in porous media, *Transport in Porous Media*, **2**, 521–531.
- Hayase, T., Humphrey, J. & Greif, R. (1992), A consistently formulated QUICK scheme for fast and stable convergence using finite–volume iterative calculation procedures, *Journal of Computational Physics*, **98**, 108–118.
- Hebditch, D. & Hunt, J. (1974), Observations of ingot macrosegregation on model systems, *Metallurgical Transactions*, pages 1557–1564.
- Hills, R., Loper, D. & Roberts, P. (1983), A thermodynamically consistent model of a mushy zone, *Q. Jl Mech. appl. Math.*, **36**, 505–539.
- Hirsch, C. (1998), *Numerical Computation of Internal and External Flows, Volume 2: Computational Methods for Inviscid and Viscous Flows*, John Wiley & Sons.
- Huppert, H. (1990), The fluid mechanics of solidification, *Journal of Fluid Mechanics*, **212**, 209–240.
- Hurle, D., Jakeman, E. & Wheeler, A. (1982), Effect of solutal convection on the morphological stability of a binary alloy, *Journal of Crystal Growth*, **58**, 163–179.
- Jenkins, D. (1990), Oscillatory instability in a model of directional solidification, *Journal of Crystal Growth*, **102**, 481–490.
- Kaviany, M. (1995), *Principles of Heat Transfer in Porous Media*, Springer.
- Krane, M. & Incropera, F. (1997), Solidification of ternary metal alloys–II. Predictions of convective phenomena and solidification behavior in Pb–Sn alloys, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **40**(16), 3837–3847.
- Krane, M., Incropera, F. & Gaskell, D. (1997), Solidification of ternary metal alloys–I. Model development, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **40**(16), 3827–3835.
- Kurz, W. & Fisher, D. (1989), *Fundamentals of Solidification*, Trans Tech Publications.
- Le Quéré, P. & Alziary de Roquefort, T. (1985), Computation of natural convection in two–dimensional cavities with Chebyshev polynomials, *Journal of Computational Physics*, **57**, 210–228.
- Leonard, B. & Drummond, E. (1995), Why you should not use ‘hybrid’, ‘power–law’ or related exponential schemes for convective modelling–There are much better alternatives, *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, **20**, 421–442.
- Ma, H. & Ruth, D. (1993), The microscopic analysis of high forchheimer number flow in porous media, *Transport in Porous Media*, **13**, 139–160.
- Marle, C. (1967), Ecoulements monophasiques en milieu poreux, *Revue de L’Institut Français du Pétrole*, **XXII**(10), 1471–1509.

- Marle, C. (1982), On macroscopic equations governing multiphase flow with diffusion and chemical reactions in porous media, *International Journal of Engineering Science*, **20**(5), 643–662.
- Mei, C. & Auriault, J. (1991), The effect of weak inertia on flow through a porous medium, *Journal of Fluid Mechanics*, **222**, 647–663.
- Misbah, C. (1985), *Instabilité Morphologique et Convection Solutale en Solidification Directionnelle des Mélanges Binaires Dilués*, Ph.D. thesis, Université Paris VII.
- Mullins, W. & Sekerka, R. (1964), Stability of a planar interface during solidification of a dilute binary alloy, *Journal of Applied Physics*, **33**(2), 444–451.
- Nasser-Rafi, R., Deshmukh, R. & Poirier, D. (1985), Flow of interdendritic liquid and permeability in pb–20 wt pct sn alloys, *Metallurgical Transactions A*, **16A**, 2263–2271.
- Neilson, D. G. & Incropera, F. P. (1991), Unidirectional solidification of a binary alloy and the effects of induced fluid motion, *Int. J. heat Mass Transfer*, **34**(7), 1717–1732.
- Ni, J. (1991), *Development of a Two-phase Model of Transport Phenomena during Equiaxed Solidification*, Ph.D. thesis, University of Iowa.
- Ni, J. & Beckermann, C. (1991), A volume-averaged two-phase model for transport phenomena during solidification, *Metallurgical Transactions B.*, **22B**, 349–361.
- Ni, J. & Beckermann, C. (1993), Modeling of globulitic alloy solidification with convection, *Journal of Materials Processing & Manufacturing Science*, **2**, 217–231.
- Ni, J. & Incropera, F. (1995a), 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**(7), 1285–1296.
- Ni, J. & Incropera, F. (1995b), Extension of the continuum model for transport phenomena occurring during metal alloy solidification-II. microscopic considerations, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **38**(7), 1285–1296.
- Nield, D. & Bejan, A. (1998), *Convection in Porous Media*, Springer.
- Nozad, I., Carbonell, R. & Whitaker, S. (1985), Heat conduction and experiments for two-phase systems, *Chemical Engineering Science*, **40**(5), 843–855.
- Ohnaka, I. (1986), Mathematical analysis of solute redistribution during solidification with diffusion, *Transactions ISIJ*, **26**(12), 1045–1051.
- Patankar, S. (1980), *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, Hemisphere Publishing Corporation.
- Piar, B., Michel, B., Babik, F., Latché, J., Guillard, G. & Ruggiéri, J. (1999), CROCO : a computer code for corium spreading, in *Proceedings of the NURETH 9, October 3-8, 1999, San Francisco*.
- Plumb, O. & Whitaker, S. (1988), Dispersion in heterogeneous porous media 1. Local volume averaging and large-scale averaging, *Water Resources Research*, **24**(7), 913–926.
- Poirier, D. (1987), Permeability for flow of interdendritic liquid in columnar-dendritic alloys, *Metallurgical Transactions B*, **18B**, 245–255.

- Poirier, D., Nandapurkar, P. & Ganesan, S. (1991), The energy and solute conservation equations for dendritic solidification, *Metallurgical Transactions B*, **22B**, 889–900.
- Pollock, T. & Murphy, W. (1996), The breakdown of single-crystal solidification in high refractory nickel–base alloys, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **27A**, 1081–1094.
- Prakash, C. (1990a), Two-phase model for binary solid–liquid phase change, part I : Governing equations, *Numerical Heat Transfer, Part B*, **18**, 131–145.
- Prakash, C. (1990b), Two-phase model for binary solid–liquid phase change, part II : Some illustrative examples, *Numerical Heat Transfer, Part B*, **18**, 147–167.
- Precott, P. & Incropera, F. (1991), Numerical simulation of a solidifying pb-sn alloy : The effects of cooling rate on thermosolutal convection and macrosegregation, *Metallurgical Transactions B*, **22B**, 529–540.
- Prescott, P. & Incropera, F. (1994), Convective transport phenomena and macrosegregation during solidification of a binary metal alloy : I - Numerical predictions, *Journal of Heat Transfer*, **116**, 735–741.
- Prescott, P. & Incropera, F. (1995), The effect of turbulence on solidification of a binary metal alloy with electromagnetic stirring, *Journal of Heat Transfer*, **117**, 716–724.
- Prescott, P. & Incropera, F. (1996), Convection heat and mass transfer in alloy solidification, *Advances in Heat Transfer*, **28**, 231–337.
- Prescott, P., Incropera, F. & Bennon, W. (1991), Modeling of dendritic solidification systems : reassessment of the continuum momentum equation, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **34**(9), 2351–2359.
- Prescott, P., Incropera, F. & Gaskell, D. (1992), The effects of undercooling, recalescence and solid transport on the solidification of binary metal alloys, *Transport Phenomena in Materials Processing and Manufacturing*, **196**, 31–39.
- Prescott, P., Incropera, F. & Gaskell, D. (1994), Convective transport phenomena and macrosegregation of a binary metal alloy : II - Experiments and comparisons with numerical predictions, *Journal of Heat Transfer*, **116**, 742–749.
- Quintard, M., Kaviany, M. & Whitaker, S. (1997), Two-medium treatment of heat transfer in porous media : Numerical results for effective properties, *Advances in Water Resources*, **20**(2-3), 77–94.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1988), Two-phase flow in heterogeneous porous media : The method of large-scale averaging, *Transport in Porous Media*, **3**, 357–413.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1993), One- and two-equation models for transient diffusion processes in two-phase systems, *Advances in Heat Transfer*, **23**, 369–464.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994a), Convection, dispersion, and interfacial transport of contaminants : Homogeneous porous media, *Advances in Water Resources*, **17**, 221–239.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994d), Transport in ordered and disordered porous media I : The cellular average and the use of weighting functions, *Transport in Porous Media*, **14**, 179–206.

- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994c), Transport in ordered and disordered porous media II: Generalized volume averaging, *Transport in Porous Media*, **14**, 179–206.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1994b), Transport in ordered and disordered porous media III: Closure and comparison between theory and experiment, *Transport in Porous Media*, **15**, 31–49.
- Quintard, M. & Whitaker, S. (1995), Local thermal equilibrium for transient heat conduction: Theory and comparison with numerical experiments, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **38**(15), 2779–2796.
- Rappaz, M. (1989), Modelling of microstructure formation in solidification processes, *International Materials Reviews*, **34**(3), 93–123.
- Rappaz, M. & Thévoz, P. (1987a), Solute diffusion model for equiaxed dendritic growth, *Acta Metallurgica*, **35**(7), 1487–1497.
- Rappaz, M. & Thévoz, P. (1987b), Solute diffusion model for equiaxed dendritic growth: Analytical solution, *Acta Metallurgica*, **35**(12), 2929–2933.
- Rappaz, M. & Voller, V. (1990), Modeling of micro-macroseggregation in solidification processes, *Metallurgical Transactions A*, **21A**, 749–755.
- Ridder, S., Kou, S. & Mehrabian, R. (1981), Effect of fluid flow on macroseggregation in axi-symmetric ingots, *Metallurgical Transactions B*, **12B**, 435–447.
- Roch, F., Combeau, H., Chevrier, J. & Lesoult, G. (1991), Numerical model for prediction of the final composition and pipe formation of heavy steel ingots, in M. Rappaz, M. Ozgu & K. Mahin, editors, *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes V*, pages 789–795, Warrendale.
- Roch, F., Combeau, H., Poitroult, I., Chevrier, J. & Lesoult, G. (1990), Numerical model for prediction of chemical-type segregation in heavy steel ingots, in *Proceedings of the Sixth International Iron and Steel Congress*, pages 665–672, Nagoya, ISIJ.
- Rowe, P. & Claxton, K. (1965), Heat and mass transfer from a single sphere to fluid flowing through an array, *Trans. Instn. Chem. Engrs*, **43**, T321–T331.
- Saad, Y. (1996), *Iterative Methods for Sparse Linear Systems*, PWS.
- Sangani, A. & Acrivos, A. (1982), Slow flow past periodic arrays of cylinders with application to heat transfer, *International Journal of Multiphase Flow*, **8**, 193–206.
- Schneider, M. & Beckermann, C. (1995a), Formation of macroseggregation by multicomponent thermosolutal convection during the solidification of steel, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **26A**, 2373–2388.
- Schneider, M. & Beckermann, C. (1995b), A numerical study of the combined effects of microseggregation, mushy zone permeability and flow, caused by volume contraction and thermosolutal convection, on macroseggregation and eutectic formation in binary alloy solidification, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **38**(18), 3455–3473.
- Schneider, M., Gu, J., Beckermann, C., Boettinger, W. & Kattner, U. (1997), Modeling of micro- and macroseggregation and freckle formation in single-crystal nickel-base superalloy directional solidification, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **28A**, 1517–1531.

- Singh, A. & Basu, B. (1995), Mathematical modeling of macrosegregation of iron carbon binary alloy : Role of double-diffusive convection, *Metallurgical and Materials Transactions B*, **26B**, 1069–1081.
- Sinha, S. & Sundararajan, T. (1992), A variable property analysis of alloy solidification using the anisotropic porous medium approach, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **35**(11), 2865–2877.
- Stefanescu, D., Upadhyaya, G. & Bandyopadhyay, D. (1990), Heat transfer-solidification kinetics modeling of solidification of castings, *Metallurgical Transactions A*, **21A**, 997–1005.
- Swaminathan, C. & Voller, V. (1997), Towards a general numerical scheme for solidification systems, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **40**(12), 2859–2868.
- Szekely, J. & Jassal, A. (1978), An experimental and analytical study of the solidification of a binary dendritic system, *Metallurgical Transactions B*, **9B**, 389–398.
- Tardy, P. & Quintard, M. (1999), Solving stiff mass transfer in computational multiphase flow models : Numerical stability and spurious solutions, *Computational Geosciences*, **3**, 161–183.
- Thévoz, P., Desbiolles, J. & Rappaz, M. (1989), Modeling of equiaxed microstructure formation in casting, *Metallurgical Transactions A*, **20A**, 311–322.
- Thomas, B., O'Malley, R., Tiebiao, S., Meng, Y., Creech, D. & Stone, D. (2000), Validation of fluid flow and solidification simulation of a continuous thin-slab caster, in P. Sahn, P. Hansen & J. Conley, editors, *Modeling of Casting, Welding and Advanced Solidification Processes IX*, pages XIX–XXIV, Aachen, Shaker, Germany.
- Trivedi, R. & Kurz, W. (1986), Morphological stability of a planar interface under rapid solidification conditions, *Acta metallurgica*, **34**(8), 1663–1670.
- Van Doormaal, J. & Raithby, G. (1984), Enhancements of the SIMPLE method for predicting incompressible fluid flows, *Numerical Heat Transfer*, **7**, 147–163.
- Vannier, I., Combeau, H. & Lesoult, G. (1992), Numerical model for prediction of the final composition of heavy steel ingots, in Chenot, Wood & Zienkiewicz, editors, *Numerical Methods in Industrial Forming Processes*, Balkema, Rotterdam.
- Viskanta, R. (1990), Mathematical modeling of transport processes during solidification of binary systems, *JSME International Journal, Series II*, **33**(3), 409–423.
- Voller, V. (1990), Fast implicit finite-difference method for the analysis of phase change problems, *Numerical Heat Transfer, Part B*, **17**, 155–169.
- Voller, V. (1997), A similarity solution for the solidification of a multicomponent alloy, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **40**(12), 2869–2877.
- Voller, V. (1998), A numerical scheme for solidification of an alloy, *Canadian Metallurgical Quarterly*, **37**(3-4), 169–177.
- Voller, V., Brent, A. & Prakash, C. (1989), The modelling of heat, mass and solute transport in solidification systems, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **32**(9), 1719–1731.

- Voller, V. & Prakash, C. (1987), A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **30**(8), 1709–1719.
- Voller, V., Swaminathan, C. & Thomas, B. (1990), Fixed grid techniques for phase change problems: A review, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, **30**, 875–898.
- Wang, C. (1994), *Multi-Scale / Phase Modeling of Dendritic Alloy Solidification*, Ph.D. thesis, The University of Iowa, Iowa City.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1992), A multiphase micro-macroscopic model of solute diffusion in dendritic alloy solidification, *Micro-Macro Scale Phenomena in Solidification ASME*, pages 43–57.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1993), Multiphase solute diffusion model for dendritic alloy solidification, *Metallurgical Transactions A*, **24A**, 2787–2802.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1994), Prediction of columnar to equiaxed transition during diffusion-controlled dendritic alloy solidification, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **25A**, 1081–1093.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1995), Computer simulations of microstructural development in dendritic alloy solidification with convection, in V. Voller, S. Marsh & N. El-Kaddah, editors, *Materials Processing in the Computer Age-II*, pages 129–143, The Minerals, Metals & Materials Society.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1996a), Equiaxed dendritic solidification with convection: Part I. Multiscale / multiphase modeling, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **27A**, 2754–2764.
- Wang, C. & Beckermann, C. (1996b), Equiaxed dendritic solidification with convection: Part II. Numerical simulations for an Al–4 wt pct Cu alloy, *Metallurgical and Materials Transactions A*, **27A**, 2765–2783.
- Whitaker, S. (1969), Advances in theory of fluid motion in porous media, *Industrial and Engineering Chemistry*, **61**(12), 14–28.
- Whitaker, S. (1977), Simultaneous heat, mass, and momentum transfer in porous media: A theory of drying, *Advances in Heat Transfer*, **13**, 119–203.
- Whitaker, S. (1986a), Flow in porous media I: A theoretical derivation of Darcy's law, *Transport in Porous Media*, **1**, 3–25.
- Whitaker, S. (1986b), Transport processes with heterogeneous reaction, in S. Whitaker & A. Cassano, editors, *Concepts and Design of Chemical Reactors*, pages 1–94, New York.
- Whitaker, S. (1991), Improved constraints for the principle of local thermal equilibrium, *Industrial Engineering Chemistry Research*, **30**, 983–997.
- Whitaker, S. (1996), The forchheimer equation: a theoretical development, *Transport in Porous Media*, **25**, 27–61.
- Worster, M. (1991), Natural convection in a mushy layer, *Journal of Fluid Mechanics*, **224**, 335–359.

- Wright, R. (1996), Core melt progression : Status of current understanding and principal uncertainties, in J. Rogers, editor, *Heat and Mass Transfer in Severe Nuclear Reactor Accidents*, Begell House, New York, Wallingford, U.K.
- Xu, D. & Li, Q. (1991), Gravity- and solidification-shrinkage-induced liquid flow in a horizontally solidified alloy ingot, *Numerical Heat Transfer, Part A*, **20**, 203–221.
- Yoo, H. & Viskanta, R. (1992), Effect of anisotropic permeability on the transport during solidification of a binary mixture, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **35**(10), 2335–2346.
- Zanotti, F. & Carbonell, R. (1984), Development of transport equations for multiphase systems–I, *Chemical Engineering Science*, **39**(2), 263–278.