

THÈSE DE DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Spécialité

Mécanique-Energétique

Présentée par

M. Patrick ROUX

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS 6

Sujet de la thèse :

**MODÉLISATION DE LA SOLIDIFICATION COLONNAIRE
ET ÉQUIAXE DE MÉLANGES BINAIRES**

Date prévue de soutenance le 15 Décembre 2005

devant le jury composé de :

Hervé COMBEAU	LSG2M Ecole des Mines de Nancy (Professeur)	Rapporteur
Yves FAUTRELLE	EPM-MADYLAM, ENSHMG-INPG Grenoble (Professeur)	Rapporteur
Florian FICHOT	IRSN/DPAM, Cadarache (Ingénieur)	Invité
Renée GATIGNOL	LMM-UPMC, Paris (Professeur)	
Dominique GOBIN	FAST-UPMC, Orsay (D.R., Directeur de thèse)	
Benoît GOYEAU	FAST-UPMC, Orsay (M.C., Directeur de thèse)	
Michel QUINTARD	IMFT-INPT, Toulouse (D.R.)	

Remerciements :

Je remercie Renée Gatignol pour avoir accepté de présider le jury de ma thèse, ainsi que Hervé Combeau et Yves Fautrelle pour en avoir été rapporteurs. Leurs remarques pertinentes et les discussions que nous avons eues ont été instructives et m'ont permis de perfectionner le mémoire.

J'ai travaillé durant trois ans dans le Laboratoire d'Etude et de Simulation des Accidents Graves (LESAG) de l'IRSN à Cadarache où les conditions de travail et l'ambiance sont excellentes. J'ai apprécié le soutien et la bonne humeur de tous les membres du laboratoire. Je remercie plus particulièrement Florian Fichot, ingénieur recherche de l'IRSN, qui a assuré mon encadrement. Il s'est montré disponible pour m'aider et me conseiller, et j'ai beaucoup appris à ses côtés. Ses qualités humaines et scientifiques sont très appréciables pour mener un tel travail de recherche.

J'adresse des remerciements très sincères à Dominique Gobin et Benoît Goyeau du laboratoire FAST (Orsay), ainsi que Michel Quintard de l'IMFT (Toulouse) qui ont dirigé mes travaux. Leur disponibilité et leurs compétences scientifiques ont beaucoup apporté à ce travail de recherche.

Je tiens aussi à remercier les étudiants qui ont participé au cours de stages à ce projet : Sylvain De Pierrepont (Etudiant ISITV), Abhinav Bharti (Indian Institute of Technology) et Roman Pichot (Etudiant ENSIC). Par leur motivation et leur enthousiasme, ils ont contribué à ce travail sur différents points.

Nomenclature :

Symboles

$\langle \rangle$	Moyenne volumique
$\langle \rangle^k$	Moyenne intrinsèque volumique de la phase k
\underline{X}	Notation de prise de moyenne de X pour la méthode de champ de phase
\overline{X}	Notation de prise de moyenne temporelle de X pour le modèle équiaxe
\widehat{X}	Notation de prise de moyenne temporelle intrinsèque de X pour le modèle équiaxe
$\nabla \cdot$	Divergence
∇	Gradient
\sim	Fluctuation d'un champ : $\widetilde{X} = X - \langle X \rangle^k$

Lettres Grecques

α	Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)
α_m	Angle de mouillage dans la théorie de la nucléation hétérogène
β_T	Coefficient d'expansion thermique (K^{-1})
β_C	Coefficient d'expansion solutal
χ	Fonction indicatrice de phase solide
δ	Epaisseur de l'interface pour les simulations numériques directes (m)
ε	Fraction volumique de phase
ε_{cmax}	Fraction volumique maximale de solide équiaxe avant consolidation
ε_ϕ	Coefficient de gradient de champ de phase pour le calcul de l'énergie libre ($J.m^{-1}$)
ϕ	Champ de phase pour les Simulations Numériques Directes
φ_{lc}	Coefficient d'échange de quantité de mouvement liquide-cristaux ($kg.m^{-3}.s^{-1}$)
Γ	Coefficient de Gibbs-Thompson ($m.K$)
κ	Coefficient de restitution des chocs
λ	Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
λ_p	Libre parcours moyen (m)
λ_1	Espacement primaire interdendritique (m)
λ_2	Espacement secondaire interdendritique (m)
Λ_{eff}	Tenseur de conductivité thermique macroscopique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
μ	Viscosité ($Pa.s^{-1}$)
μ_c^*	Viscosité effective solide ($Pa.s^{-1}$)
μ_ϕ	Coefficient de mobilité du champ de phase ($m.s.kg^{-1}$)
ρ	Masse volumique ($kg.m^{-3}$)
σ	Tenseur des efforts (Pa)
σ_s	Tension de surface ($N.m^{-1}$)
$\sigma_{contact}$	Contribution des collisions au tenseur des efforts dans le solide
τ	Taux de changement de phase (s^{-1})
θ	Ecart type de la distribution statistique de Maxwell des vitesses

Lettres Romaines

A_k	Densité volumique d'aire interfaciale enveloppe (m^{-1})
c	Indice de phase solide équiaxe
C	Concentration massique en soluté
C_p	Capacité thermique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
C_D	Coefficient de trainée ($kg.m^{-3}.s^{-1}$)
$coll$	Indice se rapportant à des termes de collision
d_p	Diamètre des particules dans la théorie cinétique des milieux granulaires (m)
d_0	Longueur de pointe de dendrite (m) dans les zones dendritiques
D	Diffusion d'espèces ($m^2.s^{-1}$)
\mathbf{D}	Tenseur de diffusion dispersion ($m^2.s^{-1}$)
e	Energie volumique ($J.m^{-3}$)
eut	Indice se rapportant à une composition eutectique d'un mélange binaire
E	Energie (J)
f	Energie libre volumique de Helmholtz ($J.m^{-3}$)
f_ϕ	Fonction de pondération pour le calcul de la moyenne pour la méthode de champ de phase
F	Energie libre de Helmholtz (J)
\mathcal{F}	Flux d'énergie surfacique pour les simulations numériques directes ($W.m^2$)
g	Enthalpie libre volumique ($J.m^{-3}$)
G	Enthalpie libre (J)
\vec{g}	Gravité ($m.s^{-2}$)
H	Enthalpie (J)
$h_{m_{lc}}$	Coefficient d'échange interfacial d'espèce, coté liquide, avec le solide équiaxe (s^{-1})
$h_{m_{ls}}$	Coefficient d'échange interfacial d'espèce, coté liquide, avec le solide colonnaire (s^{-1})
h_{m_s}	Coefficient d'échange interfacial d'espèce du solide colonnaire (s^{-1})
h_{m_c}	Coefficient d'échange interfacial d'espèce du solide équiaxe (s^{-1})
\vec{J}^i	Flux diffusif de l'espèce i ($kg.m^{-2}.s^{-1}$)
k	Coefficient de partition dans le diagramme de phase
ℓ	Indice de phase liquide
l_ε	Longueur caractéristique de l'échelle microscopique (m)
L_D	Longueur caractéristique de l'échelle macroscopique (m)
m_l	Pente liquidus dans le diagramme de phase (K)
m_s	Pente solidus dans le diagramme de phase (K)
N_{12}	Nombre moyen de collisions par unité de temps pour une particule solide (s^{-1})
n_c	Densité volumique de cristaux (m^{-3})
n_x	Nombre de mailles selon x
n_y	Nombre de mailles selon y
\vec{n}_{ij}	Vecteur unitaire normal à l'interface entre deux phases i et j , pointant vers la phase j
\dot{n}_c	Taux de nucléation de cristaux ($m^{-3}.s^{-1}$)
P	Pression (Pa)
Pe	Nombre de Péclet de l'écoulement
p	Fonction de pondération pour le calcul de l'énergie libre volumique
\dot{Q}	Puissance volumique par unité de masse ($W.kg^{-1}$)

R	Rayon des cylindres enveloppes des dendrites (m)
Re	Nombre de Reynolds de l'écoulement
R_c	Rayon de courbure (m)
R_0	Dimension caractéristique de V_0 (m)
s	Indice de phase solide colonnaire
t	Temps (s)
T	Température (K)
\vec{V}	Vecteur vitesse ($m.s^{-1}$)
V_0	Volume Elementaire Représentatif
\vec{w}	Vitesse relative d'avancée de l'interface $\vec{w} = \vec{w}_{\ell c} - \vec{V}_c$ ($m.s^{-1}$)
$\vec{w}_{\ell c}$	Vitesse d'un point de l'interface solide-liquide ($m.s^{-1}$)



Table des matières

1	Introduction	3
1.1	Contexte de l'étude	5
1.1.1	La Sûreté des Réacteurs Nucléaires	5
1.1.2	Les causes de l'accident de Three Miles Island	5
1.1.3	L'accident de TMI : Phénomènes en cuve	6
1.1.4	Les accidents graves	6
1.1.5	Les enjeux de la thèse dans le contexte de la sûreté nucléaire	8
1.1.6	Les besoins de modélisation	9
1.2	L'équilibre thermodynamique et les changements de phase	10
1.2.1	Généralités	10
1.2.2	Etats d'équilibre dans les mélanges binaires	10
1.2.3	Approche thermodynamique	11
1.3	Phénomènes de solidification	11
1.3.1	Instabilités interfaciales	11
1.3.2	Deux processus de solidification	11
1.3.3	Aspects multi-échelles	14
1.4	Les Modèles de solidification	14
1.4.1	Les phénomènes à modéliser	14
1.4.2	Diverses modélisations	15
1.4.3	Traiter un unique régime de solidification	17
1.4.4	Le difficile couplage entre les deux régimes	17
1.4.5	Travailler à l'échelle microscopique	19
1.5	Objectifs du travail	20
2	Modèle initial de solidification colonnaire	23
2.1	Phénomènes locaux	23
2.2	Modèle macroscopique	25
2.3	Validation	28
2.3.1	Modèle simplifié	28
2.3.2	Validation qualitative du modèle simplifié	29
2.3.3	Discussion sur les termes simplifiés du modèle	39
2.3.4	Etude paramétrique de l'influence de la perméabilité et des coefficients d'échange d'espèces	44
2.4	Conclusion et limitation du modèle colonnaire	49

3	Modèle macroscopique de solidification équiaxe	51
3.1	Stratégie pour le développement du modèle équiaxe	51
3.1.1	Difficultés inhérentes à l'application de la prise de moyenne volumique pour le régime équiaxe	51
3.1.2	Stratégie choisie	52
3.1.3	Autres hypothèses	53
3.2	Equations de conservation de la masse	55
3.2.1	Equation macroscopique	55
3.2.2	Equation de fermeture	55
3.3	Quantité de mouvement dans la phase liquide	57
3.3.1	Ecriture de l'équation moyennée	57
3.3.2	Fermeture de l'équation moyennée	58
3.4	Equation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase solide . . .	62
3.4.1	Ecriture de l'équation moyennée	62
3.4.2	Fermeture de l'équation moyennée	64
3.5	Equation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation	69
3.5.1	Equation différentielle sur le carré de la vitesse moyenne	69
3.5.2	Equation de conservation de l'énergie cinétique moyenne	70
3.5.3	Bilan de l'équation macroscopique de conservation de l'énergie cinétique d'agitation :	74
3.6	Les régimes de transport de phase solide	75
3.6.1	Régime dilué	75
3.6.2	Régime collisionnel	75
3.6.3	Régime dense	76
3.6.4	Régime consolidé	76
3.7	Un modèle d'écoulement diphasique simplifié	78
3.7.1	Modèle d'écoulement diphasique simplifié	78
3.7.2	Discretisation	79
3.8	Validation du modèle d'écoulement diphasique	82
3.8.1	Un cas test de sédimentation	82
3.8.2	Calcul de sédimentation	82
3.9	Densité de cristaux n_c	85
3.10	Equation de conservation des espèces	87
3.10.1	Equation macroscopique dans la phase solide	87
3.10.2	Modélisation du terme dépendant de l'agitation des cristaux	88
3.10.3	Equation macroscopique dans la phase liquide	88
3.10.4	Fermeture des équations de conservation des espèces :	89
3.10.5	Bilan :	92
3.11	Equation sur le taux de changement de phase	93
3.12	Conservation de l'énergie	94
3.12.1	Equation dans la phase solide	94
3.12.2	Modélisation des termes dépendants de l'agitation de la phase solide . . .	95
3.12.3	Equation dans la phase liquide	95
3.12.4	Problèmes de fermeture pour les fluctuations de l'enthalpie	96

3.12.5	Bilan	99
3.13	Bilan du système complet d'équations macroscopiques	100
3.14	Discrétisation et implémentation numérique d'un modèle simplifié	102
3.14.1	Un modèle simplifié	102
3.14.2	Discrétisation du modèle complet	102
3.15	Validation du modèle de solidification équiaxe	105
3.15.1	Expérience de Wang & Beckermann en $NH_4Cl - H_2O$	105
3.15.2	Calcul de l'expérience de Wang & Beckermann	105
3.15.3	Expérience de Wang en $Al(4\%) - Cu$	110
3.15.4	Calcul de l'expérience en $Al(4\%) - Cu$	110
4	Transition colonnaire-équiaxe	117
4.1	Modéliser la surfusion avec le modèle colonnaire	117
4.1.1	Le problème posé par le modèle colonnaire initial	117
4.1.2	Proposition pour intégrer la cinétique de solidification	118
4.1.3	Modéliser l'évolution de la densité d'aire interfaciale	118
4.1.4	Intégrer l'aspect cinétique	122
4.1.5	Implémentation numérique	123
4.2	Calculs réalisés	123
4.2.1	Premiers calculs pour les régimes couplés	123
4.2.2	Calculs en deux dimensions	126
4.2.3	Test de convergence au maillage	129
4.2.4	Sensibilité au paramètre d_0	130
4.2.5	Importance des critères de convergence	131
4.3	Conclusion de l'étude de la transition colonnaire-équiaxe	131
5	Vers la perspective de simulations numériques directes de croissance de cristaux	133
5.1	Modèle de champ de phase	134
5.1.1	Equation de conservation des espèces	135
5.1.2	Equation de conservation de l'énergie	136
5.1.3	Equation sur le champ de phase	136
5.1.4	Analyse de l'équation sur le champ de phase	138
5.2	Implémentation numérique	139
5.2.1	Discrétisation en Volumes Finis	139
5.2.2	Résolution du système	139
5.2.3	Implémentation	140
5.2.4	Introduction d'une perturbation	140
5.3	Premières applications	140
5.3.1	Calculs en 1 dimension pour un corps pur	140
5.3.2	Premiers calculs en 2 dimensions	143
5.4	Limitation du modèle et alternative proposée	146
5.4.1	Limitation des possibilités de simulation	146
5.4.2	Une alternative pour calculer à de plus grandes échelles	146
5.5	Calculs 2D	147

5.5.1	Influence de l'épaisseur de l'interface	149
5.5.2	Calcul de solidification dirigée	150
5.6	Conclusion de l'étude	152
6	Conclusion	155
A	Techniques de changement d'échelle dans les milieux diphasiques	159
A.1	De nombreuses techniques de changement d'échelle	159
A.1.1	Méthodes d'homogénéisation	159
A.1.2	Autres méthodes statistiques	159
A.2	La méthode de prise de moyenne volumique	160
A.2.1	Hypothèses	160
A.2.2	Théorèmes	161
A.2.3	Contraintes d'échelle	161
A.2.4	Transport convectif	162
A.2.5	Transport convectif dans la phase solide	163
B	Prise de moyenne temporelle et combinaison des opérateurs de moyenne	165
B.1	Principe	165
B.2	Théorèmes de permutation	167
B.3	Combinaison des deux opérateurs de moyenne	167
B.4	Les implications pour notre travail de modélisation	168
B.4.1	Modèle colonnaire	168
B.4.2	Modèle équiaxe	168
B.4.3	Transport convectif dans la phase solide	168
C	Echange de quantité de mouvement à l'interface solide liquide	171
C.1	Modélisation de la perméabilité	171
C.2	Modélisation de la traînée	172
C.2.1	Coefficients de traînée sur une sphère	173
C.2.2	Modélisations utilisées dans des modèles macroscopiques diphasiques	173
C.2.3	Modélisations utilisées dans le cadre de la solidification équiaxe	175
D	Echanges de quantité de mouvement au sein d'une phase dispersée	177
D.1	Corrélations utilisées dans la modélisation de la solidification équiaxe	178
D.2	Modèles utilisés dans d'autres contextes	178
E	Théorie cinétique des milieux granulaires	181
E.1	Problématique	181
E.2	Théorie cinétique des milieux granulaires	181
E.2.1	Quelques relations fondamentales	181
E.2.2	Développements des équations d'évolution	183
E.3	Equation de conservation de la quantité de mouvement	184
E.3.1	Fermeture du terme de dispersion	184
E.3.2	Fermeture du terme de collision	184

E.3.3	Equation de conservation de l'énergie cinétique turbulente	185
F	Modélisation des chocs	187
F.1	Libre parcours moyen et nombre de chocs	187
F.2	Variation de vitesse lors d'un choc	188
F.3	Energie perdue lors d'un choc	189
G	Modélisation de la nucléation de cristaux	191
G.1	La théorie Classique de la nucléation	191
G.1.1	Nucléation homogène	192
G.1.2	Le cas particulier de la nucléation hétérogène	193
G.2	Les évolutions de la théorie classique	194
G.3	Modélisations utilisées dans les modèles de solidification	194
H	Méthode de champ de phase	197
H.1	Principe	197
H.2	L'énergie libre : une fonction d'état pour représenter les états d'équilibre	197
H.3	Equation de transport du champ de phase	199
I	Une application au contexte de la sûreté des réacteurs : Calcul des essais	
	Rasplav	201
I.1	Le programme expérimental Rasplav	201
I.2	La Septième série d'essais	201
I.2.1	Principe de l'expérience	201
I.2.2	Mélange expérimental	202
I.2.3	Les données sur la septième série d'essais	202
I.3	Calculs réalisés avec le modèle colonnaire simplifié	204

Chapitre 1

Introduction

Nous sommes tous familiers des phénomènes de solidification, puisque nous les expérimentons, bien involontairement, lorsque nous utilisons nos congélateurs, ou lorsque nous sortons par de froides journées hivernales. Malgré son apparente simplicité, cette transformation est le sujet de nombreuses recherches dans différentes disciplines des sciences physiques : Thermodynamique, chimie, physique des transferts... La solidification résulte de modifications des variables thermodynamiques (Température, pression, composition...), qui conduisent à faire évoluer l'état d'équilibre de la matière de l'état liquide à l'état solide. A l'échelle atomique, cette transformation correspond à une organisation en réseau cristallin des molécules, avec création de liaisons intermoléculaires fortes. Cette organisation induit des changements de propriétés physiques du matériau, dont la plus remarquable est le passage d'un comportement visqueux, vers un comportement rigide.

Sur terre, l'eau, qui est la molécule la plus répandue, change d'état à la température de 0°C , à pression ambiante. Les variations climatiques induisent donc de nombreuses transformations liquide / solide dans la nature (formations d'iceberg, de flocons de neige, de grêle, de gel) qui ont une influence directe sur notre vie (hydrologie, climat,...). Les autres molécules ayant des températures de changement d'état très élevées (roches 800°C , métaux 1200°C ...), ou très faibles (air -210°C), il est difficile d'observer naturellement cette transformation, excepté lors d'éruptions volcaniques, qui font jaillir à température ambiante, un magma chaud (1200°C), habituellement retenu dans les profondeurs de la terre.

Dans l'industrie, ce changement de phase est exploité dans de nombreuses applications : fabrication de pièces, élaboration de matériaux performants, réalisation de soudures. Tous les types de matériaux sont manipulés (verres, plastiques, métaux), et différents procédés de refroidissement sont employés (coulée continue, trempe, moulage). L'étape de solidification est particulièrement importante, car elle détermine la qualité des produits réalisés et des défauts créés lors du processus de solidification peuvent altérer des propriétés physiques telle que la résistance mécanique. Les travaux de recherche expérimentaux et numériques, dans ce contexte sont nombreux et visent à améliorer les connaissances et les procédés industriels.

Dans le contexte de la *sûreté des réacteurs nucléaires*, et plus particulièrement les recherches sur les accidents graves de réacteurs à eau sous pression, qui mènent à la fusion du coeur du réacteur, la thématique de la solidification de mélanges multiconstituants apparaît dans différentes étapes d'un scénario accidentel. En particulier, la modélisation de l'évolution des matériaux fondus dans le coeur est très importante pour évaluer le risque de contamination lors

d'un accident grave, mais aussi améliorer la conception des réacteurs de nouvelle génération.

Le premier chapitre de cette thèse sera consacré à une introduction qui détaillera le contexte de cette étude et l'intérêt d'un tel travail pour la sûreté des réacteurs nucléaires. Nous préciserons par la suite la problématique de la solidification des matériaux multiconstituants, avant de faire une synthèse des connaissances sur le sujet. Enfin, nous présenterons les objectifs de ce travail.

1.1 Contexte de l'étude

1.1.1 La Sûreté des Réacteurs Nucléaires

L'option nucléaire a été privilégiée en France, pour la production d'électricité civile. A l'heure actuelle, 58 réacteurs répartis sur l'ensemble du pays permettent de fournir jusqu'à 60 GW d'énergie, ce qui correspond à environ 70% des besoins en électricité.

Tout l'enjeu de la sûreté des réacteurs est de s'assurer que les produits radioactifs contenus dans le coeur restent confinés dans la centrale, et ne contaminent pas l'environnement. Pour cela, trois barrières permettent d'isoler les radio-nucléides : la gaine du combustible en zirconium, le circuit primaire en acier inoxydable et l'enceinte du bâtiment réacteur en béton armé.

Par ailleurs, la conception et le fonctionnement des installations nucléaires suivent le concept de défense en profondeur qui vise non seulement à réduire les risques d'accidents, mais aussi à étudier ces hypothétiques événements, afin de mettre en place les dispositifs les plus efficaces pour limiter leurs conséquences [95].

Dans l'approche française, dite déterministe, les Etudes Probabilistes de Sûreté (EPS) visent à évaluer la probabilité d'occurrence des accidents et à déterminer les points faibles dans la sûreté de la centrale. Pour cela, des scénarios postulant des défaillances (éventuellement multiples) dans la centrale sont étudiées ainsi que les conséquences sur la sécurité dans la centrale. Les codes de calcul d'accidents graves (tel ASTEC ou Icare-Cathare) développés à la Direction de Prévention des Accidents Majeurs de l'IRSN permettent de réaliser ces études [47].

A l'heure actuelle, une EPS de niveau 1 a porté sur la probabilité de fusion du coeur. L'étude a montré que la probabilité de fusion du coeur est de 10^{-5} par an et par réacteur. Une EPS de niveau 2 est en cours de réalisation, et vise à calculer la probabilité de relâchement de matériaux radioactifs à l'extérieur de la centrale [95].

1.1.2 Les causes de l'accident de Three Miles Island

Le 28 mars 1979, la centrale nucléaire de Three Miles Island (TMI), aux Etats-Unis, est le lieu de l'un des plus graves accidents nucléaires [28]. Vers 4h du matin, la vanne du pressuriseur du circuit primaire s'ouvre pour palier une surpression dans ce circuit. Elle reste bloquée en position ouverte, et l'eau s'en échappe lentement (60 tonnes par heures). La pression diminue anormalement dans le circuit primaire. Un tel événement est généralement sans gravité car les procédures de secours entrent en action :

- Les barres de contrôles chutent dans le coeur du réacteur et stoppent la réaction nucléaire en chaîne. L'assemblage combustible génère alors une puissance résiduelle due aux produits de fissions, qui ont été formés au cours du fonctionnement normal du réacteur. A TMI, cette puissance était de quelques dizaines de Mégawatts.
- Les circuits de secours entrent automatiquement en action, pour compenser les pertes en eau. L'eau du circuit primaire, si elle est maintenue en quantité suffisante, suffit pour évacuer la puissance résiduelle des produits de fission.

Ce 28 mars, les dispositifs de secours ont correctement rempli leur rôle. Malheureusement, les opérateurs pilotant le réacteur ne détectent pas la fuite et décident de fermer l'injection d'eau de secours pour ne pas risquer la surpression. Cette accumulation d'événements va mener à la fusion d'une partie du coeur du réacteur [95]. Nous décrirons dans le prochain paragraphe, les

phénomènes qui ont eu lieu dans la cuve du réacteur et comment la situation a été finalement maîtrisée. Nous montrerons ensuite que des conditions plus défavorables auraient pu avoir des conséquences graves sur l'environnement.

1.1.3 L'accident de TMI : Phénomènes en cuve

La chute de pression dans le circuit primaire entraîne la vaporisation de l'eau au contact des barres de combustible. Les échanges thermiques entre un assemblage combustible et la vapeur d'eau ne sont pas suffisant pour empêcher leur température d'augmenter. Lorsque la température de $1300K$ est atteinte, la réaction d'oxydation de la gaine en Zircaloy avec la vapeur d'eau devient importante [28]. Cette réaction est très exothermique et contribue considérablement à chauffer les matériaux du coeur. Une couche de zircone (ZrO_2) se forme sur les gaines de combustibles et les fragilise, le zirconium sous forme oxyde ayant une résistance mécanique moindre. Par ailleurs cette réaction dégage de l'hydrogène gazeux, qui peut exploser en cas de mélange avec l'air dans l'enceinte [28].

Soumises à de fortes contraintes thermiques, les gaines de combustible se dilatent, se déforment, se fissurent et éclatent. Puis, lorsque la température atteint $2500K$, il y a fusion des matériaux du coeur. Il se forme progressivement un mélange liquide constitué d' UO_2 , de Zr et de ZrO_2 . Ce mélange multiconstituant est appelé corium. Dans un premier temps, les matériaux fondus forment un bain, retenu par une croûte solide dans le coeur du réacteur [185]. En augmentant de volume, il progresse vers les parties inférieures et extérieures du coeur. La chute éventuelle de pastilles de combustible, de morceaux de gaine ou de pièces métalliques constituant la structure du coeur, crée en surface du bain, un lit de débris [28]. C'est un mélange de liquide et de morceaux solides, ayant des tailles caractéristiques de l'ordre du millimètre. Dans le réacteur de TMI, 62 tonnes (dont 45% du combustible du coeur) de corium s'est formé. Une partie du bain s'est relocalisée en fond de cuve, en coulant à travers la structure du coeur, comme cela est indiqué sur la figure 1.1.

Les opérateurs rétablissent l'injection d'eau de secours $3h$ après le début de l'accident. Il faudra alors $12h$ pour refroidir les matériaux du coeur. Une faible quantité de matériaux radioactifs s'est finalement échappée du circuit primaire par la vanne ouverte. Une infime partie a été rejetée à l'extérieur [95].

1.1.4 Les accidents graves

L'accident de TMI n'a pas eu de conséquence majeure sur l'environnement, mais si le scénario avait été plus défavorable (par exemple si les opérateurs avaient tardé à rétablir l'injection d'eau de secours), les conséquences auraient pu être beaucoup plus graves. Nous allons maintenant décrire la suite de la séquence accidentelle qui aurait pu avoir lieu dans le réacteur de TMI.

Une grande quantité de corium peut se relocaliser en fond de cuve. L'interaction avec l'eau en fond de cuve fragmente le jet de corium et crée un lit de débris (de taille millimétrique). Ce lit de débris s'assèche, et si de l'eau n'est pas injectée, les débris fondent pour former un bain très difficile à refroidir, car compact et inaccessible à l'eau. La cuve subit alors des contraintes thermiques très importantes qui mènent à une ablation superficielle et à sa rupture. Le corium peut alors s'écouler à l'extérieur de la cuve. La seconde barrière de protection est franchie. Lorsqu'il est hors de la cuve, deux menaces pour l'environnement sont à redouter :

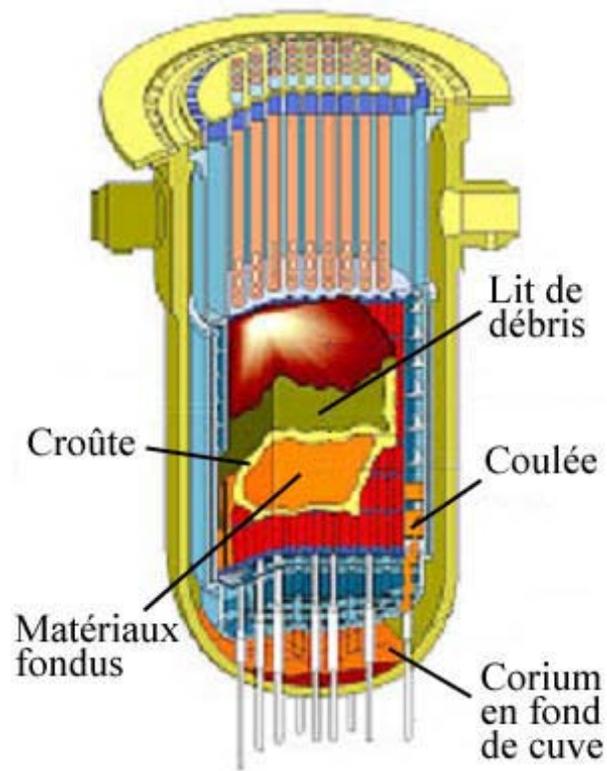


FIG. 1.1: L'accident de TMI, les phénomènes en cuve

- La première est que le corium, traverse l'enceinte de la centrale. Dans ce cas, les matériaux radioactifs se retrouvent dans l'environnement et contaminent les sols (Notons que la dernière génération de réacteur (EPR) a été conçue avec un collecteur de corium, qui doit l'étaler, et le refroidir par circulation d'eau) [95].

- Le second risque est que certains produits de fission (tels l'iode ou le ruthénium) sont très volatils. Si un relâchement des gaz de l'enceinte de la centrale est nécessaire (par exemple en cas de surpression), ces molécules peuvent être entraînées à l'extérieur avec un risque de contamination de l'environnement [95].

1.1.5 Les enjeux de la thèse dans le contexte de la sûreté nucléaire

A l'heure actuelle, dans les codes de calculs d'accidents graves, l'évolution thermique en fond de cuve est traitée par des corrélations reliant les flux de chaleur entre le corium et la cuve au nombre de Rayleigh thermique du bain de corium [47]. Ces corrélations ne tiennent pas compte du caractère multiconstituant du mélange, ni des croûtes solides qui peuvent se former contre la paroi de la cuve, comme nous pouvons le voir sur la figure 1.2. Pourtant, les effets suivants peuvent être observés :

- Les inhomogénéités d'espèces modifient la convection dans le bain, les variations de densité solutales s'ajoutant aux variations thermiques.
- La croûte solide ralentit l'écoulement contre la cuve lorsqu'elle est poreuse ou lorsqu'elle présente une surface rugueuse.
- Les températures de solidification dépendent de la composition, ce qui peut modifier la température de formation des croûtes.

Ces effets peuvent avoir une importance considérable dans la cinétique des phénomènes qui interviennent en cuve, et qui déterminent le lieu et le délai de rupture de la cuve, ainsi que la composition et la quantité de matière qui s'échappe.

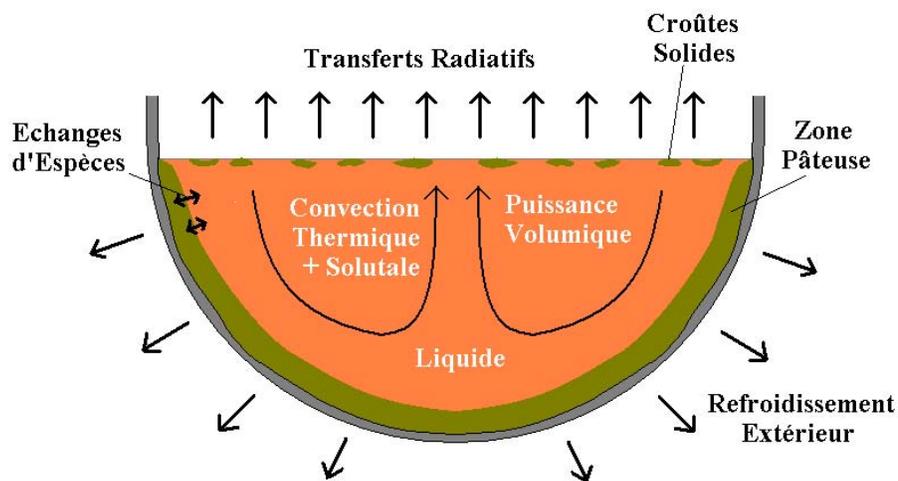


FIG. 1.2: Corium en fond de cuve, phénomènes de transferts

Afin de réaliser des EPS fiables (notamment pour l'EPS de niveau 2), une modélisation plus précise du comportement du corium en cuve est nécessaire. Un modèle complet permettrait

d'étudier des situations représentatives et obtenir des corrélations sur les nombres de Rayleigh thermiques et solutaux, utilisables dans les codes de calcul d'accidents graves. Eventuellement, une version simplifiée du modèle complet pourrait être implémentée dans l'un des codes de calculs.

1.1.6 Les besoins de modélisation

Le corium contient des composés oxides (UO_2 et ZrO_2), et métalliques (U , Zr et Fe), qui sont issus des pastilles combustibles et leurs gaines, auxquels se rajoutent les pièces en acier inoxydable qui supportent le coeur du réacteur et les matériaux des barres de contrôle. La modélisation du corium en fond de cuve nécessite de représenter les changements de phase, la convection et les phénomènes de transport d'espèces et d'énergie dans ces matériaux multiconstituants.

L'ordre de grandeur du nombre de Rayleigh thermique du bain de corium peut atteindre 10^{16} , et correspond à des écoulements turbulents. Modéliser la turbulence dans le coeur du bain est nécessaire pour représenter fidèlement les phénomènes.

Lors de la situation de corium en fond de cuve, la puissance des produits de fission est évacuée par rayonnement au sommet du bain et par la cuve en acier. Le premier mode de refroidissement est propice à l'apparition d'une zone en surfusion au sommet du bain avec des croûtes mobiles (voir figure 1.2). Le second mode de refroidissement peut induire l'apparition d'une zone pâteuse (mélange solide-liquide, avec un solide poreux et immobile) au contact de la cuve (voir figure 1.2).

Dans le contexte du dimensionnement des cuves de réacteurs, qui doivent être capables de retenir le corium en cas d'accident grave, une hypothèse de front plan a été choisie par Seiler & Froment [150], pour modéliser le corium en fond de cuve. Ces auteurs démontrent qu'après une période transitoire (d'environ 20 minutes), dans le bain de corium, la vitesse de déplacement de l'interface solide liquide est si faible que l'on est assuré d'avoir un front plan. Ils supposent que les concentrations liquides sont homogènes dans tout le domaine, ce qui implique que l'interface entre les deux phases se trouve superposée à l'isotherme de la température de liquidus. Ces hypothèses nous semblent difficiles à justifier, notamment dans la période transitoire initiale. Par ailleurs, si une zone pâteuse se forme dans les premières minutes, il est possible que celle-ci persiste. Nous pensons donc qu'il est judicieux dans le contexte de la modélisation des accidents graves de disposer d'un modèle plus général que celui du front plan.

Il est donc nécessaire d'étudier les processus de solidification, avec et sans transport de solide, car ils induisent des phénomènes de transferts et des flux d'énergie sur la cuve différents.

[150]

1.2 L'équilibre thermodynamique et les changements de phase

1.2.1 Généralités

La solidification d'un magma lors d'une irruption volcanique ou d'une pièce en métal fondu sortant d'un four et brusquement trempée, résulte du changement de température que subissent les matériaux. La température, comme la pression, le volume massique ou la composition (pour les mélanges multiconstituants) est une grandeur thermodynamique qui fixe l'état d'équilibre d'un matériau. Cela implique que, pour des conditions thermodynamiques données, il existe un unique état d'équilibre, pour lequel le matériau n'évolue pas (grandeur thermodynamiques constantes). Au contraire s'il est dans un autre état (on dit état métastable), il est susceptible de subir des transformations tels que des changements de phase, lui permettant de revenir dans un état d'équilibre [86].

1.2.2 Etats d'équilibre dans les mélanges binaires

Dans le cas d'un mélange binaire, un diagramme de phase permet de représenter l'ensemble des états d'équilibre du mélange en fonction de sa température et sa composition. On suppose alors que la pression et le volume massique sont constants. Un exemple de diagramme caractéristique, présentant un point eutectique est représenté à la figure 2.2. La zone supérieure correspond au domaine d'équilibre de la phase liquide, la zone inférieure à celui de la phase solide. La zone intermédiaire correspond à l'existence simultanée des deux phases, aux compositions imposées par les courbes liquidus et solidus [86].

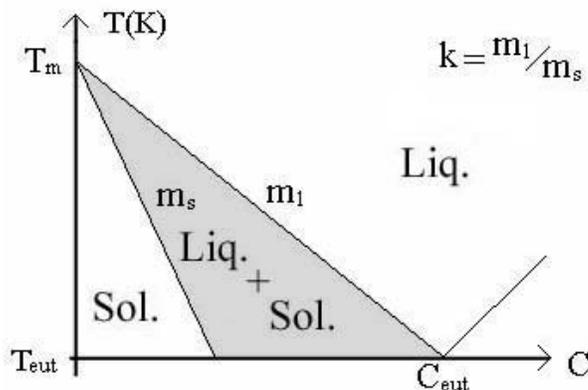


FIG. 1.3: Diagramme de phase d'un mélange binaire eutectique. m_l : pente liquidus ; m_s : pente solidus

Dans l'étude des mélanges binaires, le diagramme de phase permet aussi, dans le cas d'un matériau métastable, de mesurer l'écart à l'équilibre du système.

1.2.3 Approche thermodynamique

Certaines fonctions d'état thermodynamiques permettent de prévoir les évolutions d'un système fermé. Pour les transformations à volume constant, et température constante (tels que les changements de phase), le système évolue de façon à minimiser son énergie libre totale (second principe de la thermodynamique). L'état d'équilibre de la matière est donc celui qui présente une énergie libre minimale [86].

1.3 Phénomènes de solidification

1.3.1 Instabilités interfaciales

Dans un mélange subissant un changement de phase, l'interface solide-liquide est la zone intermédiaire entre les derniers atomes constituant le réseau cristallin, et les premiers atomes de la phase liquide. L'interface est donc une surface très fine dont l'épaisseur est celle de quelques atomes du matériau observé. La forme de l'interface est guidée par la compétition entre les forces de déséquilibre et les forces de tension capillaire. Si les secondes sont prépondérantes, le front solide est régulier, alors que dans le cas contraire, des instabilités, appelées *dendrites* sont susceptibles d'apparaître. L'image la plus représentative, est celle de flocons de neige présentant des branches partant dans de nombreuses directions (voir image 1.5). Les tailles caractéristiques de ces structures dépendent des propriétés des mélanges étudiés, et des conditions de refroidissement. Généralement, elles présentent des espacements primaires interdendritiques de l'ordre de plusieurs centaines de micromètres, et des branches secondaires présentant des espacements de l'ordre de la dizaine de micromètres [86].

1.3.2 Deux processus de solidification

Les instabilités que nous avons décrites au paragraphe précédent, peuvent intervenir dans deux régimes de solidification.

Croissance colonnaire

Ce processus de solidification intervient lorsque le liquide est refroidi par les parois du récipient qui le contient. La phase solide est ancrée à la paroi froide et progresse vers le coeur de la phase liquide [86]. Les dendrites formées dans ce processus sont immobiles, longues (parfois quelques centimètres), et créent une zone pâteuse diphasique (dite *zone de croissance dendritique*) qui est généralement assimilée à un milieu poreux. L'axe principal des dendrites est aligné avec le gradient de température, dirigé de la phase solide vers la phase liquide. De ce fait, les instabilités qui apparaissent à l'interface sont solutales car les phénomènes thermiques ont un effet stabilisant sur l'interface (une excroissance solide à l'interface rencontre un liquide avec une température chaude, qui la fait disparaître).

Les instabilités colonnaires s'observent uniquement dans les mélanges multiconstituants. Dans le cas d'un mélange binaire, le solide rejette du soluté, ce qui diminue la température de solidification du liquide environnant. Une excroissance à l'interface est instable car elle rencontre plus loin, un liquide peu enrichi, qui solidifie facilement. Ceci peut être observé à la figure 1.4, où

le champ de concentration dans un alliage Al(3 wt%) Cu en cours de solidification est présenté. On y voit le liquide interdendritique enrichi qui met du temps pour solidifier.

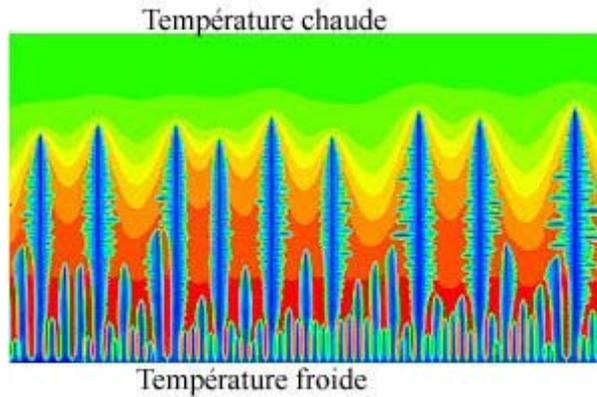


FIG. 1.4: Croissance colonnaire de dendrites pour un mélange Al(3 wt%) Cu, calcul de Dong & Lee [40] : Le flux de chaleur est extrait par la paroi du bas. Les couleurs correspondent au champ de concentration (dans le solide : 1%, dans le liquide interdendritique : 10 %)

Croissance équiaxe

Ce processus de solidification intervient dans un liquide présentant une surfusion (la température du liquide est inférieure à sa température de solidification). Il est alors possible de voir germer des cristaux dans le coeur de la phase liquide. Ceux-ci croissent de façon radiale, et produisent des cristaux axisymétriques (à l'image des flocons de neige). La particularité de ce second processus de solidification est que les cristaux peuvent être emportés par l'écoulement liquide ce qui conduit à une relocalisation du solide [86].

Dans ce cas, le gradient de température est dirigé de la phase liquide vers la phase solide. Les instabilités à l'origine des dendrites peuvent être thermiques ou solutales [86]. L'image représentée à la figure 1.5, montre un flocon de neige, qui illustre bien le type structures qui peuvent être observées.

Transition colonnaire-équiaxe

Lors de la croissance colonnaire d'un mélange multiconstituant, la redistribution des espèces dans le liquide peut conduire à générer des zones sous-refroidies en amont de la zone interdendritique. Il est donc possible de voir des cristaux équiaxes apparaître et une coexistence des deux régimes, ce qu'on appelle transition colonnaire-équiaxe [11]. A titre d'exemple, nous présentons à la figure 1.6 un calcul réalisé par Dong & Lee [40], montrant la transition d'un régime vers l'autre lors de la solidification d'un mélange Al(3 wt%) Cu.

Les phénomènes de transfert (d'énergie et d'espèce) étant assez différents pour les deux régimes, il est très important de pouvoir déterminer lequel des deux est prépondérant en tout point du domaine. Cela nécessite de représenter correctement la croissance de la zone interdendritique, mais aussi la surfusion en amont. La transition entre les deux régimes est un sujet d'étude très complexe qui reste encore ouvert.



FIG. 1.5: Un exemple de croissance équiaxe de dendrites pour un corps pur (eau) : Image d'un flocon de neige présentant 6 branches, issue du site internet du "California Institute of Technology" (<http://www.its.caltech.edu/~atomic/snowcrystals/>)

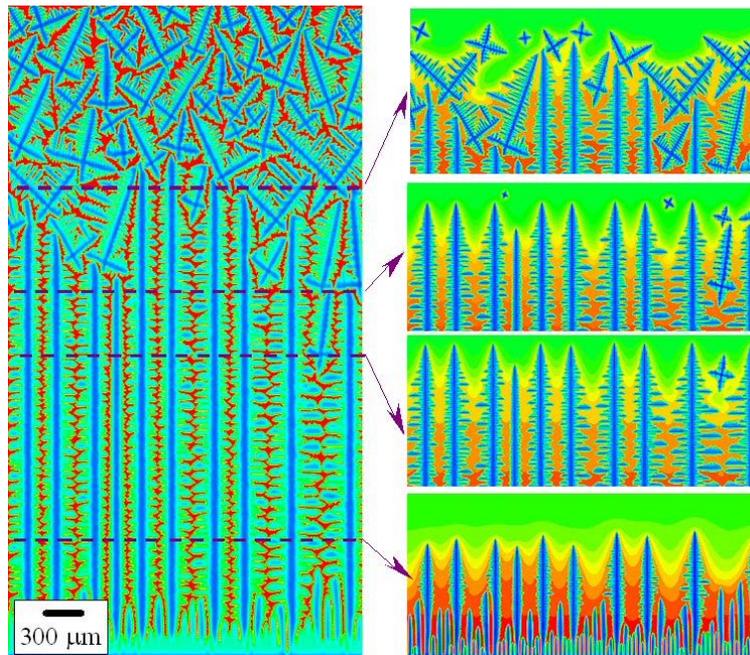


FIG. 1.6: Croissance couplée colonnaire-équiaxe dans un mélange Al(3 wt%) Cu, calcul de Dong & Lee [40] : Le flux de chaleur est extrait par la paroi du bas. Les couleurs correspondent au champ de concentration (dans le solide : 1%, dans le liquide interdendritique : 10 %) ; Le régime colonnaire initial est progressivement remplacé par un régime équiaxe

1.3.3 Aspects multi-échelles

Nous avons décrit au paragraphe précédent le mécanisme de déstabilisation de l'interface solide-liquide. Les structures générées ont des tailles caractéristiques de l'ordre de la dizaine de micromètres. Ces tailles caractéristiques sont très inférieures à la dimension caractéristique des volumes qui sont solidifiés (dans le cas du corium en cuve, c'est un bain de 3 à 4 mètres de large). Le caractère multi-échelle des phénomènes de solidification est mis en évidence par la comparaison de ces deux échelles extrêmes. Bien que les échelles soient clairement séparées, les phénomènes aux deux échelles interagissent [24, 61] :

- les conditions locales de température et concentration, sont très dépendantes de l'écoulement à grande échelle, qui distribue les espèces et l'énergie.
- les conditions locales fixent la cinétique de croissance de l'interface, sa déstabilisation, et la forme des cristaux.
- enfin, la forme des cristaux elle-même influence l'écoulement.

Une bonne modélisation à grande échelle nécessite de bien modéliser les phénomènes à l'échelle inférieure. Dans ce contexte, il est très fructueux de travailler aux deux échelles en parallèle.

1.4 Les Modèles de solidification

1.4.1 Les phénomènes à modéliser

Ici, notre objectif est de rappeler la chronologie des phénomènes, afin de cibler les besoins de modélisation.

- Dans les premiers instants, le bain est totalement liquide, et seuls les transferts de *quantité de mouvement* et d'*énergie* interviennent.
- Les premiers cristaux apparaissent dans les zones froides (le long des parois en général), où ils s'attachent, et génèrent la croissance d'une zone dendritique colonnaire. Les *changements de phase*, ainsi que les *transferts d'espèces* dans chaque phase doivent être modélisés [24, 61]. Par ailleurs, la présence de la zone dendritique, assimilée à un milieu poreux, influence les échanges de quantité de mouvement, d'espèce et d'énergie au sein de ce milieu diphasique [121, 60]. C'est à ce stade qu'intervient le couplage entre les phénomènes aux différentes échelles, puisque les transferts macroscopiques dépendent des structures microscopiques.
- Le liquide en pointe de dendrites présente une *surfusion*, dépendant de la cinétique de croissance des dendrites et de la cinétique de refroidissement [86].
- Dans ces zones sous-refroidies, la *nucléation* des cristaux équiaxes intervient. Leur *croissance* et leur *transport* pilotent la répartition de la phase solide, jusqu'à ce que leur taille soit telle qu'ils s'agglomèrent [86, 175, 176].
- Une attention particulière doit être prêtée au transport de cristaux. Il est probable que

différents régimes d'écoulements soient observables en fonction de la taille et la densité des cristaux. Les transferts de quantité de mouvement entre les deux phases [108, 175, 176] (*trainée*) et au sein de la phase solide (*chocs, frottements...*) [54, 73, 74] sont prépondérants dans les mécanismes de déplacement du solide.

1.4.2 Diverses modélisations

Approche multidomaines

Les premiers modèles de solidification sont qualifiés de *multidomaines* et consistent à distinguer chaque phase : liquide et solide. De tels modèles ont été présentés par Szekely & Jassal [162], Ridder & al. [143], ou Worster [184]. Cette approche se prête bien aux cas de solidification présentant des interfaces planes ou lorsque l'on travaille à des échelles microscopiques. La difficulté réside dans le suivi de l'interface, ce qui est très délicat à réaliser sur des maillages fixes. Par ailleurs, lorsque l'interface se déforme, ces modèles montrent des limites [123], du fait de la formation d'une zone diphasique.

L'alternative est d'utiliser des *modèles continus* qui utilisent un système d'équations valable dans tout le domaine (solide, liquide, zone diphasique) que l'on peut résoudre plus aisément sur des maillages fixes :

Approche continue : Théorie des mélanges

Les *théories de mélange*, représentent le mélange comme une seule phase dont les propriétés dépendent de la fraction solide. Elle a été appliquée dans le contexte de la solidification, par Voller & Prakash [168, 169], Beckermann & Viskanta [15, 16], Bennon & Incropera [20, 21], Prescott & al. [125, 124, 126], Felicelli & al. [44], Ni & Incropera [109, 110], ou Krane & Incropera [85, 84]. Cette méthode a permis d'obtenir d'intéressants résultats. Elle a en particulier permis de prévoir la formation de canaux enrichis en soluté dans les zones interdendritiques (*freckles*) et les ségrégations dites A-segregate (canaux inclinés enrichis en soluté) [124, 126]. Les faiblesses de l'approche sont l'impossibilité d'introduire les échanges interfaciaux et l'absence d'équations de transport propres à chaque phase. Pour obtenir les champs intrinsèques à une phase donnée, par exemple les concentrations, il faut avoir recours à des hypothèses telle que l'équilibre chimique. De même, le calcul du taux de changement de phase nécessite l'emploi de micromodèles analytiques reliant la température et la concentration à la fraction solide. Ces relations sont développées en faisant des hypothèses de transport local d'espèces du type *règle du levier* (diffusion infinie dans les deux phases) ou *Scheil* (diffusion nulle dans le solide) [49, 44]. Rappaz & Thevoz [139, 140] et Flood & Hunt [49] ont proposé des micro-modèles analytiques qui peuvent être utilisés dans les modèles macroscopiques.

Certains modèles, dits *micro-macro modèles*, couplent un modèle macroscopique avec un modèle microscopique [140, 138, 164, 141]. Ce dernier est résolu avec un pas de temps inférieur au pas de temps macroscopique. Ces méthodes permettent de réaliser des calculs rapides, tout en introduisant une dépendance aux phénomènes intervenant à la plus petite échelle.

Approche continue : Modèles multiphases

Les *approches à deux phases* sont plus physiques car elles visent à écrire des équations de transport sur chacune des phases. Etant donné que la structure de la zone interdendritique présente des similarités avec les milieux poreux, les techniques de changement d'échelles, utilisées dans ce contexte, et décrites dans l'annexe A, peuvent être utilisées. La prise de moyenne volumique [183] des équations de conservation microscopiques a été la plus employée. Cette méthode présente la particularité d'introduire explicitement, à l'échelle macroscopique, la dépendance aux structures locales, et permet la détermination des propriétés effectives de transport [52].

Les modèles à deux phases supposent souvent que les températures moyennes dans chaque phase sont égales. Ni & Beckermann [108] ont développé un modèle à deux températures et ont montré sur des calculs d'un alliage $Al - 4\%Cu$ que les températures de chaque phase étaient proches. Ils ont expliqué cela par le fait que les nombres de Lewis des alliages métalliques couramment utilisés sont grands, ce qui implique que le temps caractéristique de diffusion de la chaleur est beaucoup plus court que celui des espèces.

Les différents modèles de solidification se distinguent surtout par le traitement des transports d'espèces. Certains auteurs utilisent des modèles microscopiques analytiques, permettant de relier la porosité aux champs de concentration totale et température, pour traiter les changements de phase et calculer les concentrations dans chaque phase. C'est le cas des codes "SOLID" de l'école des Mines de Nancy (Volumes Finis) et "3-MOS" (Eléments finis) de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne qui font une hypothèse "Lever Rule" [1].

Ni & Beckermann [107, 108], Beckermann & Viskanta [16] ou Schneider & Beckermann [147, 148, 149] ont, les premiers, proposé des approches à deux phases qui résolvent explicitement des équations de conservation des espèces dans les deux phases. Le modèle est dit "à non équilibre chimique", puisqu'il suppose que les concentrations moyennes sont indépendantes des concentrations d'équilibre. Les échanges d'espèces interfaciaux sont proportionnels à des coefficients d'échanges d'espèces et au déséquilibre chimique. Cependant, ces auteurs n'ont pas complètement exploité la méthode de changement d'échelle, pour déterminer les propriétés effectives de transport, puisqu'ils ont utilisé des relations empiriques.

Bousquet-Mélou & al. [24, 25, 61], ont développé un modèle complet par la méthode de prise de moyenne volumique. Ils ont montré que des termes contenant des gradients de porosité apparaissent dans les équations moyennes. Ces termes sont généralement négligés dans les modèles classiques, alors que leur ordre de grandeur n'est pas connu. Par ailleurs, ils ont développé des problèmes de fermeture portant sur les fluctuations des champs. Ces problèmes peuvent être résolus sur des structures réelles de zones interdendritiques, pour obtenir des formulations précises des propriétés de transport macroscopiques. Goyeau & al. [60] ont donné une expression de la perméabilité, Neculae & al. [106] ont obtenu une expression de la dispersion passive (aucun échange d'espèce interfacial), alors que Bousquet-Mélou & al. [26] ont obtenu l'expression des coefficients d'échange d'espèce et du tenseur de dispersion active (avec échange d'espèce interfacial). Ces auteurs ont montré que les coefficients d'échange d'espèces et de dispersion dépendaient fortement du nombre de Péclet de l'écoulement.

Enfin, certains auteurs tels que Rappaz & Thevoz [140] ou Wang & Beckermann [174, 18, 175, 176] ont proposé des approches dites *triphasiques* qui distinguent le liquide interdendritique du liquide extradendritique, afin d'améliorer la représentation des phénomènes à petite échelle.

1.4.3 Traiter un unique régime de solidification

La plupart des modèles présentés dans la littérature, modélisent un unique régime de solidification, ce qui permet de simplifier les modèles.

Régime colonnaire

Si l'on se réfère au bilan des phénomènes qui interviennent lors de la solidification des mélanges binaires (cf partie 1.4.1), un modèle de solidification colonnaire seul, consiste à modéliser les transferts de masse, de quantité de mouvement (dans le liquide), d'espèce, et d'énergie, avec les changements de phase. Ainsi, les modèles de Voller & Prakash [168, 169], Beckermann & Viskanta [15, 16], Bennon & Incropera [20, 21], Felicelli & al. [44], Ni & Incropera [109, 110], ou Krane & Incropera [85, 84], utilisent un modèle de mélange, alors que Beckermann & Viskanta [16], Schneider & Beckermann [147, 148, 149], Ahmad & al. [1] et Bousquet-Mélou & al. [24, 25, 61] proposent des modèles continus à deux phases, développés par prise de moyenne volumique.

Régime équiaxe

Le régime équiaxe se distingue du régime colonnaire par le transport de phase solide et la nucléation de cristaux. Le modèle de Voller & Prakash [168, 169] est un modèle de mélange. Les modèles de Wang & Beckermann [173, 174, 175, 176, 18], Gu & Beckermann [68, 67], Vreeman & al. [171, 170] et Ludwig & Wu [100, 186] ont été développés par la prise de moyenne volumique des équations microscopiques.

La détermination des propriétés de transport macroscopiques est assez aisée pour la solidification globulaire (les cristaux sont supposés sphériques) [107, 108], car la densité d'aire interfaciale, qui influence les coefficients d'échanges, se calcule facilement. En revanche, elle l'est moins lorsque la solidification est dendritique (les cristaux présentent de fortes instabilités interfaciales) [173, 174, 175, 176, 18].

1.4.4 Le difficile couplage entre les deux régimes

La modélisation des deux régimes de solidification et de la transition entre les deux a donné lieu à peu de travaux. La difficulté réside dans la modélisation de la surfusion en aval de la zone interdendritique. Flood & Hunt [49] ont proposé d'utiliser une relation expérimentale, reliant la vitesse de croissance des pointes de dendrites v au sous refroidissement ΔT et au gradient thermique en pointe de dendrite G :

$$\Delta T = \frac{GD_\ell}{v} + C_1 v^{\frac{1}{2}} \quad (1.1)$$

Cette relation fournit la cinétique d'avancée du front de la zone interdendritique. Le liquide en aval ne peut solidifier avant que le front solide n'arrive, ce qui permet l'apparition de sous-refroidissement dans cette zone.

Un autre modèle de surfusion solutale a été proposé par Ni & Incropera [109, 110]. Le modèle de solidification de base utilisé par ces auteurs, est un modèle de mélange, qui suppose notamment la relation suivante entre les concentrations d'équilibre : $C_s^* = kC_\ell^*$, où k est le

coefficient de partition de l'alliage étudié. Pour intégrer la notion de surfusion solutale, ces auteurs distinguent la concentration moyenne $\langle C_\ell \rangle^\ell$ de la concentration d'équilibre C_ℓ^* . Pour exprimer $\langle C_\ell \rangle^\ell$, ils proposent de considérer un coefficient de partition effectif k^* , reliant C_s^* à $\langle C_\ell \rangle^\ell$:

$$k^* = \frac{C_s^*}{\langle C_\ell \rangle^\ell} \quad (1.2)$$

La surfusion solutale est donc obtenue par :

$$\Delta C_\ell = C_s^* \left(\frac{1}{k} - \frac{1}{k^*} \right) \quad (1.3)$$

Ces mêmes auteurs ont proposé l'expression suivante pour le coefficient effectif de partition :

$$k^* = \frac{k}{k + (1 - k)e^{\frac{V\delta_\ell}{D_\ell}}} \quad (1.4)$$

Dans l'équation (1.4), V est la vitesse de croissance des cristaux, alors que δ_ℓ est l'épaisseur de la couche limite solutale dans le liquide à l'interface entre les deux phases. L'écart entre la concentration moyenne et la concentration d'équilibre $\Delta C_\ell = \frac{1-k}{k} \left(1 - e^{\frac{V\delta_\ell}{D_\ell}} \right)$, à un endroit donné, traduit un écart à l'équilibre qui est d'autant plus grand que la vitesse de croissance de l'interface et l'épaisseur de la couche limite solutale sont grands.

Il est possible de modéliser la nucléation de cristaux équiaxes en fonction de ce déséquilibre et coupler les deux processus de croissance. Un défaut de cette méthode réside dans le manque de justification physique des relations (1.2) et (1.4).

Wang & Beckermann [174] ont proposé une modélisation de la transition colonnaire équiaxe basée sur leur modèle triphasique (phase solide et phases liquide inter et extra dendritique) [18, 175, 176], sans considérer la convection. Ils utilisent une loi de nucléation instantanée pour les cristaux équiaxes, qui apparaissent dès que le liquide est dans un état de surfusion. Le front de la zone colonnaire est suivi par le déplacement d'une interface se déplaçant selon la fonction de Ivantsov, en fonction du sous-refroidissement Ω en pointe de dendrite.

$$Iv^{-1}(\Omega) = a \left(\frac{\Omega}{1 - \Omega} \right)^b \quad \text{avec } a = 0,4567 \text{ et } b = 1,195 \quad (1.5)$$

Si les cristaux équiaxes restent de faible dimension, ils sont intégrés dans la zone colonnaire et peuvent à leur tour donner lieu à des dendrites colonnaires. Lorsqu'ils sont assez grands (ces auteurs estiment qu'il faut une fraction solide proche de 0,5), ils bloquent la croissance colonnaire. Le lieu de la transition est localisé par la position de la surface qui représente la pointe des dendrites. Ces auteurs ont pu vérifier que la transition est favorisée par une forte densité volumique de sites de nucléation, par une forte concentration initiale en soluté, par de faibles gradients thermiques, et par une forte intensité de la convection. La faiblesse de l'approche réside dans l'utilisation d'un critère portant sur le blocage de la croissance colonnaire.

Plus récemment, Martorano & al. [103] ont poursuivi le travail de Wang & Beckermann [174] en incluant une interaction entre le rejet de soluté causé par la croissance des grains équiaxes et la croissance des dendrites colonnaires. L'enrichissement du liquide extradendritique diminue

le sous-refroidissement du liquide, jusqu'à arrêter la croissance du front colonnaire. Il n'est donc plus besoin d'introduire un critère pour provoquer la transition. Avec ce nouveau modèle, Martorano & al. ont pu simuler la solidification de plusieurs expériences de solidification avec des alliages $Al - Cu$ ou $Al - Si$. Ils ont obtenu de bons résultats qualitatifs pour la localisation de la transition colonnaire équiaxe.

Pour conclure cette étude des modèles couplés de solidification, nous pouvons dire qu'à notre connaissance, peu de modèles de solidification proposent une modélisation de la surfusion en amont de la zone interdendritique, qui permet de prévoir la transition colonnaire-équiaxe. Deux modèles sont des modèles de mélange et nous avons trouvé un unique modèle à deux phases.

1.4.5 Travailler à l'échelle microscopique

Intérêt

Depuis plusieurs années, les recherches sur la solidification de mélanges multi-constituants n'ont pas donné lieu à de nouvelles approches innovantes concernant la modélisation à grande échelle. Par contre, des équipes se sont orientées vers les méthodes de simulation numérique directe (Direct Numerical Simulation). Elles consistent à appréhender les phénomènes à l'échelle des cristaux comme les microségrégations ou les instabilités interfaciales. Ces approches sont complémentaires aux études à l'échelle macroscopique car elles permettent de valider certaines hypothèses telles que l'équilibre thermique ou des modèles microscopiques analytiques comme les règles du Levier ou de Scheil. De plus, dans le contexte des modèles à deux phases obtenus par prise de moyennes volumique, nous avons vu le besoin de connaître les structures locales, afin de pouvoir résoudre les problèmes de fermetures associés aux fluctuations des champs. Celles-ci étant malheureusement difficiles à obtenir expérimentalement (la plupart des mélanges sont difficilement à instrumenter, et souvent opaques), il y a un grand intérêt à obtenir des dendrites par simulation numérique.

Nous proposons, dans cette partie, de faire un tour d'horizon des méthodes utilisables dans le contexte de la solidification des mélanges. Les modèles de croissance de cristaux doivent résoudre les équations de transport d'énergie et d'espèces, tout en localisant chaque phase. La principale difficulté réside dans le suivi de l'interface solide-liquide : en pratique, le passage d'une phase vers l'autre s'effectue sur une distance équivalente à la taille caractéristique des molécules (soit quelques nm). Cela rend la localisation d'une interface difficile si l'on utilise des maillages fixes.

Modèles de croissance de cristaux

Les modèles Front Tracking représentent l'interface à l'aide d'un nombre fini de points qui définissent ainsi une surface mince [33, 167]. La surface sépare les domaines solide et liquide qui évoluent suivant des systèmes d'équations différents. Des relations de saut à l'interface entre les deux phases complètent le système. Pour ces méthodes, des maillages mobiles et non structurés sont utilisés, de façon à ce que l'interface coïncide avec des faces de mailles.

Les méthodes de champ de phase (Phase Field) présentent l'intérêt de fonctionner sur des maillages fixes avec un système d'équations valables dans tout le volume. Les premiers modèles

ont été présentés par Warren & Boettinger [177], Karma & Rappel [82], Anderson & al. [2] ou Sekerka [151]. Ces méthodes considèrent une *interface diffuse* : les phases pures sont séparées par une interface d'épaisseur δ , supérieure à l'épaisseur réelle. La plupart des modèles de champ de phase sont basés sur le second principe de la thermodynamique : le système évolue de façon à minimiser son énergie libre totale [177, 158, 3, 98]. Ces modèles ont permis de calculer des croissances de dendrites en 2 dimensions, avec des formes qualitativement correctes de cristaux et de champs de microségrégation [177, 98, 137, 136]. Certains auteurs ont aussi réalisé des calculs en 3 dimensions [81, 187]. Pour tester les effets de convection sur le développement des instabilités, il est nécessaire de coupler le modèle de croissance avec un modèle d'écoulement (Stokes ou Navier-Stokes). Beckermann & al. [14] et Lan & al. [87] ont pu montrer que les branches se développent préférentiellement dans la direction opposée au courant. Par ailleurs, certains auteurs ont utilisé des techniques de maillages adaptatifs pour raffiner les maillages à l'interface et utiliser des épaisseurs d'interface assez fines. En effet, le choix de la taille d'interface est important, et il faut la choisir assez petite [81, 87]. Cette approche présente l'inconvénient de nécessiter l'expression d'une fonction jouant le rôle d'énergie libre volumique. Déterminer une fonction n'est pas aisé, ce qui rend ces méthodes difficiles.

Beckermann & [13], puis Boettinger & al. [23] ont proposé un modèle de champ de phase plus intuitif. Dans leur modèle, le déséquilibre du système est exprimé en fonction du diagramme de phase, et non en fonction de l'énergie libre. Ces auteurs ont montré, sur l'exemple d'un corps pur, que les deux méthodes aboutissent aux mêmes équations. Ils ont pu réaliser des calculs de solidification et fusion en 2 dimensions avec ou sans convection.

Ces méthodes de simulations numériques directes ont permis de simuler la transition colonnaire équiaxe. Dong & Lee [40] ont utilisé une méthode dite *Cellular Automaton - Finite Difference* (CA-FD) alors que Ramirez & al. [137, 136] et Beckermann & al. [12] ont utilisé une méthode de champ de phase. Des images de simulations réalisées par Dong & Lee sont présentées sur les figures 1.4 et 1.6 où successivement, la croissance colonnaire seule, la croissance mixte, puis la croissance équiaxe seule sont visibles. L'apparition de cristaux équiaxes, dépend de la surfusion dans le liquide. Des sites de nucléation sont introduits dans le mélange, et si une surfusion suffisante est atteinte à un endroit où l'un d'eux est présent, les sites germent. Ces simulations sont intéressantes pour situer les endroits présentant les plus forts sous-refroidissement. Ces simulations ont pu montrer que les pics de surfusion sont généralement présents en aval de la zone colonnaire, excepté lorsque l'espacement entre deux proches dendrites est important, ce qui permet l'apparition d'une zone sous-refroidie, entre celles-ci.

1.5 Objectifs du travail

L'étude des phénomènes de solidification dans les mélanges binaires a donné lieu à de nombreux travaux de modélisation, à l'échelle microscopique comme à l'échelle macroscopique. Cependant, nous ne disposons pas d'une représentation universelle des phénomènes. Des améliorations sont possibles, notamment pour améliorer la représentation des interactions entre les différentes échelles. Dans le contexte industriel de cette thèse, nous allons privilégier l'étude des phénomènes à grande échelle. Les approches à prise de moyenne volumique présentent la capacité à intégrer dans les propriétés de transport macroscopiques les caractéristiques des processus intervenant à plus petite échelle.

Nous limitons les développements aux cas d'écoulements liquides laminaires, et nous nous contentons dans ce travail, d'étudier les mélanges binaires, car les développements sont plus aisés et permettent d'obtenir des tendances et des résultats intéressants.

Il est pertinent d'utiliser un modèle à deux phases, comme Bousquet-Mélou & al. [24, 25, 61]. Dans un premier temps, nous rappellerons, au chapitre 2, les équations de ce modèle que nous validerons sur différents cas-tests. Nous pourrons alors tester l'influence des termes additionnels dont Bousquet-Mélou [24] a montré l'existence et tester l'influence des corrélations proposées pour les coefficients macroscopiques de transport.

Concernant la modélisation du régime de solidification équiaxe, nous pouvons constater qu'aucun modèle complet n'a été développé. Nous proposons d'en développer un pour ce régime, avec les problèmes de fermeture adéquats pour les grandeurs fluctuantes. Les difficultés, inhérentes à la structure même de la phase solide et au fait que le solide est en mouvement seront traitées au chapitre 3.

Aucun modèle macroscopique de solidification (réalisé avec une méthode à deux phases) n'a permis de coupler les deux régimes de croissance et prévoir la transition colonnaire-équiaxe. Il sera proposé au chapitre 4 une méthodologie pour permettre la résolution couplée de ces deux régimes. Nous y présenterons des calculs illustrant la capacité de la méthode.

Enfin, dans l'optique de résoudre des problèmes de fermeture sur des structures réelles de dendrites, il est nécessaire de disposer d'un modèle capable de simuler la croissance de cristaux dendritiques. Etant donné que ce thème n'est pas central dans la problématique générale, un modèle simple, mais performant doit être choisi. Les méthodes de champ de phase proposées par Beckermann & al. [13] ou Boettinger & al. [23] semblent adaptées. Nous discuterons au chapitre 5 de ce modèle et montrerons sa capacité à fournir des informations sur les microstructures.

Chapitre 2

Modèle initial de solidification colonnaire

Nous allons rappeler dans ce chapitre, le modèle macroscopique complet de solidification colonnaire, tel qu'il a été développé par Bousquet-Mélou & al. [60, 24, 25, 26, 106, 61], avec la méthode de prise de moyenne volumique des équations de conservation microscopiques. Pour être concis, nous nous contenterons de citer les équations macroscopiques sans les problèmes de fermeture, et sans les démonstrations. Dans un premier temps, nous allons rappeler le modèle microscopique, qui servira aussi de base pour le développement du modèle équiaxe, dans le chapitre 3.

2.1 Phénomènes locaux

Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, des espèces et de l'énergie sont écrites sur chaque phase [24, 61, 107, 1].

Dans le liquide

$$\frac{\partial \rho_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_\ell \vec{V}_\ell = 0 \implies \nabla \cdot \vec{V}_\ell = 0 \quad (2.1)$$

$$\frac{\partial \rho_\ell \vec{V}_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_\ell \vec{V}_\ell \vec{V}_\ell = -\nabla P_\ell + \mu_\ell \nabla^2 \vec{V}_\ell + \rho_\ell \vec{g} \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial \rho_\ell C_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_\ell \vec{V}_\ell C_\ell = -\nabla \cdot \vec{J}_\ell \quad (2.3)$$

$$\frac{\partial \rho_\ell H_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_\ell \vec{V}_\ell H_\ell = \lambda_\ell \nabla \cdot \nabla T + \rho_\ell \dot{Q}_\ell \quad (2.4)$$

Dans le solide (colonnaire ou équiaxe)

$$\frac{\partial \rho_c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \vec{V}_c = 0 \implies \nabla \cdot \vec{V}_c = 0 \quad (2.5)$$

$$\frac{\partial \rho_c \vec{V}_c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \vec{V}_c \vec{V}_c = -\nabla \cdot \sigma_c + \rho_c \vec{g} \quad (2.6)$$

$$\frac{\partial \rho_c C_c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \vec{V}_c C_c = -\nabla \cdot \vec{J}_c \quad (2.7)$$

$$\frac{\partial \rho_c H_c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \vec{V}_c H_c = \lambda_c \nabla \cdot \nabla T + \rho_c \dot{Q}_c \quad (2.8)$$

Les équations 2.5 à 2.8, qui tiennent compte du transport par convection du solide, se simplifient dans le cas colonnaire en annulant les termes contenant la vitesse solide et en enlevant l'équation 2.6.

Equations de conservation à l'interface Toutes ces équations qui régissent l'évolution du coeur d'une phase sont complétées par des relations de conservation à l'interface solide-liquide [24, 61, 107, 133].

$$\rho_c \vec{n}_{\ell c} \cdot (\vec{V}_c - \vec{w}_{\ell c}) = \rho_\ell \vec{n}_{\ell c} \cdot (\vec{V}_\ell - \vec{w}_{\ell c}) \quad (2.9)$$

$$\sigma_c \cdot \vec{n}_{\ell c} + (\rho_c \vec{V}_c) (\vec{V}_c - \vec{w}_{\ell c}) \cdot \vec{n}_{\ell c} = \sigma_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} + (\rho_\ell \vec{V}_\ell) (\vec{V}_\ell - \vec{w}_{\ell c}) \cdot \vec{n}_{\ell c} \quad (2.10)$$

$$\vec{n}_{\ell c} \cdot [\rho_c C_c (\vec{V}_c - \vec{w}_{\ell c}) + \vec{J}_c^i] = \vec{n}_{\ell c} \cdot [\rho_\ell C_\ell (\vec{V}_\ell - \vec{w}_{\ell c}) + \vec{J}_\ell^i] \quad (2.11)$$

$$\vec{n}_{\ell c} \cdot [\rho_c H_c (\vec{V}_c - \vec{w}_{\ell c}) - \lambda_c \nabla T] = \vec{n}_{\ell c} \cdot [\rho_\ell H_\ell (\vec{V}_\ell - \vec{w}_{\ell c}) - \lambda_\ell \nabla T] \quad (2.12)$$

Le système constitué des équations 2.1 à 2.12 contient toute la physique des phénomènes de solidification. Ce système, avec une méthode front tracking, permettrait de simuler localement la progression d'une interface et les transports de masse, de quantité de mouvement, d'espèces et d'énergie. Le recours à une méthode de changement d'échelle permet d'obtenir un modèle valable à plus large échelle. La méthode de prise de moyenne volumique a été employée dans le contexte du transport en milieux poreux [183, 130, 133, 134] et la solidification colonnaire [107, 24, 61, 175] pour sa capacité à intégrer dans les modèles macroscopiques, les phénomènes microscopiques. Cette méthode est décrite dans l'annexe A, avec une revue d'autres techniques possibles.

2.2 Modèle macroscopique

Dans cette partie, nous décrivons les équations macroscopiques obtenues grâce à la prise de moyenne pour le cas de la solidification colonnaire. Les problèmes de fermeture ont déjà été présentés dans différentes publications [24, 61] et ne sont pas détaillés.

Conservation de la masse

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = - \frac{\partial \varepsilon_s \rho_s}{\partial t} \quad (2.13)$$

Le membre de droite de 2.13 quantifie le taux de solidification.

Conservation de la quantité de mouvement dans le liquide

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell &= -\varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \\ &+ \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{g} - \varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{F}) \cdot \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \end{aligned} \quad (2.14)$$

Dans l'équation (2.14), le terme de dispersion $\nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ a été négligé car des travaux précédents ont montré qu'il était négligeable devant le terme de convection dans le coeur du liquide et au terme de frottement dans la zone interdendritique [25].

Dans le dernier terme de droite, K et F sont la perméabilité et le tenseur de Forchheimer. Des problèmes de fermeture ont été développés pour leur évaluation, [180, 134, 182], et ont été résolus dans le contexte de la solidification dendritique [51, 60].

Le terme $\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ est la première correction de Brinkmann alors que les termes $\mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ et $\mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ représentent la seconde correction. Ces termes qui dépendent des gradients de porosité traduisent les effets des variations continues de propriétés dans les milieux poreux ou “*hétérogénéités évolutives*” [59, 60]. Il est probable qu'ils aient une influence assez forte à la pointe de la zone interdendritique où les gradients sont importants, alors qu'ils sont négligeables dans le liquide et le coeur de la zone interdendritique. A l'heure actuelle, ces termes n'ont jamais été implémentés dans des modèles de solidification et leur influence n'est pas connue.

Conservation des espèces

La principale caractéristique de ce modèle de solidification réside dans l'hypothèse de non-équilibre solutal qui suppose que la concentration moyenne dans une phase est différente de sa concentration d'équilibre [107, 175, 176, 26, 61].

Phase solide

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_s \rho_s \langle C_s \rangle^s}{\partial t} - C_s^* \frac{\partial \varepsilon_s \rho_s}{\partial t} &= \nabla \cdot \varepsilon_s \rho_s D_s \nabla \langle C_s \rangle^s + \rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \\ &- \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s - \nabla \cdot \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) \end{aligned} \quad (2.15)$$

Phase liquide

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell + C_\ell^* \frac{\partial \varepsilon_s \rho_s}{\partial t} = \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \mathbf{D}_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ - \rho_\ell \mathbf{D}_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell h_{m_{\ell s}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \nabla \cdot \rho_\ell \mathbf{D}_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \end{aligned} \quad (2.16)$$

Les échanges d'espèces à l'interface sont proportionnels à la différence entre la concentration interfaciale (égale à la concentration d'équilibre) et la concentration moyenne. Les coefficients d'échanges $h_{m_{\ell s}}$ et h_{m_s} sont des propriétés de transport macroscopiques dont des problèmes de fermeture ont été développés [24, 61] et résolus sur des images digitalisées de dendrites [26]. Les résultats ont montré la très forte dépendance de ces paramètres à la fraction volumique de liquide et au coefficient de Péclet local de l'écoulement.

Dans les équations (2.15) et (2.16) D_s et \mathbf{D}_ℓ représentent les tenseurs de diffusion-dispersion. Ils cumulent les effets de diffusion, de dispersion et de tortuosité, qui contribuent au transport des espèces. Des problèmes de fermeture ont été écrits pour quantifier ces propriétés de transport effectives [24, 61]. Ils ont été résolus pour le cas de la dispersion active [26] (avec transfert interfacial, condition de Dirichlet) et de la dispersion passive (sans transfert interfacial, condition de Neumann) [106]. La dépendance au nombre de Péclet local est plus forte dans le cas de la dispersion active.

Il apparaît aussi dans les équations (2.15) et (2.16) des termes en gradient de porosité qui traduisent les effets des hétérogénéités évolutives [24, 61].

Conservation de l'énergie

Etant donné que la diffusion thermique est supérieure à la diffusion d'espèces, l'hypothèse d'équilibre thermique [128] entre les deux phases a été choisie et donne lieu à une unique équation de conservation de l'énergie [130, 135, 128].

$$\frac{\partial \rho \langle H \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = \nabla \cdot \Lambda_{eff} \cdot \nabla \langle T \rangle + \langle \rho \rangle \langle \dot{Q} \rangle \quad (2.17)$$

Dans l'équation 2.17, Λ_{eff} est le tenseur de conductivité thermique, qui regroupe les effets de conduction, de dispersion et tortuosité. Un problème de fermeture portant sur ce tenseur macroscopique a été posé et peut être résolu sur des cellules périodiques représentatives [24, 61]. A ce jour, à notre connaissance, ce problème n'a pas été résolu, et l'importance de ce tenseur reste inconnue.

Taux de changement de phase

Le taux de changement de phase intervient dans les équations (2.13), (2.15), (2.16), et il est nécessaire d'écrire une équation sur cette grandeur pour compléter le système. Elle est obtenue en prenant la moyenne volumique de l'équation de conservation des espèces à l'interface solide-liquide [24, 61].

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_s \rho_s}{\partial t} = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \rho_\ell h_{m_{\ell s}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right. \\ \left. - \rho_s D_s (\nabla \varepsilon_s) \cdot \nabla \langle C_s \rangle^s - \rho_\ell D_\ell (\nabla \varepsilon_\ell) \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \right] \end{aligned} \quad (2.18)$$

Dans cette équation macroscopique, nous retrouvons les termes d'échanges d'espèces interfaciaux, ainsi que des termes dépendant de gradients de porosité.

2.3 Validation

Nous avons décrit dans la partie précédente le modèle macroscopique complet de solidification colonnaire, tel qu'il a été développé par Bousquet-Mélou [24]. Une formulation avec deux équations d'espèces et une hypothèse de non équilibre solutal a été retenue. Des termes en gradient de porosité qui quantifient les effets des hétérogénéités évolutives, potentiellement importantes en pointe de dendrites ont été introduits. Enfin, des problèmes de fermeture portant sur les propriétés de transport effectives ont été développés [24, 61]. Ils permettent de calculer numériquement les valeurs de ces coefficients macroscopiques. Il est très difficile de tenir compte de tous ces termes dans un unique modèle. Dans cette partie, nous présentons le travail de validation qualitative qui a été réalisé avec une version simplifiée du modèle.

2.3.1 Modèle simplifié

Dans ce travail de validation, pour les premiers calculs, les termes en gradient de porosité ont été négligés. Nous estimerons leur ordre de grandeur, en utilisant les premiers résultats de calculs de certains cas-tests, dans la partie 2.3.3. Par ailleurs nous avons fait les hypothèses suivantes :

1. Pour traiter la densité du fluide, nous prenons l'approximation de Boussinesq qui suppose la densité égale à la valeur de référence dans tous les termes $\rho_l = \rho_0$, excepté dans les termes de gravité pour lesquels :

$$\rho_l = \rho_0(1 - \beta_T(T - T_{ref}) - \beta_C(\langle C_l \rangle^\ell - C_{ref})) \quad (2.19)$$

2. Pour la perméabilité, une loi de Kozeny-Carman isotrope a été choisie [10] :

$$K = \frac{l_k^2}{180} \frac{\varepsilon_\ell^3}{(1 - \varepsilon_\ell)^2} \quad (2.20)$$

Où la taille caractéristique des pores l_k est une dimension caractéristique de la zone interdendritique [123, 124, 149, 67]. L'espacement primaire interdendritique λ_1 est généralement utilisé lorsque l'écoulement est parallèle à l'axe des dendrites, alors que l'espacement secondaire λ_2 est utilisé lorsque la vitesse est orthogonale. Pour nos applications, nous avons choisi d'utiliser l'espacement secondaire, car l'écoulement est essentiellement vertical dans la zone interdendritique. Seul les calculs de l'expérience en Plomb-Etain (avec 5% en masse d'étain), qui sera exploitée dans la partie 2.3.2, ont été réalisés en prenant $l_k = \lambda_1$.

3. Concernant les coefficients d'échange d'espèces, de nombreux auteurs ont montré la dépendance de ces coefficients à la densité d'aire interfaciale et à une longueur de diffusion d'espèce.

$$h_{mk} = \frac{D_k A_k}{l_k} \quad (2.21)$$

Pour cette dernière, nous la supposons égale à l'espacement secondaire interdendritique ($l_k = \lambda_2$). Nous avons supposé, comme Beckermann & Wang [17], la relation suivante pour la densité d'aire interfaciale, valable pour des structures assez simples [129] :

$$A_k = \frac{12}{\varepsilon_s l_k} \quad (2.22)$$

Nous avons pris la longueur caractéristique intervenant dans le calcul de cette densité d'aire égale à l'espacement secondaire interdendritique. Il reste finalement la relation suivante pour les coefficients d'échanges :

$$h_{mk} = 12 \frac{D_k}{\lambda_2^2 \varepsilon_s} \quad (2.23)$$

4. Le tenseur de conductivité thermique dans la zone interdendritique se compose d'une contribution diffusivité dépendant linéairement des conductivités thermiques dans chacune des phases $\lambda_{eq} = \varepsilon_s \lambda_s + \varepsilon_\ell \lambda_\ell$, et d'une correction quantifiant les effets de dispersion et tortuosité. Peu de travaux ont permis de quantifier précisément les effets de dispersion. Concernant les effets de tortuosité, ils dépendent linéairement de la différence entre les conductivités des deux phases [24, 61], et si ces dernières sont très proches, la tortuosité est négligeable. Nous présentons dans le tableau 2.1, les valeurs des conductivités dans différentes phases, pour des alliages dont nous allons réaliser des simulations numériques. Les conductivités de chaque phases sont différentes, mais l'ordre de grandeur est le même et nous négligeons les effets de tortuosité.

		Pb	Sn	Bi	Bi-Sn
T_{fusion}	K	600	500		
$\lambda_s (T = 300K)$	$W/m.K$	35,3	66,6	7,87	
$\lambda_s (T = 500K)$		32,8	59,6		
$\lambda_\ell (T = 500K)$			30		30
$\lambda_\ell (T = 600K)$		15	32		
$\lambda_\ell (T = 1000K)$		20	32		

TAB. 2.1: Conductivité thermique des alliages métalliques considérés :

2.3.2 Validation qualitative du modèle simplifié

Les expériences de solidification de mélanges multiconstituants sont difficiles à réaliser à cause de la difficulté pour réaliser des mesures, et contrôler les pertes thermiques en cours d'expérience. C'est pourquoi nous nous limitons à une validation qualitative du modèle mais réalisée avec quatre expériences de solidification d'alliages binaires métalliques et un cas-test présentant un mélange en sel binaire. Dans chacun des cas, un mélange à une température et une composition initiale est introduit dans une cavité parallélépipédique, et est refroidi par l'une des faces verticales. Le volume reste isolé par les autres faces du volume expérimental (voir figure 2.1).

L'équilibre thermodynamique du mélange est représenté par un diagramme de phase simplifié et linéarisé présentant un point eutectique. Un tel diagramme est représenté sur la figure 2.2.

Cas-tests avec alliage Plomb-Etain

Deux expériences ont été réalisées par Hebditch & Hunt avec des mélanges Pb-Sn [69] présentant des compositions différentes : un mélange contenant 48% de Plomb (Expérience A),

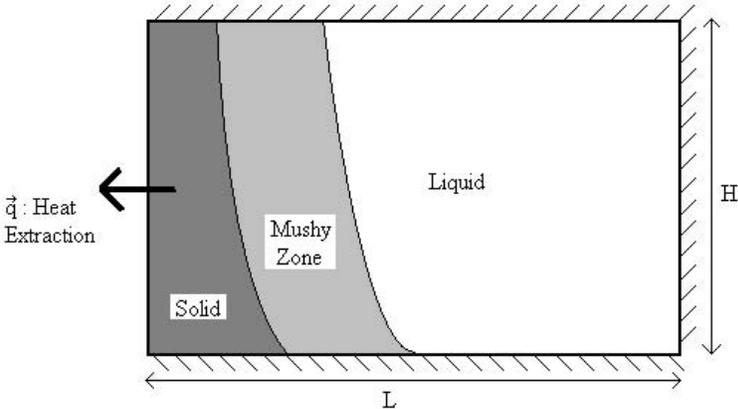


FIG. 2.1: Configuration des experiences de référence.

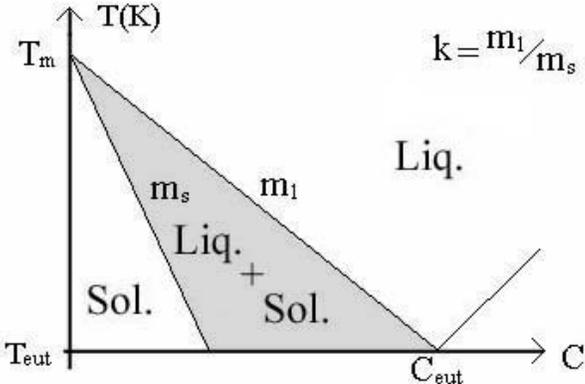


FIG. 2.2: Diagramme de phase simplifié d'un mélange binaire présentant un point eutectique.

et un mélange contenant 5% d'étain (Expérience B). Pour ces deux expériences, des mesures du champ de température ont été effectuées à différents endroits dans le mélange. Une analyse des échantillons solidifiés a permis de déterminer le champ de macroségrégation final.

Les résultats expérimentaux ont été exploités dans diverses publications pour valider des modèles de solidification [1, 97, 58, 144]. Ahmad & al. ont utilisé ces résultats pour comparer les performances d'un code élément fini avec un code volume finis [1] et ont obtenu avec les deux codes des résultats légèrement différents, mais proches des mesures expérimentales. Leur modèle prend une hypothèse d'équilibre chimique qui diffère de notre modèle.

Malgré ces différences, pour faciliter la validation de notre modèle, nous avons choisi de comparer nos calculs avec ceux de Ahmad & al.

Expérience A : (Sn-48 % Pb)

Les propriétés physiques du mélange, son diagramme de phase et les données du calcul sont présentées dans la table 2.2. Une caractéristique de ce cas-test est que les forces thermiques et solutales s'opposent. Les secondes sont dominantes devant les premières, ce qui entraîne une inversion du sens de la convection en début de solidification. Après une longue période de mouvements convectifs descendants au contact de la paroi froide, un flux ascendant est observé. Celui-ci est visible sur la figure 2.3 où les lignes de champ sont représentées après 50s de solidification. Notre modèle a permis de correctement reproduire le sens de circulation de la boucle de convection. Cependant, des différences s'observent pour la forme des lignes de courant, et particulièrement dans le coeur du bain liquide. Celles-ci peuvent être initiées par les différences entre les modèles ou la discrétisation du terme de Darcy.

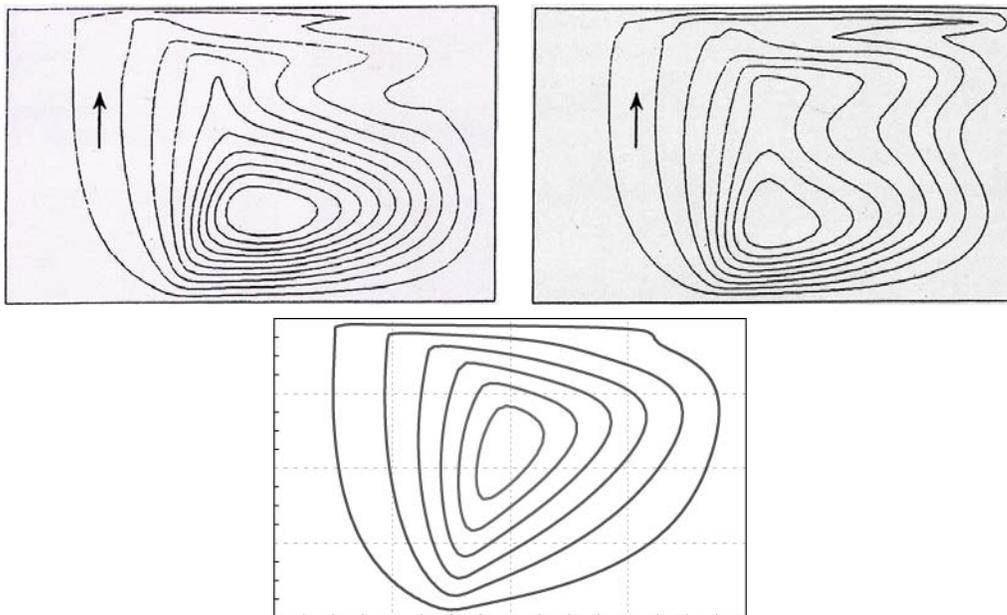


FIG. 2.3: Lignes de courant ($\Delta\psi = 3,67 \cdot 10^{-6}$) après 50s de solidification pour l'expérience A. En haut à Gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

La figure 2.4 présente les lignes d'isovaleurs de concentration après 400s. Les instants auxquels nous présentons les champs sont choisis pour montrer l'accord avec les travaux de Ahmad & al. [1]. Nous remarquons un enrichissement du mélange dans les parties hautes du domaine, car l'écoulement liquide traversant la zone interdendritique collecte un liquide enrichi. Pour les trois calculs, nous observons un bon accord dans l'ordre de grandeur des concentrations ainsi que pour la localisation des isovaleurs. En revanche, le calcul présenté par Ahmad & al. [1] avec la discrétisation volume fini, présente en pointe de zone colonnaire des instabilités qui traduisent la présence de canaux ségrégués. Ces canaux n'apparaissent pas dans la discrétisation éléments finis ainsi qu'avec notre modèle. Des travaux récents de Liu [97] ont porté sur l'étude de l'influence des maillages sur les résultats, avec le modèle éléments finis. Liu a utilisé des techniques de raffinement local de maillage et a montré que les canaux ségrégués apparaissent avec la discrétisation éléments finis lorsque l'extrémité de la zone colonnaire présente un maillage fin. Ces résultats montrent l'importance du choix du maillage sur les calculs, et semble nécessaire de réaliser de telles études avec notre modèle.

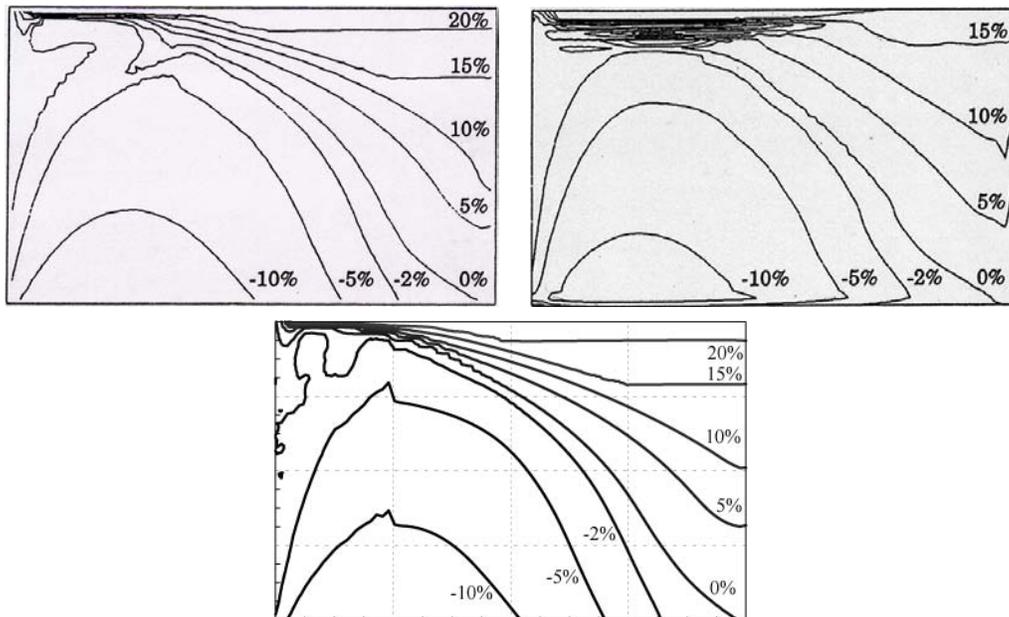


FIG. 2.4: Lignes d'isovaleurs de l'enrichissement du mélange en % après 400s de solidification pour l'expérience A. En haut à gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

Le champ de fraction solide présente une zone poreuse d'environ 5cm d'épaisseur où la fraction solide passe progressivement de 0 à 0,3. Un canal liquide s'est formé dans les parties hautes du domaine, comme nous pouvons l'observer sur la figure 2.5 où nous représentons des lignes d'isovaleurs de fraction solide. La ligne d'isovaleurs 0,01 représente la limite entre la zone totalement liquide et l'extrémité de la zone inter-dendritique. Les 3 calculs présentent les mêmes valeurs de fraction volumique solide et les localisations des isovaleurs sont proches. Nous observons pour ce champ l'apparition des canaux ségrégués obtenus par les calculs de Ahmad & al. pour la discrétisation volumes finis et éléments finis.

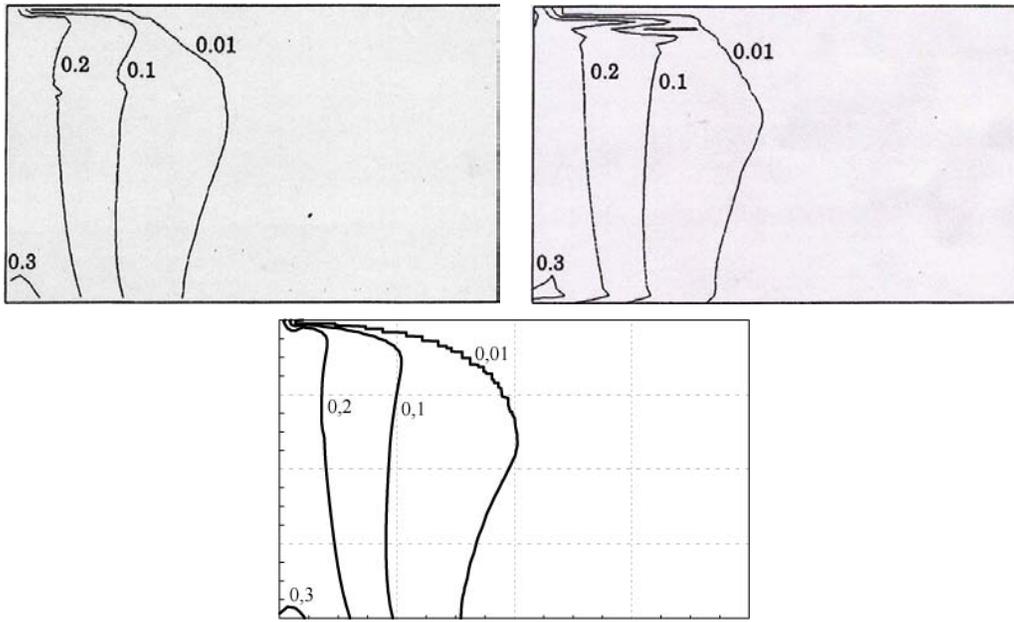


FIG. 2.5: Isovaleurs de fraction volumique solide après 50s de solidification pour l'expérience A. En haut à gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

Dans le canal au sommet du bain, les gradients des différents champs sont très forts, ce qui nécessite un maillage très raffiné à cet endroit. Nous avons réalisé les calculs pour cette expérience, avec un maillage contenant 60 mailles horizontales et 36 mailles verticales, avec un raffinement sinusoidal (voir tableau 2.2) dans la zone du haut.

Expérience B : (Pb-5% Sn)

Les données de ce cas-test sont présentées dans la table 2.2. Pour ce calcul, et contrairement aux autres cas-tests, l'espacement primaire interdendritique a été utilisé dans la relation (C.4), portant sur la perméabilité de la zone interdendritique. Ce mélange possède la propriété d'avoir un coefficient d'expansion solutal négatif, ce qui implique que les forces solutales et thermiques agissent dans la même direction. Il résulte que le flux liquide descend le long de la paroi froide. Nous avons représenté sur la figure 2.6 le champ d'isovaleurs de lignes de courant. La figure représente les calculs réalisés par notre modèle, et les calculs réalisés par Ahmad & al [1] avec les discrétisations volumes finis et éléments finis. Les calculs sont présentés à l'instant $t = 100s$, afin de pouvoir se comparer aux calculs d'Ahmad & al. Notre modèle permet de retrouver le sens de l'écoulement, ainsi que la forme des lignes de courant dans la zone diphasique. En revanche, des différences sont visibles dans la forme des lignes de courant dans le bain liquide. Tout comme pour l'expérience A, les différences peuvent s'expliquer par les différences entre les modèles ou la discrétisation du terme de Darcy.

La zone interdendritique présente la particularité d'être très large, et nous observons un canal liquide au pied de cette zone. Ceci est observable sur la figure 2.7 où sont présentées des isovaleurs de fraction solide après 100s de solidification. Sur cette figure, nos résultats

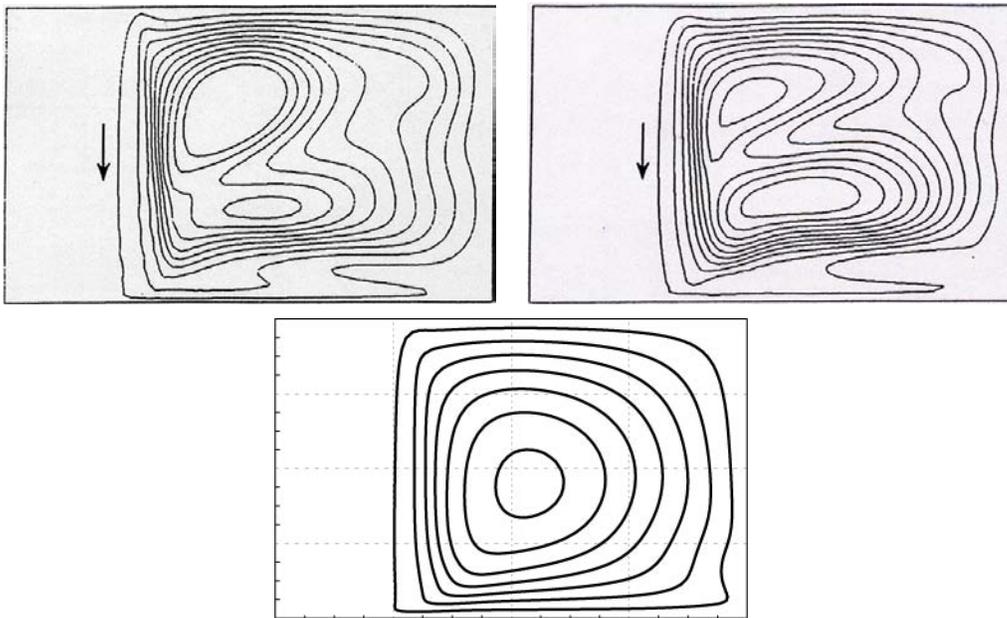


FIG. 2.6: Lignes de courant ($\Delta\psi = 1,56.10^{-6}$) après 100s de solidification pour l'expérience B. En haut à Gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

sont présentés en parallèle des résultats d'Ahmad & al [1]. Notre modèle permet de retrouver qualitativement l'ordre de grandeur de la fraction volumique solide ainsi que les formes des isovalues. Des différences sont observables pour l'apparition des canaux ségrégués, et notamment pour le calcul volumes finis [1]. Tout comme pour l'expérience A, nous pouvons expliquer ces écarts par les différences de modèles.

Le liquide qui se trouve dans le canal est difficile à solidifier car il est très enrichi par le soluté qui a été rejeté par la solidification et collecté par l'écoulement liquide. Sur la figure 2.8, des lignes d'isovaleurs de concentration réalisées avec notre modèle et celui de Ahmad & al. après 400s sont présentées. Elles montrent l'enrichissement en soluté dans les parties basses et l'appauvrissement dans le reste du domaine. Sur ce champ, des différences entre les modèles apparaissent dans la forme de certaines isovalues de concentration qui traduisent l'apparition de canaux, pour le calcul volumes finis de Ahmad & al. [1].

Un raffinement du maillage est nécessaire dans les parties basses du domaine pour pouvoir capter les forts gradients qui y interviennent. Nous avons utilisé un maillage contenant 80 mailles horizontales et 48 mailles verticales, avec un raffinement sinusoidal en bas.

Expérience C : Cas-test avec alliage Etain-Bismuth

Un mélange contenant 10% en masse de Bs a été utilisé par Quillet [127]. Les caractéristiques de l'expérience, les paramètres physiques, et les données correspondantes au calcul sont listées dans la table 2.2. Le dispositif expérimental permet de contrôler les flux de chaleur sur la paroi thermostatée. L'expérience est pilotée de façon à faire décroître la température froide à une vitesse constante. Des thermocouples ont été installés dans le volume pour suivre l'évolution

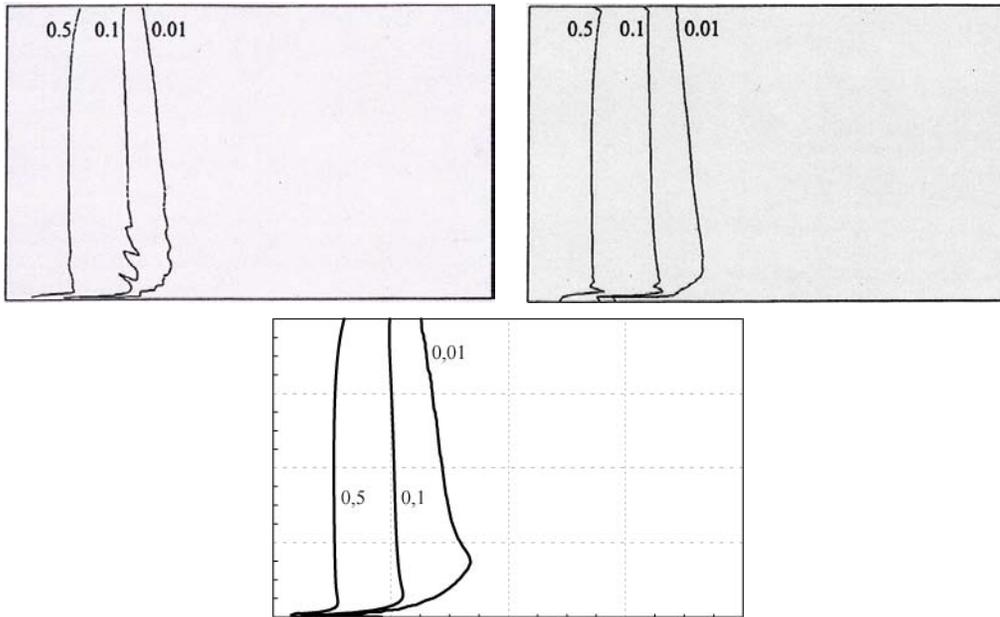


FIG. 2.7: Isovaleurs de fraction volumique solide après 100s de solidification pour l'expérience B. En haut à gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

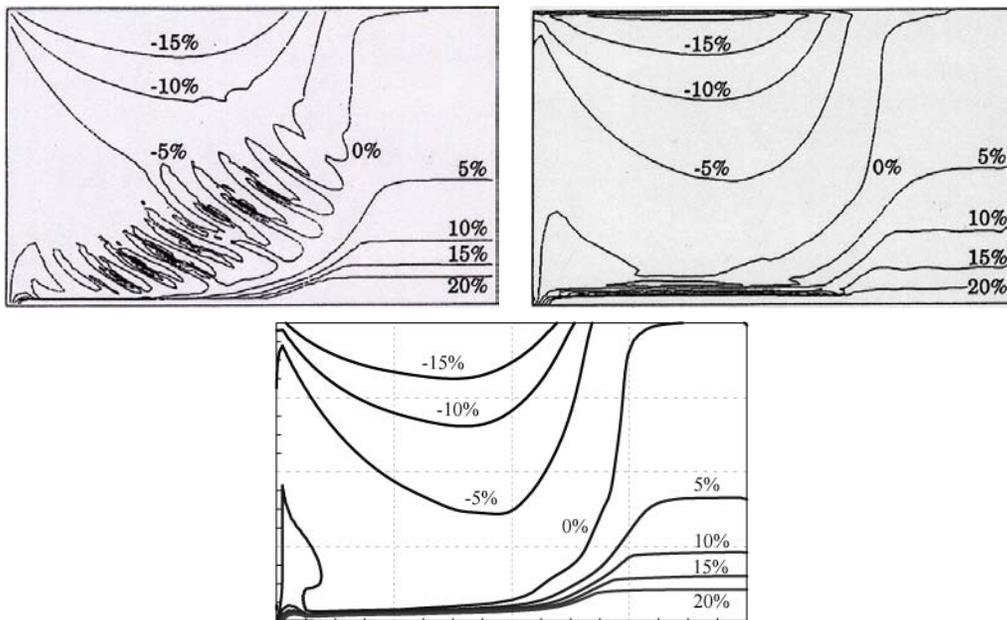


FIG. 2.8: Lignes d'isovaleurs de l'enrichissement du mélange en % après 400s de solidification pour l'expérience B. En haut à gauche : Calcul Volumes finis Ahmad & al. ; En haut à droite : Calculs Eléments finis Ahmad & al., Bas : Notre modèle

temporelle de la température à différents endroits. Une analyse post mortem a été réalisée pour obtenir le champ de macroségrégation. Nous nous intéressons plus particulièrement à une expérience pour laquelle la vitesse de décroissance de la température est de $2K.min^{-1}$.

En raison du procédé de refroidissement utilisé dans cette expérience (une décroissance progressive de la température de paroi), la solidification ne commence qu'après une période de convection naturelle. Tout comme l'expérience B, les forces solutales et thermiques agissent dans la même direction. La structure de l'écoulement est illustrée sur la figure 2.9 après 300s. Sur cette même figure, le champ de fraction solide après 300s de solidification est présenté.

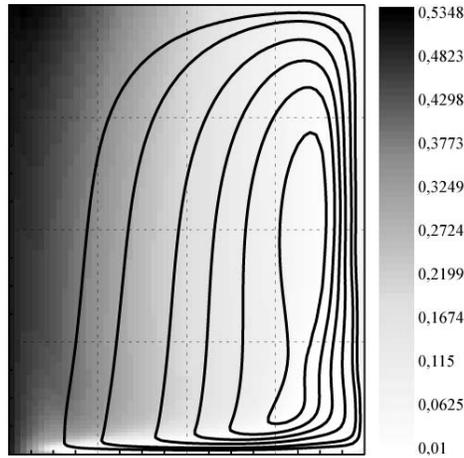


FIG. 2.9: *Champ de fraction volumique solide et lignes de champ ($\Delta\psi = 2.10^{-7}$) après 300s de solidification pour l'expérience C.*

Un canal horizontal est observé dans la partie basse du domaine. L'observation du champ de concentration sur la figure 2.10 nous montre que le liquide est enrichi dans cette partie du domaine. Ces observations sont qualitativement en accord avec les résultats expérimentaux et numériques obtenus par Quillet & al [127].

Notons que Quillet a obtenu trois freckles lors de ses simulations [127]. Dans notre cas, nous obtenons un unique canal. Cela peut s'expliquer par le fait que son modèle est un modèle d'équilibre solutal (la concentration moyenne dans une phase est égale à la concentration d'équilibre). Ces modèles ont tendance à favoriser l'apparition de canaux comme nous le montrerons plus loin dans l'exposé. Un avantage du modèle de Quillet & al. est sa facilité d'implémentation, puisqu'une unique équation d'espèce est nécessaire. Cependant, si l'hypothèse d'équilibre solutal est acceptable pour les mélanges présentant de forte diffusivités d'espèces, elle est en revanche très discutable lorsque les mélanges présentent de faibles diffusivités.

Expérience D : Cas-test avec alliage Aluminium-Cuivre

Wang & Beckermann [176] ont étudié la solidification d'un alliage aluminium-cuivre avec leur modèle triphasique de solidification équiaxe [175, 18] (ils distinguent les phases liquide interdendritique et liquide extradendritique). Ce cas-test est purement numérique (aucune expérience n'a été réalisée) mais les propriétés physiques correspondent à un alliage Aluminium-Cuivre, contenant 4% en masse de cuivre ont été prises comme référence. Il est refroidi dans une cavité

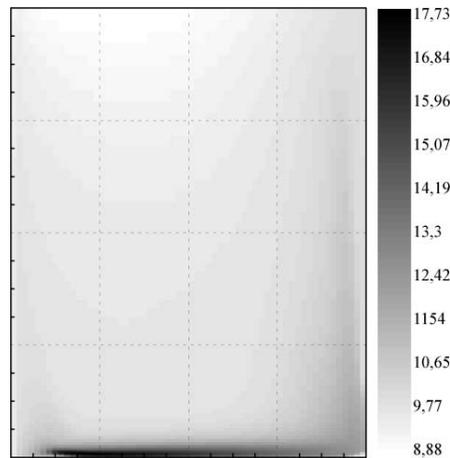


FIG. 2.10: *Champ de concentration (% in Bismuth) après 660s de solidification pour l'expérience C.*

rectangulaire, par la paroi gauche. Le modèle est tout d'abord testé en diffusion pure, sans convection dans aucune des phases. Dans un deuxième temps, les calculs sont réalisés en supposant la phase solide immobile et la phase liquide mobile. Enfin les derniers calculs supposent les deux phases mobiles.

La deuxième série de calculs est équivalente à un calcul de solidification colonnaire. C'est pourquoi nous avons utilisé les résultats de cette deuxième série pour se comparer à notre modèle. Les propriétés physiques des matériaux utilisés et les caractéristiques du calcul qui a été réalisées sont rappelées dans la table 2.2. Nous présentons à la figure 2.11 une comparaison du champ de macroségrégation obtenu par notre modèle avec celui de Wang & Beckermann [176]. Nous pouvons observer que la forme et l'ordre de grandeur des concentrations correspondent au calcul de Wang & Beckermann [176] : Une zone enrichie est obtenue en bas du domaine, qui remonte sur la face droite du volume. Wang & Beckermann ont obtenu des canaux ségrégés sur le côté gauche du volume et ceux-ci apparaissent aussi sur nos calculs, mais ils sont moins nombreux et moins marqués.

Expérience E : Cas-test avec alliage $NH_4Cl - H_2O$

Ce cas-test, que nous avons utilisé pour tester le modèle de solidification est issu des travaux de modélisation de Voller & Prakash [169]. Ils ont travaillé sur des modèles de mélanges pour la solidification colonnaire et la solidification équiaxe de mélanges binaires. Ils ont étudié les performances de leurs modèles sur un cas-test imaginaire avec un mélange présentant les propriétés d'un sel binaire $NH_4Cl - H_2O$. Les paramètres physiques utilisés pour la simulation de cette expérience sont listés dans le tableau 2.2. Nous avons repris cette expérience avec notre modèle colonnaire et avons comparé les résultats avec ceux de Voller & Prakash. Les résultats sont présentés sur la figure 2.12, où les lignes d'isovaleurs de concentration sont tracées. Nous retrouvons qualitativement la forme et l'ordre de grandeur des macroségrégations.

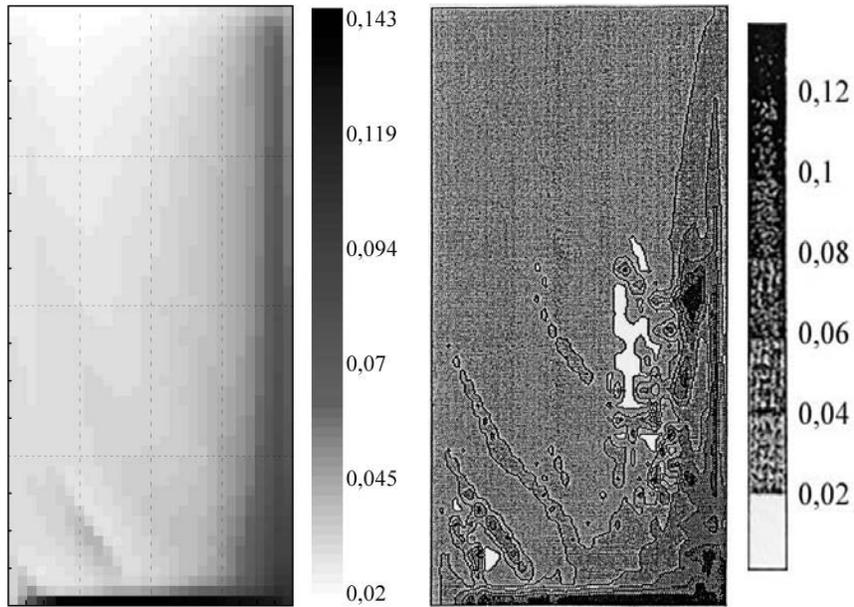


FIG. 2.11: Champ de concentration après 400 s de solidification pour l'expérience D. Gauche : Calculs réalisés avec notre modèle colonnaire ; Droite : Calculs réalisés par Wang & Beckermann [176] sans transport de solide.

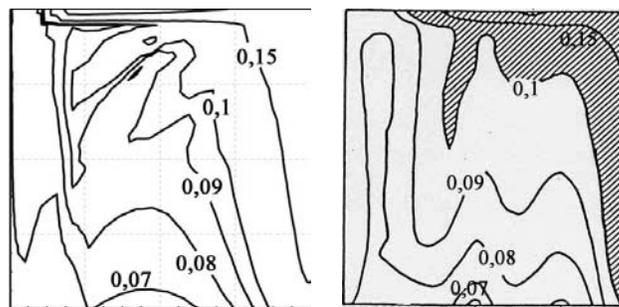


FIG. 2.12: Lignes d'isovaleurs de concentration après 3000 s de solidification pour l'expérience D. Gauche : Calculs réalisés avec notre modèle ; Droite : Calculs réalisés par Voller & Prakash [169]

Conclusion du travail de validation du modèle colonnaire

Pour conclure ce travail de comparaison, avec d'autres modèles ou expériences de solidification de mélanges binaires [169, 176, 127, 1], nous pouvons dire que les résultats que nous avons pu retrouver qualitativement des résultats présentés dans d'autres publications indépendantes. Différents alliages métalliques et un sel binaire, présentant des propriétés différentes et des conditions expérimentales différentes ont été utilisés. Sur la base de ces bons résultats qualitatifs, nous avons décidé d'utiliser le modèle pour mener une étude d'ordre de grandeur des termes qui ne sont pas pris en compte dans le modèle simplifié.

2.3.3 Discussion sur les termes simplifiés du modèle

L'objectif de cette partie est de mener une étude sur les termes non-classiques du modèle. L'étude va être réalisée avec les résultats de calcul des expériences A, B et C de la section 2.3.2. Nous ne visons pas à faire une étude complète de ces termes, étant donné que nous nous limitons à travailler sur trois expériences précises. L'étude de ces termes avec une implémentation dans un code de calcul reste donc un sujet ouvert.

Termes de Brinkman

Nous rappelons que les termes de Brinkman $(\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell, \mu_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell, \mu_\ell (\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell)$ [24, 61] apparaissent dans l'équation macroscopique (2.14) de conservation de la quantité de mouvement. Le premier est un terme de diffusion qui est important pour les fortes fractions liquides [24, 61]. Les deux autres termes qui dépendent du gradient de porosité sont des corrections du premier et sont généralement négligés.

Second terme de Brinkman Il est judicieux de comparer ce terme avec le premier terme de Brinkman (puisque'il en réalise une correction) et avec le terme de Darcy. Nous avons évalué dans chaque cas les quatre quotients suivants, et nous présentons les résultats obtenus pour l'expérience B :

$$Q1 = \left| \frac{\nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle_x^\ell}{\varepsilon_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell} \right| \text{ et } Q2 = \left| \frac{\nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle_y^\ell}{\varepsilon_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell} \right| \quad (2.24)$$

$$Q3 = \left| \frac{\nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle_x^\ell}{\varepsilon_\ell^2 K^{-1} \langle \vec{V}_\ell \rangle_x^\ell} \right| \text{ et } Q4 = \left| \frac{\nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle_y^\ell}{\varepsilon_\ell^2 K^{-1} \langle \vec{V}_\ell \rangle_y^\ell} \right| \quad (2.25)$$

Sur la figure 2.13, les rapports (2.24) sont présentés, avec sur la figure de gauche $Q1$, et sur la figure de droite $Q2$.

Sur la figure 2.14, les rapports 2.25 sont représentés, avec sur la figure de gauche $Q3$, et sur la figure de droite $Q4$.

Pour les trois cas-tests, nous avons trouvé que le second terme a le même ordre de grandeur que le premier dans la zone interdendritique. Au contraire, la comparaison avec le terme de Darcy montre que ce dernier est très supérieur au deuxième terme de Brinkmann dans la zone interdendritique. Ce dernier rapport prend des valeurs maximales en pointe de dendrites, où le

	Pb(wt 48%)-Sn	Pb-Sn(wt 5%)	Bi(wt 10%)-Sn	Al-Cu(wt 4%)	NH_4Cl (wt 10%) H_2O	
PROPRIETES PHYSIQUES						
C_{p_l}	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	200	260	250	1179	3000
C_{p_s}	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	200	260	250	766	3000
λ_e	$W.m^{-1}.K^{-1}$	50	55	60	77	0,4
λ_s	$W.m^{-1}.K^{-1}$	50	55	60	153	0,4
L	$J.kg^{-1}$	53550	61000	59430	397000	300000
ρ_l, ρ_s	$kg.m^{-3}$	9000	7000	7550	2450	1000
β_T	K^{-1}	10^{-4}	6.10^{-5}	$9,5.10^{-5}$	$9,41.10^{-5}$	4.10^{-5}
β_C		0,45	-0,053	-3.10^{-3}	$-1,02.10^{-2}$	0,025
μ_e	$kg.m^{-1}.s^{-1}$	10^{-3}	10^{-3}	$1,85.10^{-3}$	$1,2.10^{-3}$	10^{-3}
D_e	$m^2.s^{-1}$	10^{-9}	10^{-9}	$1,8.10^{-9}$	5.10^{-9}	$4,8.10^{-9}$
D_s	$m^2.s^{-1}$	10^{-13}	10^{-13}	10^{-13}	8.10^{-13}	10^{-13}
λ_1	μm	350	200	300	3000	300
λ_2	μm	40	65	300	1000	175
CONDITIONS EXPERIMENTALES						
T_{mi}	K	489	499	500	930	600
h	$W.m^{-2}.K^{-1}$	400	300	∞	250	400
T_{out}	K	298	298	$2K.min^{-1}$	293	400
H	cm	6	6	6	10	2,5
L	cm	10	10	5	5	2,5
DIAGRAMME DE PHASE						
T_m	K	600	505	505,15	933,5	630
T_{eut}	K	456	456	412,15	821,2	250
C_{eut}	$wt\%$	0,619	0,381	0,57	0,327	0,8
k		0,307	0,0656	0,36	0,173	0,3
MAILLAGES UTILISES						
Nombre selon x (n_x)		60	80	60	30	40
Type		régulier	régulier	régulier	régulier	régulier
Nombre selon y (n_y)		36	48	60	60	40
Type		$H(1 - \cos(\frac{n\pi}{2n_y}))$	$H(\sin(\frac{n\pi}{2n_y}))$	$H(1 - \cos(\frac{n\pi}{2n_y}))$	régulier	régulier

TAB. 2.2: Propriétés physiques des alliages métalliques.

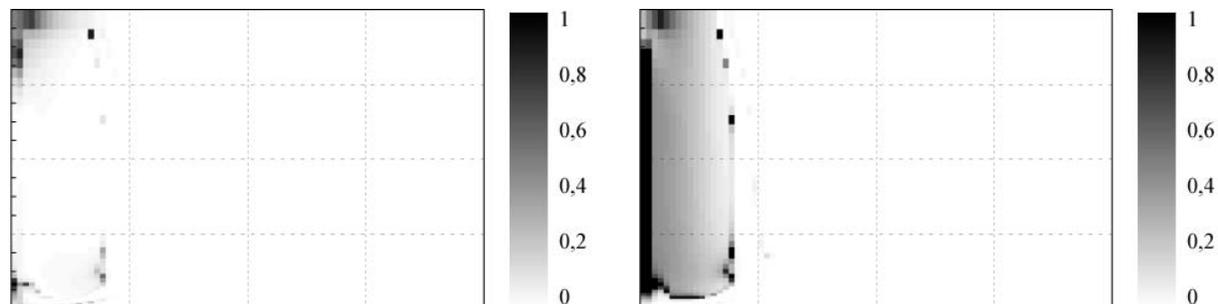


FIG. 2.13: Rapport entre le deuxième terme de Brinkman et le premier terme pour l'expérience B après 50s de solidification (Gauche : $Q1$ composante x , Droite : $Q2$ composante z).

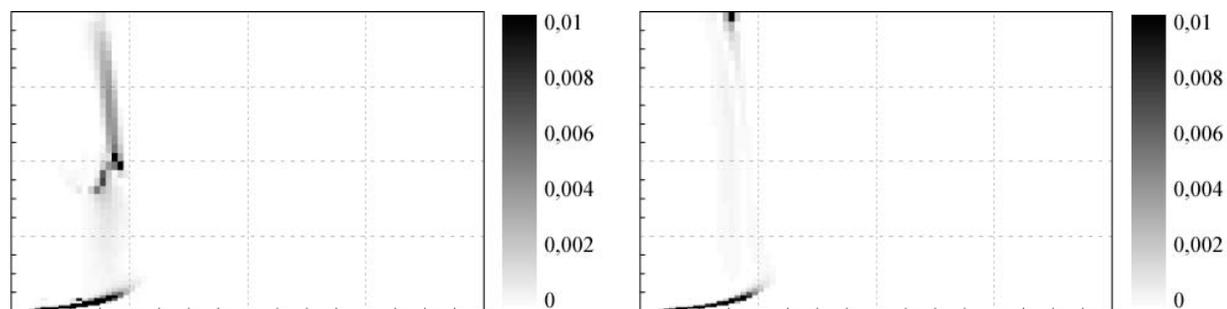


FIG. 2.14: Rapport entre le deuxième terme de Brinkman et le terme de Darcy pour l'expérience B après 50s de solidification (Gauche : $Q3$ composante x , Droite : $Q4$ composante z).

terme de Darcy devient faible, ce qui implique que le deuxième terme de Brinkman influence peu les résultats.

Troisième terme de Brinkman Dans le même but, nous pouvons comparer le troisième terme de Brinkman avec le premier terme et le terme de Darcy. Pour les expériences A, B et C, les quotients suivants ont été calculés :

$$Q5 = \left| \frac{(\nabla^2 \varepsilon_\ell) \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\varepsilon_\ell \nabla^2 \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell} \right| \quad \text{et} \quad Q6 = \left| \frac{\nabla^2 \varepsilon_\ell}{\varepsilon_\ell^2 K^{-1}} \right| \quad (2.26)$$

Les résultats sont présentés uniquement pour l'expérience B, sur la figure 2.15. La figure de gauche présente le rapport $Q5$, alors que sur la figure de droite le rapport $Q6$ est présenté. Nous observons que le troisième terme de Brinkmann a le même ordre de grandeur que le premier terme. Concernant la comparaison avec le terme de Darcy, nous remarquons que ce dernier domine largement dans le coeur de la zone interdendritique, et un peu moins (maximum 1%) en pointe de dendrite. De ce fait, le troisième terme de Brinkmann a très peu d'influence pour les trois cas étudiés.

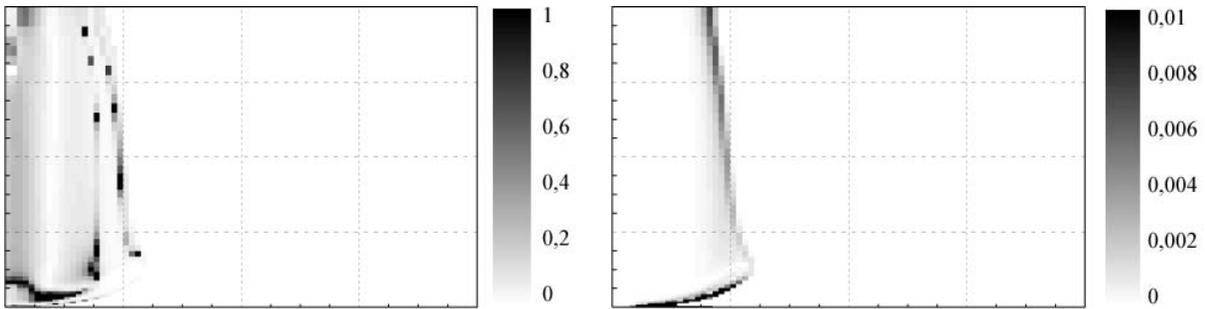


FIG. 2.15: Gauche : $Q5$ Rapport du troisième terme de Brinkman avec le premier terme. Droite : $Q6$ Rapport du troisième terme de Brinkman avec le terme de Darcy pour l'expérience B après 50s de solidification.

Termes avec gradients de porosité dans les équations de conservation des espèces

L'écriture des équations macroscopiques de conservation des espèces (2.15), (2.16) et de l'équation sur le taux de changement de phase (2.18), fait apparaître des termes dépendant de gradients de porosité. Afin de mesurer l'influence de ces termes, nous avons calculé les rapports suivants, sur la base des calculs réalisés avec les expériences A, B et C.

$$Q7 = \left| \frac{\rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) \cdot \nabla \langle C_k \rangle^k}{\rho_k h_{mk} (C_k^* - \langle C_k \rangle^k)} \right| \quad \text{et} \quad Q8 = \left| \frac{\nabla \cdot \rho_k D_k (\nabla \varepsilon_k) (C_k^* - \langle C_k \rangle^k)}{\rho_k h_{mk} (C_k^* - \langle C_k \rangle^k)} \right| \quad (2.27)$$

Nous avons trouvé que le quotient $Q7$ est négligeable dans le solide (nous n'avons jamais atteint des valeurs supérieures à 10^{-4}), et est légèrement supérieures dans la phase liquide (jusqu'à 10^{-3}). Les plus fortes valeurs sont rencontrées dans la zone dendritique. Concernant le quotient $Q8$, nous avons trouvé, dans les deux phases, le même ordre de grandeur que $Q7$, pour les cas-tests

A, B et C. Au vu des ces résultats, nous pouvons affirmer que les termes avec des gradients de porosité dans les équations des espèces sont négligeables pour les trois cas-tests étudiés.

Influence de la dispersion d'espèces Le phénomène de dispersion est dû aux couplages existants entre les fluctuations de vitesses et les fluctuations d'un autre champ (Concentration, température...). Ce couplage induit un transport à l'échelle macroscopique de ces différentes grandeurs. Ces effets sont d'autant plus importants dans l'axe de la vitesse moyenne. Nous nous intéressons plus particulièrement aux effets de dispersion des espèces dont la dépendance au nombre de Péclet local a été prouvée récemment [26] :

$$Pe = \frac{\langle \vec{V}_\ell \rangle_{\ell_k}}{D_\ell}$$

Dans l'expression du nombre de Péclet, l'échelle de longueur caractéristique est prise égale à l'espacement primaire interdendritique λ_1 . Bousquet-Mélou & al. [26] ont résolu numériquement le problème de fermeture associé à ce terme en cas de dispersion active, pour une structure donnée de zone interdendritique. Ils ont montré que pour de faibles nombres de Péclet ($Pe \leq 10$), les effets de dispersion étaient négligeables, alors que pour de fortes valeurs, ils ont montré la dépendance suivante du tenseur de diffusion-dispersion :

$$\frac{\mathbf{D}_\ell}{\varepsilon_\ell D_\ell} = A_D Pe^m$$

Le paramètre m dans l'expression de la dispersion est proche de 1,5, et dépend de la fraction volumique liquide.

Nous avons calculé les valeurs du nombre de Péclet sur la base des calculs réalisés sur les expériences A, B et C. Sur la figure 2.16, nous présentons les résultats obtenus avec l'expérience B. Le nombre de Péclet n'est tracé que dans la zone interdendritique, puisque c'est le seul endroit où ce nombre peut avoir une influence.

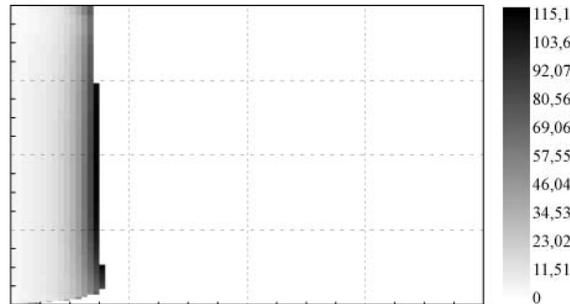


FIG. 2.16: Champ du nombre de Péclet pour l'expérience B après 50 s de solidification

Les plus fortes valeurs du nombre de Péclet se rencontrent en pointe de dendrites, une zone où l'écoulement conserve une forte intensité. Au contraire, dans le coeur de la zone interdendritique, l'écoulement est faible, ce qui réduit le nombre de Péclet dans cette zone. Nous avons aussi observé, que la solidification avançant au cours du temps, le nombre de Péclet diminue, ce qui résulte de la diminution de l'intensité de la convection lorsque la fraction solide de la

zone interdendritique augmente. Nous pouvons donc affirmer que les effets de dispersion, s'ils existent, sont importants en début de solidification et en pointe de dendrites.

Dans les trois cas, nous avons remarqué que le nombre de Péclet pouvait atteindre des valeurs supérieures à 100. Ces valeurs sont supérieures à la valeur limite de 10 à partir de laquelle la dispersion a un effet significatif [26].

Nous avons donc réalisé des calculs complémentaires pour tester les effets de dispersion, en prenant un tenseur de diffusion-dispersion anisotrope. Nous avons supposé que dans la zone interdendritique, la vitesse du fluide est partout verticale (orthogonale à l'axe des dendrites). Cette approximation est correcte sauf au sommet et au pied de la zone interdendritique. Cela donne une direction de dispersion axiale dans le sens vertical et une direction de dispersion radiale dans le sens horizontal. Nous avons utilisé les corrélations de Bousquet-Mélou & al. [26] :

$$\mathbf{D}_{\ell y} = \varepsilon_{\ell} D_{\ell} \left(\frac{Pe}{10} \right)^{1,5} \text{ et } \mathbf{D}_{\ell x} = \frac{\mathbf{D}_{\ell y}}{10} \quad (2.28)$$

Nous avons réalisé de nouveaux calculs sur le cas test en Etain-Bismuth (expérience C). Une très faible influence de la dispersion a été observée sur ce cas test. Pour tous les champs, nous n'avons jamais trouvé d'écarts relatifs supérieur à 0,01. Nous pouvons donc déduire que pour ce cas-test, la dispersion augmente notablement les transferts par diffusion des espèces, mais que ces transferts ne deviennent pas le mode de transfert principal, qui reste la convection. Une autre façon d'exprimer cette idée, est que le nombre de Péclet macroscopique $\left(\frac{\langle \vec{V}_{\ell} \rangle^{\ell} L}{D_{\ell}} \right)$, calculé avec le coefficient de diffusion dispersion reste faible.

2.3.4 Etude paramétrique de l'influence de la perméabilité et des coefficients d'échange d'espèces

Dans cette partie nous allons étudier l'influence de deux coefficients macroscopiques d'échanges : la perméabilité et les coefficients d'échange interfaciaux d'espèces. Afin d'illustrer la discussion, des calculs ont été réalisés avec les expériences A, B, C. Dans ce document, et pour illustrer les résultats, nous présentons les résultats sur l'expérience C.

Influence des coefficients d'échange d'espèces

La plupart des modèles de solidification font l'hypothèse d'équilibre chimique [1, 169, 84, 127], ce qui implique que la concentration moyenne dans une phase égale la concentration d'équilibre. Une particularité de notre modèle réside dans l'existence d'un déséquilibre chimique [107, 175, 176, 26, 61]. Les coefficients d'échange d'espèce relient le flux d'espèces à l'interface, à l'écart entre la concentration à l'interface (égale à la concentration d'équilibre) et la concentration moyenne dans le coeur de la phase. Il est donc intéressant de quantifier l'influence de ces paramètres sur la solidification. Nous avons effectué des calculs avec la corrélation (2.23), modifiée par un coefficient multiplicatif $(h_{m_s} = A \times 12 \frac{D_s}{\lambda_2^2 \varepsilon_s} \text{ et } h_{m_{\ell s}} = A \times 12 \frac{D_{\ell}}{\lambda_2^2 \varepsilon_{\ell}})$. Nous avons pris : $A = 0, 1 / 1 / 10 / 20$.

Dans un premier temps, nous avons calculé une moyenne du rapport entre les flux d'espèce vers le solide, aux flux vers le liquide $\left| \frac{\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s)}{\rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)} \right|$ pour chaque expérience, et pour chacune des valeurs du coefficient A . Nous avons toujours trouvé un rapport très inférieur à 1 ce qui traduit l'importance des transferts coté liquide devant ceux dans le solide. Cela est en grande partie dû au rapport entre les diffusivités des deux phases ($\frac{D_\ell}{D_s} \sim 10^4$). Nous en déduisons que dans l'équation (2.18) sur le taux de changement de phase, le flux interfacial d'espèces coté liquide est celui qui pilote le changement de phase.

Effets sur le non-équilibre Pour chaque expérience, et pour chaque coefficient A , nous avons calculé l'écart à l'équilibre chimique relatif dans les deux phases :

$$\left| \frac{C_s^* - \langle C_s \rangle^s}{\langle C_s \rangle^s} \right| \quad \text{et} \quad \left| \frac{C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell}{\langle C_\ell \rangle^\ell} \right| \quad (2.29)$$

Nous reportons dans le tableau 2.3 les écarts observés dans chacune des deux phases. Dans la phase solide, l'écart à l'équilibre est important (10%) et ne dépend pas du coefficient A . Au contraire, dans la phase liquide, cet écart est plus faible, et nous avons remarqué que le déséquilibre relatif est inversement proportionnel au coefficient d'échange. Il semble donc que le déséquilibre "s'ajuste" aux coefficients d'échanges pour assurer un flux d'espèces $\rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)$ constant. Il résulte que le taux de changement de phase donné par l'équation (2.18) est lui aussi constant.

Coefficient A	non-équilibre relatif (liquide)	non-équilibre relatif (solide)
0, 1	0, 05	0, 1
1	0, 004	0, 1
10	0, 0005	0, 1
20	0, 0003	0, 1

TAB. 2.3: Influence du paramètre multiplicatif du coefficient d'échange sur l'écart à l'équilibre dans le liquide et le solide pour l'expérience C

Nous voyons par ailleurs sur ces calculs, que notre modèle à non-équilibre chimique tend vers un modèle à l'équilibre lorsque les coefficients d'échange sont choisis grands. Il faut cependant noter que les temps de calculs augmentent d'autant plus.

Effet sur le champ de fraction solide Nous venons de voir que des changements dans les coefficients multiplicatifs sur les coefficients d'échange avaient peu d'influence sur le taux de changement de phase local. Nous avons cependant pu observer une influence de ce coefficient d'échange sur l'apparition de canaux ségrégués dans la zone interdendritique. Nous pouvons observer cette influence sur la figure 2.17, où nous représentons superposées des lignes d'isovaleurs de fractions volumiques solides obtenues pour deux paramètres multiplicatifs des coefficients d'échanges. Ces lignes d'isovaleurs présentent une forme beaucoup plus sinueuse pour le cas d'un fort paramètre multiplicatif, ce qui accentue la présence du canal ségrégué.

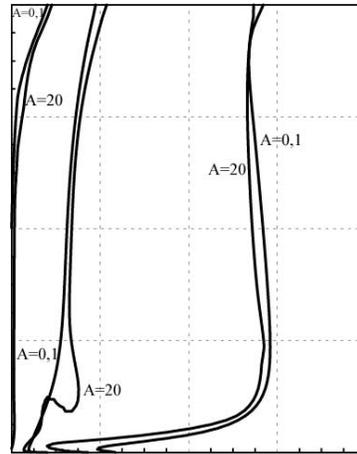


FIG. 2.17: Lignes d'isovaleurs de fraction volumique solide (0.5, 0.4, 0.1, de gauche à droite sur la figure) pour $A = 0.1$, $A = 20$ après 300s de solidification pour l'expérience C.

Effet sur le champ de concentration Nous avons vu à la partie précédente l'effet des coefficients d'échanges d'espèces sur la forme des isovaleurs de fraction solide et l'apparition de canaux ségrégués. Des modifications semblables se retrouvent sur le champ de concentration. Sur la figure 2.18 les lignes d'isovaleurs de concentrations obtenues pour le même cas test sont représentées. Nous remarquons les déformations des lignes d'isovaleurs aux mêmes endroits que pour les fractions solides.

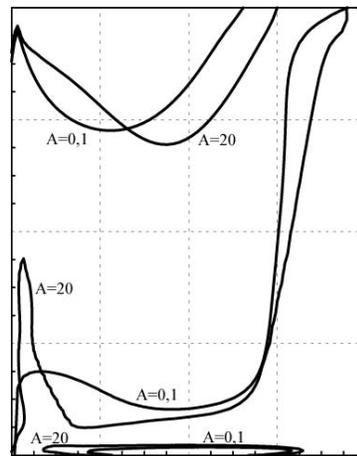


FIG. 2.18: Lignes d'isovaleurs d'enrichissement en soluté (-5% , 0% , 35% du haut en bas sur la figure) après 600s de solidification pour $A = 0.1$ et $A = 20$ pour l'expérience C.

Un autre effet a été observé sur l'amplitude finale des valeurs du champ de concentration. Une augmentation du coefficient d'échange provoque une augmentation de cette amplitude. Lorsque le coefficient $A = 0, 1$, les concentrations après 600s de solidification étaient comprises entre 9% et $15,74\%$. Au même instant, pour une valeur de $A = 1$, les valeurs sont comprises entre $8,9\%$ et $17,37\%$. Pour expliquer cette observation, nous pouvons remarquer que le coefficient

d'échange augmentant, les concentrations moyennes sont proches des concentrations d'équilibre, ce qui augmente l'écart entre la concentration moyenne dans une phase et la concentration moyenne dans l'autre phase. Il résulte une plus forte microségrégation, qui produit, par les mouvements de convection naturelle, un champ de macroségrégation d'autant plus fort.

Influence de la perméabilité

La perméabilité a un rôle très important dans le processus de solidification. En effet, ce paramètre a une influence directe sur l'écoulement liquide dans la zone interdendritique, qui lui-même a une forte influence sur le transport des espèces et de l'énergie. Une augmentation de la perméabilité va entraîner une augmentation de l'intensité du flux liquide. Afin de tester l'influence de ce paramètre, nous avons réalisé des calculs après avoir multiplié la loi de Kozeny Carman (équation C.4) par 0,1 / 10 et 100.

Effet sur le champ de concentration Nous avons remarqué que le choix d'une grande perméabilité entraînait des modifications du champ de concentration à l'échelle macroscopique. Sur l'expérience C, nous avons noté qu'une perméabilité réduite 10 fois menait à un champ de concentration finale compris entre 9,67% et 10,92%. La corrélation classique de la perméabilité a mené à un champ de concentration s'étendant de 8,9% à 17,37%, alors que le choix d'une corrélation 10 fois supérieure aboutit à un champ de concentration compris entre 6,9% et 18,5%. Cette observation s'explique par le fait qu'en augmentant la perméabilité, l'écoulement liquide est plus intense, et provoque un plus grand déplacement des espèces et ainsi de grands écarts de concentration.

Effet sur le champ de fraction solide Nous avons étudié l'influence de la perméabilité sur le champ de fraction solide. Pour chacune des hypothèses sur la perméabilité, nous avons étudié deux hypothèses pour les coefficients d'échanges d'espèces :

- Cas 1 : La corrélation classique ($A = 1$) permet de tester des cas où le déséquilibre chimique est assez important.

- Cas 2 : La corrélation classique (2.21) multipliée par le coefficient multiplicatif $A = 10$ permet de tester l'influence de la perméabilité lorsque l'on est proche de l'équilibre chimique.

Dans les situations à fort déséquilibre (cas 1), nous avons observé que les variations de lois de perméabilité avaient très peu d'influence sur l'avancée de la zone interdendritique (les lignes d'isovaleurs de fraction volumique solide progressent à la même vitesse). Par ailleurs, nous n'avons pas observé d'influence significative sur la formation de canaux ségrégués.

Dans les situations où la composition du mélange se trouve proche de l'équilibre (cas 2), nous avons remarqué qu'une augmentation de la loi de perméabilité provoquait l'apparition des canaux ségrégués. Nous représentons à la figure 2.19 les résultats obtenus avec différentes corrélations de perméabilité (la corrélation de Kozeny-Carman, et la même corrélation multipliée par 100). La figure de gauche présente les lignes d'isovaleurs de fractions volumiques solide 0,3 et 0,6 après 600s de solidification pour les deux lois de perméabilité pour l'expérience C. Cette figure montre la forme beaucoup plus déformée de l'isovaleur 0,6 pour une forte perméabilité. La figure de droite présente le champ de fraction solide pour la deuxième loi de perméabilité.

La présence des canaux y est clairement visible : Deux canaux inclinés et très marqués en bas à gauche du domaine et deux autres canaux plus fins à mi-hauteur.

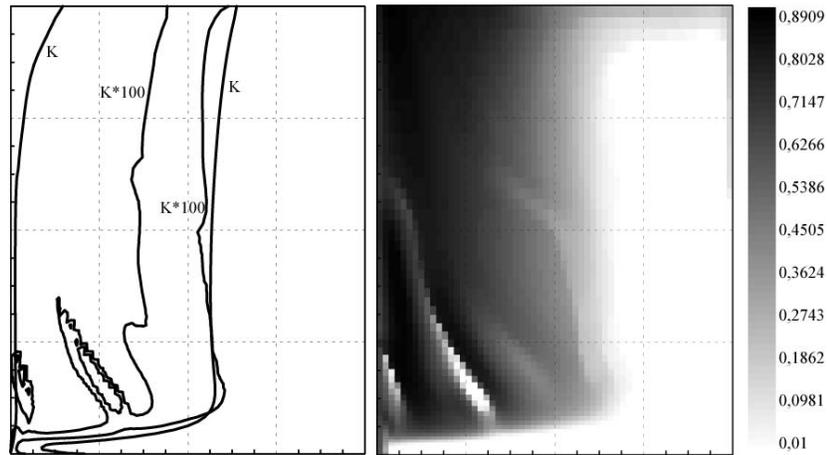


FIG. 2.19: Influence de la Perméabilité sur le champ de fraction volumique solide pour un coefficient d'échange d'espèce multiplié par 10 pour l'expérience C. Gauche : lignes d'isovaleurs 0,3 et 0,6 avec une Perméabilité multipliée par 100 et 1. Droite : Champ obtenu pour une perméabilité multipliée par 100.

2.4 Conclusion et limitation du modèle colonnaire

Le modèle macroscopique complet de solidification colonnaire de mélanges binaires a été développé dans le but de tenir compte au mieux des interactions des différentes échelles dans les processus de solidification. Les calculs réalisés en fin de chapitre montrent la nécessité de telles approches, car des modifications dans les corrélations des coefficients macroscopiques de transferts (tel que la perméabilité ou les coefficients d'échanges d'espèces) changent notablement les résultats

Une version simplifiée de ce modèle a été testée sur 5 cas-tests de solidification et a donné de bons résultats qualitatifs par rapport aux publications auxquelles nous nous sommes comparés. Ces calculs ont permis de tester les termes du modèle complet qui ont été négligés dans la version simplifiée. Sur les expériences A, B et C, leur ordre de grandeur était faible et nous n'avons pas entrepris de les implémenter. Nous ne pouvons cependant pas prouver qu'ils sont négligeables dans toutes situations.

La principale limitation du modèle réside dans l'impossibilité de modéliser la surfusion en amont de la zone interdendritique. Pour expliquer ce fait, nous avons tracé à la figure 2.20, le profil sur l'axe horizontal du champ de fraction volumique solide pour l'expérience du Madylam (Expérience C à la partie 2.3) après 600s de solidification.

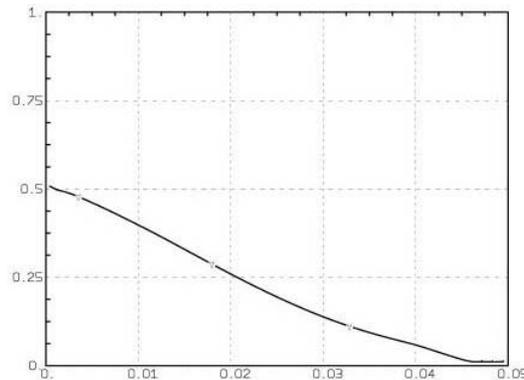


FIG. 2.20: Expérience de l'EPM (Expérience C), profil sur l'axe horizontal de la fraction volumique solide, à la hauteur 3cm, après 600s

La zone interdendritique présente une épaisseur de 5cm, sur laquelle la fraction volumique varie de 0 à 0,5 ce qui correspond à de longues dendrites, supérieures aux tailles réelles observées.

Nous obtenons ce type de profil, car la solidification est pilotée uniquement par les coefficients d'échange d'espèces (équation (2.23)), qui sont fonctions de la porosité locale (équation (2.18)). Dès qu'un déséquilibre thermodynamique intervient dans une maille, la solidification commence, sans tenir compte de l'aspect cinétique de la croissance des dendrites. Ainsi, une maille se comporte indépendamment des mailles les plus proches, et on ne peut avoir de retard à la solidification, ni de surfusion.

Une façon de permettre à notre modèle de modéliser la surfusion, serait de ralentir la croissance colonnaire, en introduisant la cinétique d'avancée du front. Nous proposerons une méthode dans le chapitre 3, ce qui nous permettra de coupler notre modèle colonnaire avec un modèle

équiaxe. Mais, dans un premier temps, nous allons présenter au chapitre 4, le développement d'un modèle de solidification équiaxe seul, plus simple à modéliser.

Chapitre 3

Modèle macroscopique de solidification équiaxe

3.1 Stratégie pour le développement du modèle équiaxe

Nous avons présenté dans le chapitre 2, un modèle macroscopique de solidification colonnaire de mélanges binaires, obtenu à l'aide d'une méthode de prise de moyenne volumique. Cette méthode se prête bien à la modélisation des zones interdendritiques colonnaires, car elles présentent une géométrie compliquée sur laquelle on ne peut traiter les transferts à l'échelle locale. Des problèmes de fermeture portant sur les grandeurs fluctuantes des champs sont établis à cette dernière échelle et peuvent être résolus sur des cellules unitaires périodiques représentatives. Dans la suite de cette section, une extension de cette méthode va être proposée pour traiter le cas de la solidification équiaxe.

3.1.1 Difficultés inhérentes à l'application de la prise de moyenne volumique pour le régime équiaxe

Transport de phase solide

Le processus de solidification équiaxe présente la particularité de ne pas former une phase solide consolidée. Les cristaux qui apparaissent sont emportés par convection et nous sommes en présence de deux phases mobiles qui s'interpénètrent. La méthode de prise de moyenne volumique reste applicable, mais le développement de problèmes de fermeture sur les fluctuations des champs, au sens de Quintard & Whitaker [132, 133, 134], et leur résolution sur des cellules unitaires périodiques est difficile à réaliser, puisque la phase solide est mobile.

Malgré cela, la prise de moyenne a déjà été employée pour modéliser la solidification équiaxe de mélanges binaires par Ni & Beckermann [107, 108], Ni & Incropera [109, 110] ainsi que Wang & Beckermann [173, 174, 18], Feller & Beckermann [45] ou Gu & Beckermann [68, 67]. Ces différents auteurs utilisent cette méthode comme un moyen d'obtenir la forme macroscopique des équations à partir des équations microscopiques. Les coefficients de transport macroscopiques qui interviennent dans les équations sont modélisés en utilisant des expressions empiriques ou expérimentales.

Caractère discontinu de la phase solide

Contrairement à la phase liquide, continue, le solide présente une structure discontinue avec chaque grain indépendant des autres. Une dispersion importante des champs physiques (tel que la vitesse) est possible d'une particule à une autre. Dans d'autre contexte, où les écoulements diphasiques avec une phase solide dispersée interviennent, comme les lits fluidisés [8, 74, 72, 54] ou la sédimentation [64, 111], des méthodes statistiques ont été employées. Dans l'annexe E, nous décrivons l'une d'elle, la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 54]. La fermeture des équations macroscopiques est réalisée en introduisant un champ d'énergie cinétique d'agitation pour modéliser certains termes complexes [80, 39, 54].

Des phénomènes présentant d'importantes fluctuations temporelles

Lors de la solidification d'une zone dendritique colonnaire, lorsque seuls des écoulements liquides laminaires sont considérés, les champs présentent d'importantes variations spatiales [129, 133, 134]. Ainsi, le champ de vitesse de l'écoulement dans la zone dendritique présente des hétérogénéités spatiales directement reliées à la morphologie des dendrites [129, 133, 134]. Au contraire, les variations temporelles des champs sont très limitées [131] car un régime stationnaire est rapidement atteint [131]. C'est pourquoi la méthode de prise de moyenne volumique seule est bien adaptée à la modélisation des milieux poreux.

Lors de la solidification de grains équiaxes, de grandes variations spatiales des champs sont encore observables [8, 74, 72, 54]. En plus s'ajoutent des phénomènes à des échelles temporelles très courtes, comme les chocs, événements très brefs, mais très intenses. Les transferts (de quantité de mouvement par exemple) qui résultent des chocs, ne peuvent être appréhendés par une seule moyenne volumique, car elle ne peut pas intégrer les phénomènes transitoires [37, 54].

3.1.2 Stratégie choisie

Combiner une moyenne spatiale avec une moyenne temporelle

Afin de poursuivre le travail réalisé pour la modélisation de la croissance colonnaire, nous allons utiliser la prise de moyenne volumique [129, 133, 134] suivie d'une prise de moyenne temporelle [37, 32] pour modéliser la solidification équiaxe. Ainsi, il sera possible d'intégrer l'influence des phénomènes transitoires courts tels que les chocs, dans les transferts macroscopiques. Une description de la méthode de moyenne temporelle est décrite dans l'annexe B où une discussion est réalisée pour comprendre les implications sur les développements du modèle. Nous y avons montré que pour la plupart des termes classiques, la moyenne temporelle est sans effet sur le résultat : $\overline{\langle \cdot \rangle} = \langle \cdot \rangle$, ce qui implique que la deuxième étape de moyenne ne sera traitée que pour un nombre limité de termes.

En l'appliquant à chacune des deux phases, nous allons aboutir à des équations de conservation portant sur les grandeurs moyennées suivantes : $\varepsilon_c, \varepsilon_\ell, \langle \vec{V}_c \rangle^c, \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell, \langle C_\ell \rangle^\ell, \langle C_c \rangle^c, \langle T_\ell \rangle^\ell, \langle T_c \rangle^c$. L'application rigoureuse des théorèmes de prise de moyenne va faire apparaître des termes dépendant des fluctuations des divers champs : $\vec{V}_c, \vec{V}_\ell, \tilde{C}_\ell, \tilde{C}_c, \tilde{T}_\ell, \tilde{T}_c$. Nous allons poser les problèmes de fermeture associés à ces champs, ce qui n'a pas encore été réalisé pour le cas de

la solidification équiaxe. Nous distinguerons alors le traitement des termes contenant $\widetilde{\vec{V}}_c$, des autres termes, en utilisant un formalisme plus proche de la méthode statistique.

Fermeture des termes dépendant de l'agitation des cristaux

Comme dans la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 54], nous allons écrire une équation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation des cristaux qui sera quantifiée par la grandeur : $\langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c$. Cette grandeur nous permettra, en s'inspirant de la méthode statistique de fermer les termes non-classiques dépendant de $\widetilde{\vec{V}}_c$. A notre connaissance, ce genre de travail n'a jamais été réalisé en utilisant la méthode de prise de moyenne volumique. Cependant, une comparaison de nos résultats sera possible avec ceux de la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 74, 72] (cf. annexe E).

Fermeture des autres termes

Pour modéliser les termes dépendant des fluctuations des champs autres que $\widetilde{\vec{V}}_c$, nous allons supposer que l'agitation cinétique des cristaux est nulle (la validité de cette hypothèse n'a pas été vérifiée). Sous cette hypothèse, les cristaux d'un volume représentatif se déplacent tous avec la vitesse $\langle \vec{V}_c \rangle^c$. Si nous nous plaçons dans le repère lié au déplacement moyen et instantané des cristaux, nous sommes en mesure de résoudre des problèmes de fermeture par la méthode de Quintard & Whitaker [132, 133, 134]. Dans ce nouveau repère, les seuls champs modifiés sont la vitesse liquide, qui devient $\vec{V}_\ell^* = \vec{V}_\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c$, et la vitesse solide qui devient nulle sur V_0 . Les équations macroscopiques dans le nouveau repère sont identiques à celles obtenues dans le repère de l'expérience ($\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ devient $\langle \vec{V}_\ell^* \rangle^\ell = \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c$, $\langle \vec{V}_c \rangle^c$ devient 0, alors que $\widetilde{\vec{V}}_\ell^* = \widetilde{\vec{V}}_\ell$). De même, les équations vérifiées par les champs fluctuants restent semblables à celles obtenues dans l'ancien repère, en remplaçant $\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ et $\langle \vec{V}_c \rangle^c$. Dans le tableau 3.1, sont listés les différences entre les champs dans les deux repères possibles.

Nous poserons donc les problèmes de fermeture dans le repère mobile lié au déplacement moyen des cristaux. Ils pourront être résolus de la même façon que pour les modèles d'écoulements en milieux poreux [24, 132, 133, 134, 60, 106] car dans ce repère, la phase solide est immobile. La résolution ne sera pas abordée dans cette étude. C'est un travail très vaste qui n'a encore jamais été abordé pour une phase équiaxe dispersée.

3.1.3 Autres hypothèses

Mouvement de translation des cristaux

Pour chaque cristal, la vitesse d'un point quelconque se compose de la vitesse du centre de gravité et d'une vitesse instantanée de rotation. Ce mouvement de rotation des particules est généré par des chocs ou des gradients de vitesse liquide. Nous négligeons, dans notre modèle, la rotation individuelle de chaque grain car elle a un effet négligeable sur les transports macroscopiques. Cette hypothèse est généralement prise dans les modèles de transport de phase solide dispersée [4, 153, 117, 73, 74, 72] et de solidification équiaxe [108, 174].

Repère fixe	Repère mobile (vitesse $\langle \vec{V}_c \rangle^c$)
\vec{V}_ℓ	$\vec{V}_\ell^* = \vec{V}_\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c$
\vec{V}_c	$\vec{V}_c^* = \vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c = 0$ (Pour les problèmes de fermeture)
$\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$	$\langle \vec{V}_\ell^* \rangle^\ell = \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c$
$\langle \vec{V}_c \rangle^c$	$\langle \vec{V}_c^* \rangle^c = 0$
$\overline{\vec{V}}_\ell$	$\overline{\vec{V}}_\ell^* = \overline{\vec{V}}_\ell$
équations microscopiques	équations identiques (avec \vec{V}_ℓ^* et \vec{V}_c^*)
équations macroscopiques	équations identiques (avec $\langle \vec{V}_\ell^* \rangle^\ell$ et $\langle \vec{V}_c^* \rangle^c$)
équations de fermeture	équations identiques (avec $\langle \vec{V}_\ell^* \rangle^\ell$, \vec{V}_ℓ^* , $\langle \vec{V}_c^* \rangle^c$ et \vec{V}_c^*)

TAB. 3.1: Différence entre les différents repères.

Equilibre thermique

Nous allons supposer, pour l'équation de conservation de l'énergie que la température moyenne dans une phase est égale à la température moyenne dans l'autre phase : $\langle T_c \rangle^c = \langle T_\ell \rangle^\ell = \langle T \rangle$. Cette hypothèse, dite d'équilibre local, est répandue dans le contexte de la solidification des mélanges [135, 56, 130, 57, 181]. Des calculs réalisés par Ni & Beckermann [108], avec un modèle à deux températures pour modéliser la solidification globulaire d'un alliage binaire $Al - 4\%Cu$ ont montré que les températures dans chacune des phases étaient très proches. Les fortes valeurs du nombre de Lewis (rapport des diffusivités thermiques et massiques), autour de 10^4 expliquent que le champ de température s'homogénéise plus rapidement que le champ d'espèces.

Découplage des problèmes de fermeture

Pour les phénomènes de changements de phase dans les mélanges multiconstituants, les transferts de quantité de mouvement, d'énergie et de masse sont fortement couplés. Il résulte que les équations différentielles sur les fluctuations des champs, présentent elles aussi un couplage. Pour la résolution des problèmes de fermeture, nous allons supposer que l'on peut découpler les différents problèmes, ce qui facilitera leur résolution. Bousquet-Mélou [24] a montré que lorsqu'il y avait une grande séparation d'échelle, les problèmes de fermeture massique et thermique sont découplés. Il a vérifié cela pour le cas de structures colonnaires. Nous allons procéder comme Bousquet-Mélou & al. [24, 61] et suggérer la résolution du problème sur la fluctuation de vitesse en premier, puis des champs d'espèce et d'énergie en utilisant le champ de vitesse.

3.2 Equations de conservation de la masse

3.2.1 Equation macroscopique

A l'échelle microscopique, la présence de la phase solide est caractérisée par une fonction indicatrice de phase χ_c , discontinue, qui prend la valeur 1 sur la phase solide et 0 ailleurs. On définit la fraction volumique solide, comme la moyenne sur le Volume Élémentaire Représentatif V_0 (défini sur la figure A.1) : $\varepsilon_c = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \chi_c dv$ Appliquons le théorème de permutation de prise de moyenne et de dérivée temporelle [102, 183] (Rappelé dans l'équation (A.6)) au champ χ_c .

$$\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} = \underbrace{\langle \frac{\partial \chi_c}{\partial t} \rangle}_{=0} + \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{w}_{\ell c} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \quad (3.1)$$

Dans le deuxième terme de droite de l'équation (3.1), décomposons la vitesse d'un point de l'interface $\vec{w}_{\ell c}$ en la vitesse de la particule solide \vec{V}_c et la vitesse de changement de phase \vec{w} : $\vec{w}_{\ell c} = \vec{V}_c + \vec{w}$:

$$\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} = \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \quad (3.2)$$

Nous rappelons que le deuxième terme de droite de l'équation (3.2), est le taux de changement de phase τ . Pour traiter le premier terme de droite de l'équation 3.2, rappelons que $\nabla \cdot \vec{V}_c = 0$ (cf équation (2.5)). Après application du théorème (A.7) de permutation de la moyenne avec la dérivée spatiale :

$$\langle \nabla \cdot \vec{V}_c \rangle = \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c + \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = 0 \quad (3.3)$$

L'équation de conservation de fraction volumique de cristaux s'écrit donc sous la forme :

$$\boxed{\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c = \tau} \quad (3.4)$$

De même, nous pouvons écrire une équation de conservation de la masse dans la phase liquide :

$$\boxed{\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = -\tau} \quad (3.5)$$

3.2.2 Equation de fermeture

L'équation de fermeture porte sur la fluctuation de la vitesse liquide et peut être développée, en appliquant à l'équation (2.5), la décomposition de Gray [65] (rappelée dans l'annexe A). Le résultat est multiplié par ε_ℓ et retranché à l'équation macroscopique 3.5 :

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell - \varepsilon_\ell \nabla \cdot \vec{\widetilde{V}}_\ell = -\tau \quad (3.6)$$

Dans l'équation 3.6, nous allons mener une analyse d'ordre de grandeur des différents termes, afin de simplifier ceux qui sont négligeables. On sait que les fluctuations spatiales des grandeurs moyennées s'effectuent sur l'échelle de longueur macroscopique L_D . Les dérivées spatiales des grandeurs moyennées ont donc l'ordre de grandeur [129, 133, 134] :

$$| \nabla \varepsilon_\ell | \sim \frac{1}{L_D} \quad (3.7)$$

Les variations des grandeurs fluctuantes s'effectuent à l'échelle du pore l_ε . Les dérivées spatiales des grandeurs fluctuantes ont donc l'ordre de grandeur [129, 133, 134] :

$$| \nabla \vec{\widetilde{V}}_\ell | \sim \frac{\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{l_\varepsilon} \quad (3.8)$$

Ainsi, pour les termes de l'équation (3.6), la séparation des échelles de longueurs microscopiques et macroscopiques : $l_\varepsilon \ll L_D$ [129, 19], implique la relation :

$$| \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell | \ll | \varepsilon_\ell \nabla \cdot \vec{\widetilde{V}}_\ell | \quad (3.9)$$

Par ailleurs nous avons discuté, dans la partie 3.1 de la possibilité de résoudre les problèmes de fermeture dans le repère lié au déplacement moyen des cristaux (à la vitesse $\langle \vec{V}_c \rangle^e$). Nous avons choisi de négliger la fluctuation des vitesses des cristaux pour rendre possible la résolution des problèmes de fermeture. Sous cette hypothèse, nous avons la relation suivante, valable uniquement dans le repère mobile [24, 61] :

$$\tau = \frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} = -\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} \quad (3.10)$$

L'équation de fermeture portant sur la fluctuation de vitesse liquide et vérifiée dans le repère mobile, est obtenue en appliquant les relations 3.9 et 3.10 dans l'équation 3.6 :

$$\boxed{\nabla \cdot \vec{\widetilde{V}}_\ell = 0} \quad (3.11)$$

3.3 Quantité de mouvement dans la phase liquide

3.3.1 Ecriture de l'équation moyennée

L'équation microscopique de conservation de la quantité de mouvement dans la phase liquide (équation (2.2)) est moyennée sur V_0 . En appliquant les théorèmes de permutation de la prise de moyenne avec les dérivées temporelle et spatiale [102, 183] qui sont rappelés dans l'annexe A, nous avons obtenu l'équation suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} &= -\nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \vec{V}_\ell \rangle^\ell) - \varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell - \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{P}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \\ &+ \langle \mu_\ell \nabla^2 \vec{V}_\ell \rangle + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{g} + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} (\rho_\ell \vec{V}_\ell) \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \end{aligned} \quad (3.12)$$

Dans le terme de diffusion (quatrième terme de droite de l'équation (3.12)), appliquons deux fois le théorème de permutation de la prise de moyenne avec la dérivée spatiale [102, 183, 24, 61] :

$$\begin{aligned} \langle \mu_\ell \nabla^2 \vec{V}_\ell \rangle &= \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \mu_\ell \vec{V}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \\ &- \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \mu_\ell \nabla \vec{V}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \end{aligned} \quad (3.13)$$

La décomposition (3.13) fait apparaître le terme de diffusion macroscopique classique, un terme en gradient de fraction volumique liquide qui quantifie les effets des hétérogénéités du milieu poreux, et deux intégrales de surface.

Pour le terme de changement de phase de l'équation (3.12), la vitesse du liquide sur l'interface solide-liquide $A_{\ell c}$ (représenté dans l'image A.1) est égale à la vitesse solide \vec{V}_c . Utilisons la décomposition de Gray [65] (Rappelée dans l'équation (A.5)) de la vitesse solide :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell \vec{V}_c (\vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c}) dA = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^c (\vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c}) dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell \widetilde{\vec{V}}_c (\vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c}) dA \quad (3.14)$$

Etant donné que la vitesse moyenne de la phase solide varie très peu sur l'ensemble de V_0 , et en reconnaissant l'expression du taux de changement de phase, nous pouvons écrire que le premier terme de (3.14) s'écrit :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^c (\vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c}) dA = -\rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau \quad (3.15)$$

Quant au second terme de (3.14), remarquons que $\widetilde{\vec{V}}_c$ est en moyenne nul sur V_0 et sur $A_{\ell c}$. $\widetilde{\vec{V}}_c$ n'étant pas corrélé avec le produit scalaire $\vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c}$ (vitesse orthogonale de déplacement de l'interface) car le déplacement des cristaux est indépendant des changements de phase, nous pouvons négliger ce terme.

Equation macroscopique Dans ces conditions, l'équation de conservation de la quantité de mouvement dans le liquide découle des relations (3.12), (3.13) et (3.14) :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \widetilde{\vec{V}}_\ell \widetilde{\vec{V}}_\ell \rangle^\ell) \\
 & = -\rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau - \varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{g} - \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell \\
 & \quad - \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} (\widetilde{P}_\ell I - \mu_\ell \nabla \widetilde{\vec{V}}_\ell) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA + \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \widetilde{\vec{V}}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right)
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

3.3.2 Fermeture de l'équation moyennée

Afin d'écrire une équation de fermeture sur la quantité $\widetilde{\vec{V}}_\ell$, nous pouvons appliquer la formule de Gray [65] (équation (A.5)) dans l'équation microscopique de conservation de la quantité de mouvement (2.2), que l'on multiplie par ε_ℓ , et l'on retranche à l'équation macroscopique (3.16). Il vient l'équation suivante, similaire à celle obtenue par Bousquet-Mélou [24] dans le cas de solidification de zones dendritiques colonnaires :

$$\begin{aligned}
 & \varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\partial \widetilde{\vec{V}}_\ell}{\partial t} + \varepsilon_\ell \rho_\ell \widetilde{\vec{V}}_\ell \cdot \nabla \widetilde{\vec{V}}_\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \widetilde{\vec{V}}_\ell \cdot \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \widetilde{\vec{V}}_\ell \widetilde{\vec{V}}_\ell \rangle^\ell = -\varepsilon_\ell \nabla \widetilde{P}_\ell \\
 & + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \widetilde{\vec{V}}_\ell - \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} (\widetilde{P}_\ell I - \mu_\ell \nabla \widetilde{\vec{V}}_\ell) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA - \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \widetilde{\vec{V}}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right)
 \end{aligned} \tag{3.17}$$

Une analyse d'ordre de grandeur des termes de l'équation (3.17) peut être réalisée pour la simplifier : Nous procédons de la même façon que dans la partie 3.2.2 où nous avons vu que la longueur de variation spatiale des grandeurs moyennées L_D étaient très supérieure à la longueur de variation spatiale l_ε des grandeurs fluctuantes [129, 133, 134]. Les dérivées spatiales de termes moyennés sont négligeables devant les dérivées spatiales de grandeurs fluctuantes [129, 133, 134].

Par ailleurs, Quintard & Whitaker [131], ont montré, dans le contexte de la modélisation du transport de masse en milieu poreux, la séparation des échelles de temps caractéristique d'évolution des grandeurs fluctuantes et des grandeurs moyennées ($|\tilde{t}| \ll |t|$). Il résulte que les champs fluctuants évoluent très rapidement devant les champs moyennés, ce qui implique que le problème de fermeture est quasi-stationnaire, et que le terme de dérivée temporelle des grandeurs fluctuantes est négligeable [131]. Ainsi, l'équation simplifiée de fermeture, portant sur la fluctuation de la vitesse est la suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned}
 & \varepsilon_\ell \rho_\ell \widetilde{\vec{V}}_\ell \cdot \nabla \widetilde{\vec{V}}_\ell = -\varepsilon_\ell \nabla \widetilde{P}_\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \widetilde{\vec{V}}_\ell \\
 & - \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} (\widetilde{P}_\ell I - \mu_\ell \nabla \widetilde{\vec{V}}_\ell) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA - \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \widetilde{\vec{V}}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right)
 \end{aligned} \tag{3.18}$$

Pour obtenir l'équation (3.18), les développements ont été réalisés dans le repère fixe. Nous avons proposé dans la partie 3.1 de résoudre les problèmes de fermeture dans un repère mobile,

se déplaçant à la vitesse $\langle \vec{V}_c \rangle^c$, et lié au déplacement moyen de la phase solide. Par ailleurs, pour la résolution des problèmes de fermeture, la fluctuation de vitesse des particules est négligée. Nous avons montré que le changement de repère ne modifie pas le système d'équations, à l'exception des vitesses \vec{V}_ℓ auxquelles $\langle \vec{V}_c \rangle^c$ doit être retranché (tableau 3.1). L'équation de fermeture de la fluctuation de vitesse liquide, dans le repère mobile est :

$$-\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \left(\widetilde{P}_\ell I - \mu_\ell \nabla \widetilde{V}_\ell \right) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA - \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{V}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right) = -\varepsilon_\ell \nabla \widetilde{P}_\ell + \varepsilon_\ell \mu_\ell \nabla^2 \widetilde{V}_\ell \quad (3.19)$$

L'équation (3.19) porte sur le champ stationnaire \widetilde{V}_ℓ , et doit être résolue sur un volume représentatif des structures périodiques du milieu (comme sur l'image A.1). Pour la résoudre, des relations complémentaires tenant compte des conditions aux limites du problème doivent être rajoutées. A l'interface solide liquide (surface $A_{\ell c}$), une condition de non glissement est prise, elle implique dans le repère fixe : $\vec{V}_\ell = \vec{V}_c = \langle \vec{V}_c \rangle^c$ [180, 182]. Dans le repère mobile, cette condition se traduit par :

$$\widetilde{V}_\ell = \langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \text{ sur } A_{\ell e} \quad (3.20)$$

Sur la surface A_{V_0} (Frontière du volume de prise de moyenne) qui traverse le fluide (surface $A_{\ell e}$), une autre condition aux limites est requise. Cette condition doit tenir compte de la périodicité du champ \widetilde{V}_ℓ sur l'échelle spatiale l_ε . Par ailleurs, les équations (3.19) et (3.20) suggèrent que $\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ est la grandeur génératrice de la fluctuation de vitesse et de pression [59, 19, 133, 134]. Nous exprimons donc cette condition en fonction d'une fonction h , présentant une périodicité spatiale [24, 61] :

$$\widetilde{V}_\ell = h \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right) \quad (3.21)$$

La différence $\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$ étant la source principale des champs de fluctuation [132, 133, 134, 24], nous posons :

$$\begin{cases} \widetilde{V}_\ell = \mathbf{M} \cdot \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right) \\ \widetilde{P}_\ell = \mu_\ell \mathbf{m} \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right) \end{cases} \quad (3.22)$$

Pour faciliter la résolution du problème de fermeture, la décomposition de Whitaker [182] peut être utilisée :

$$\begin{cases} \mathbf{m} = \mathbf{b}(\varepsilon_\ell) + C_c \left(\varepsilon_\ell, \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) \\ \mathbf{M} = \mathbf{B}(\varepsilon_\ell) + \mathbf{C} \left(\varepsilon_\ell, \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) \end{cases} \quad (3.23)$$

Il découle deux problèmes de fermeture portant sur les variables \mathbf{b} , \mathbf{c} , \mathbf{B} et \mathbf{C} qui peuvent être résolus sur des cellules représentatives de structures dendritiques équiaxes [24, 132, 133, 134] :

Problème 1

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\
 0 &= -\nabla \mathbf{b} + \nabla^2 \mathbf{B} - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot (-I \mathbf{b} + \nabla \mathbf{B}) dA \\
 \mathbf{B} &= -I \text{ sur } A_{\ell c} \\
 \mathbf{b}(\mathbf{r} + l_D) &= \mathbf{b}(\mathbf{r}), \mathbf{B}(\mathbf{r} + l_D) = \mathbf{B}(\mathbf{r}) \\
 \langle \mathbf{B} \rangle^\ell &= 0
 \end{aligned} \tag{3.24}$$

Problème 2

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot \mathbf{C} &= 0 \\
 \frac{\rho_\ell}{\mu_\ell} \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \mathbf{B} + \mathbf{C} &= -\nabla \mathbf{c} + \nabla^2 \mathbf{C} - \frac{1}{V_\ell} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot (-I \mathbf{c} + \nabla \mathbf{C}) dA \\
 \mathbf{C} &= 0 \text{ sur } A_{\ell c} \\
 \mathbf{c}(\mathbf{r} + l_D) &= \mathbf{c}(\mathbf{r}), \mathbf{C}(\mathbf{r} + l_D) = \mathbf{C}(\mathbf{r}) \\
 \langle \mathbf{C} \rangle^\ell &= 0
 \end{aligned} \tag{3.25}$$

Dans le terme d'échange de quantité de mouvement , l'utilisation des décompositions (3.22), dans l'équation (3.16), pour les termes d'échanges de quantité de mouvement entre les deux phases, aboutit à l'expression suivante :

$$\begin{aligned}
 -\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \left(\widetilde{P}_\ell I - \mu_\ell \nabla \widetilde{V}_\ell \right) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA &= - \left(\mu_\ell \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} (\mathbf{m} - \nabla \mathbf{M}) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \right) \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right) \\
 &= -\varphi_{\ell c} \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right)
 \end{aligned} \tag{3.26}$$

Elle fait intervenir le coefficient d'échange de quantité de mouvement à l'interface solide-liquide : $\varphi_{\ell c}$, dont l'expression est $\mu_\ell \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} (\mathbf{m} - \nabla \mathbf{M}) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA$.

Le terme de tortuosité est le dernier terme de l'équation (3.16), modélisé par une intégrale sur la surface totale de l'interface solide-liquide contenue dans V_0 . Après intégration de la décomposition (3.22) des fluctuations de vitesse et de pression dans ce terme, il devient :

$$\mu_\ell \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{V}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA = \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \mathbf{M} \vec{n}_{\ell c} dA \right) \left(\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \right) \tag{3.27}$$

L'équation macroscopique fermée de quantité de mouvement de la phase liquide, est obtenue en intégrant les relations (3.26), (3.27) dans l'équation (3.16).

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) &= -\rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau - \varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{g} - \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell \\ + \nabla \cdot (\mu_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) - \varphi_{lc} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) &+ \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \mathbf{M} \vec{n}_{c\ell} dA \right) (\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) \end{aligned}$$

(3.28)

3.4 Equation de conservation de la quantité de mouvement dans la phase solide

3.4.1 Ecriture de l'équation moyennée

L'équation de conservation microscopique de la quantité de mouvement dans le solide (2.6), est moyennée sur le Volume Elémentaire Représentatif V_0 . Le théorème (A.6) de permutation de la dérivée temporelle avec la prise de moyenne [102, 183] et appliqué pour le terme de dérivée temporelle, donnant l'équation suivante :

$$\frac{\partial \langle \rho_c \vec{V}_c \rangle}{\partial t} = \rho_c \varepsilon_c \vec{g} - \langle \nabla \cdot \sigma_c \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \rho_c \vec{V}_c \vec{w}_{lc} \cdot \vec{n}_{cl} dA \quad (3.29)$$

La modélisation du tenseur des efforts σ_c dans une particule solide rigide est difficile. Afin de développer l'équation de conservation de la quantité de mouvement, et exprimer la relation de saut à l'interface, nous supposons que ce tenseur est représenté par un champ de pression solide P_c et que $\langle P_c \rangle^c = \langle P_\ell \rangle^\ell$ [107, 153]. Le tenseur des efforts est modifié lorsque la particule est en contact avec un autre solide lors d'un choc ou de frottements [54]. C'est pourquoi nous modélisons σ_c de la façon suivante :

$$\sigma_c = P_c \cdot I + \sigma_{contact} \quad (3.30)$$

Dans l'intégrale volumique de la divergence du tenseur des efforts, l'utilisation de l'égalité (3.30) donne

$$-\langle \nabla \cdot \sigma_c \rangle = -\langle \nabla P_c \rangle - \langle \nabla \cdot \sigma_{contact} \rangle \quad (3.31)$$

Dans l'équation (3.31), le théorème de permutation de la moyenne volumique avec la dérivée spatiale [102, 183] (equation A.7) est appliqué à $\langle \nabla P_c \rangle$. Par ailleurs, l'utilisation du théorème de Gauss à l'intégrale volumique de $\nabla \cdot \sigma_{contact}$ de l'équation (3.31) fait intervenir l'intégrale des efforts sur les surfaces enveloppant le solide ($A_{lc} + A_{ce}$) :

$$\begin{aligned} -\langle \nabla \cdot \sigma_c \rangle &= -\nabla \varepsilon_c \langle P_c \rangle^c - \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} (P_c \cdot I + \sigma_{contact}) \cdot \vec{n}_{cl} dA - \frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{cl} dA \\ &= -\nabla \varepsilon_c \langle P_c \rangle^c - \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \sigma_c \cdot \vec{n}_{cl} dA - \frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{cl} dA \end{aligned} \quad (3.32)$$

Les échanges de quantité de mouvement entre les deux phases sont donnés par l'avant-dernier terme de l'équation (3.32). Pour le modéliser, l'équation (2.10) est introduite et la décomposition de Gray [65] (équation (A.5)) est appliquée à la pression et la vitesse liquide :

$$\begin{aligned} -\frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \sigma_c \cdot \vec{n}_{cl} dA &= -\frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \langle P_\ell \rangle^\ell \cdot \vec{n}_{cl} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} (\mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) \cdot \vec{n}_{cl} dA \\ &\quad - \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \tilde{P}_\ell \cdot \vec{n}_{cl} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} (\mu_\ell \nabla \tilde{\vec{V}}_\ell) \cdot \vec{n}_{cl} dA \end{aligned} \quad (3.33)$$

Les deux premiers termes du membre de droite (3.33), sont évalués selon les relations (A.10) [102, 183] :

$$\begin{aligned}
 -\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \sigma_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA &= \langle P_\ell \rangle^\ell \nabla \varepsilon_c - \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_c \\
 -\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{P}_\ell \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \left(\mu_\ell \nabla \widetilde{V}_\ell \right) \cdot \vec{n}_{c\ell} dA &
 \end{aligned} \tag{3.34}$$

Dans l'intégrale de surface de l'équation (3.29), la décomposition de la vitesse de l'interface : $\vec{w}_{\ell c} = \vec{V}_c + \vec{w}$ donne l'équation :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c \vec{w}_{\ell c} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c (\vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell}) dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c (\vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell}) dA \tag{3.35}$$

Pour traiter le premier terme du membre de droite de l'équation (3.35), rappelons que chaque particule a un mouvement de translation, ce qui implique dans le coeur de la phase solide $\nabla \cdot (\rho_c \vec{V}_c \vec{V}_c) = 0$. Prenons la moyenne de cette relation et appliquons le théorème (A.7) [102, 183] de permutation de la prise de moyenne volumique et de la dérivée spatiale :

$$\langle \nabla \cdot (\rho_c \vec{V}_c \vec{V}_c) \rangle = \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \vec{V}_c \rangle^c) + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = 0 \tag{3.36}$$

Pour le deuxième terme du membre de droite de l'équation (3.35), utilisons la décomposition de Gray [65] (rappelée dans l'équation (A.5)) de \vec{V}_c . La grandeur $\langle \vec{V}_c \rangle^c$ est sortie de l'intégrale, et il reste le taux de changement de phase. Dans l'autre intégrale, \vec{V}_c est nul en moyenne et n'est pas corrélé avec $\vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell}$ ce qui nous permet de la négliger. Ces résultats intégrés dans l'équation (3.35) donnent :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c \vec{w}_{\ell c} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = -\nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \vec{V}_c \rangle^c) + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau \tag{3.37}$$

L'équation macroscopique est obtenue en intégrant dans l'équation (3.29), les relations (3.32), (3.34) et (3.37)

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \vec{V}_c \rangle^c &= -\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell \\
 -\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{P}_\ell \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \mu_\ell \nabla \widetilde{V}_\ell \cdot \vec{n}_{c\ell} dA - \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_c + \rho_c \varepsilon_c \vec{g} \\
 + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau - \frac{1}{V_0} \int_{A_{c\ell}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA &
 \end{aligned} \tag{3.38}$$

3.4.2 Fermeture de l'équation moyennée

Les échanges de quantité de mouvement à l'interface sont quantifiés par les intégrales de surface contenant \widetilde{P}_ℓ et $\nabla \widetilde{V}_\ell$ dans l'équation (3.38). Nous remarquons que ces deux termes se retrouvent à l'identique dans l'équation macroscopique de conservation de la quantité de mouvement dans la phase liquide (3.16). Dans la partie 3.3 nous avons modélisé ces intégrales par le terme d'échange de l'équation (3.26), dépendant de $\varphi_{\ell c}$, le coefficient de traînée entre les deux phases.

Pour le terme de transport convectif $\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c \widetilde{V}_c \rangle^c$, n'étant pas assuré que le critère (A.14) soit vérifié (ceci est montré dans la partie A.2.4), nous devons utiliser la décomposition (A.16) ainsi que les relations (A.17) et (A.20) et (B.11) pour aboutir à :

$$\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c \widetilde{V}_c \rangle^c = \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c) + \nabla \cdot \left(\sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \frac{\varepsilon_c \lambda_p}{3} \nabla \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \right) + \langle \widetilde{V}_c \widetilde{V}_c \rangle^c \quad (3.39)$$

Dans la relation (3.39), le second membre se compose des termes classiques de convection moyenne et de dispersion, ainsi que d'un terme de transfert de quantité de mouvement généré par l'agitation des cristaux. La notation suivante est adoptée :

$$P_K = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \frac{\varepsilon_c \lambda_p}{3} \nabla \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \quad (3.40)$$

Ce résultat concernant le tenseur des efforts dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement est en accord avec la théorie cinétique des gaz parfaits [54].

Dans le tenseur de dispersion $\langle \widetilde{V}_c \widetilde{V}_c \rangle^c = \begin{bmatrix} \langle \widetilde{V}_{cx} \widetilde{V}_{cx} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cx} \widetilde{V}_{cy} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cx} \widetilde{V}_{cz} \rangle^c \\ \langle \widetilde{V}_{cy} \widetilde{V}_{cx} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cy} \widetilde{V}_{cy} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cy} \widetilde{V}_{cz} \rangle^c \\ \langle \widetilde{V}_{cz} \widetilde{V}_{cx} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cz} \widetilde{V}_{cy} \rangle^c & \langle \widetilde{V}_{cz} \widetilde{V}_{cz} \rangle^c \end{bmatrix}$ de l'équa-

tion (3.39), étant donnée que les composantes selon deux directions différentes sont nulles en moyenne et décorréelées, le tenseur de dispersion est diagonal. Dans le cas où le tenseur est isotrope (ce n'est pas toujours vrai), nous pouvons évaluer les termes diagonaux du tenseur de la façon suivante :

$$\langle \widetilde{V}_{cx} \widetilde{V}_{cx} \rangle^c = \langle \widetilde{V}_{cy} \widetilde{V}_{cy} \rangle^c = \langle \widetilde{V}_{cz} \widetilde{V}_{cz} \rangle^c = \frac{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}{3} \quad (3.41)$$

Le terme de dispersion aboutit donc à un terme en gradient de pression dans l'équation bilan de quantité de mouvement. La pression de dispersion est

$$P_{dis} = \rho_c \varepsilon_c \frac{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}{3} \quad (3.42)$$

Ce résultat est en accord avec la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 74, 72] (cf équation (E.12) dans l'annexe E).

Les transferts par collisions dans l'équation macroscopique (3.38) sont quantifiés par l'intégrale

$$-\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{cl} dA \quad (3.43)$$

Elle est réalisée sur la surface A_{ce} des cristaux qui coupent la frontière de V_0 (cf figure 3.1). Le tenseur des efforts $\sigma_{contact}$ est non nul lorsque la particule solide subit une collision (équation (3.30)).

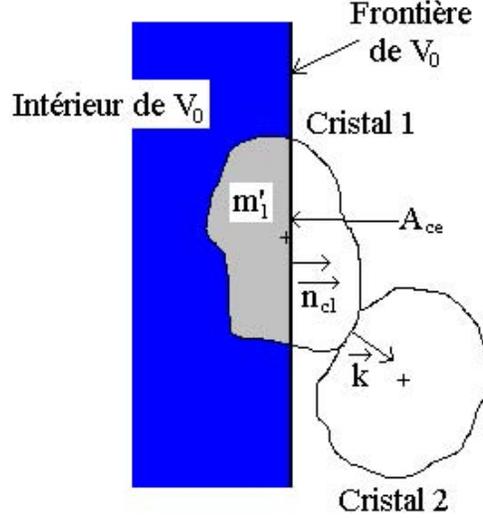


FIG. 3.1: Représentation d'un choc subi par un cristal interfacial

Il est difficile de modéliser le tenseur des efforts intérieurs, lors d'une collision, mais il est possible de quantifier ses effets sur la durée de la collision. En supposant que celle-ci intervient sur l'intervalle de temps $[t, t + t_0]$, la relation suivante est vérifiée (cf figure 3.1) :

$$-\int_t^{t+t_0} \int_{A_{ce}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{cl} dA dt = m'_1 (\vec{V}_1^* - \vec{V}_1) \quad (3.44)$$

Où m'_1 désigne la masse de la portion de particule contenue dans V_0 et $m'_1(\vec{V}_1^* - \vec{V}_1)$ désigne la variation de quantité de mouvement de cette portion de particule. L'utilisation des résultats démontrés en annexe F, dans la relation F.9 donnent :

$$-\int_t^{t+t_0} \int_{A_{ce}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{cl} dA dt = -\frac{m'_1}{2} (1 + \kappa) (\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)) \vec{k} \quad (3.45)$$

Où la vitesse \vec{V}_2 , désigne la vitesse initiale de la seconde particule intervenant dans le choc et \vec{k} désigne le vecteur unitaire normal à la surface de contact.

Pour modéliser le terme (3.43), nous allons en réaliser une moyenne temporelle [37, 32] sur une échelle caractéristique temporelle T_{choc} , telle qu'un très grand nombre de chocs ait lieu, et que l'on dispose d'une valeur moyenne de la quantité de mouvement transmise par chaque collision :

$$\frac{m}{2}(1 + \kappa) \overline{\left(\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \right) \vec{k}} \quad (3.46)$$

En permutant les intégrales temporelles et surfaciques :

$$-\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \overline{\sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{c\ell}} dA = -\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \frac{1}{T_{choc}} \int_t^{t+T_{choc}} \sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{c\ell} dt dA \quad (3.47)$$

Pour évaluer la moyenne temporelle dans le membre de droite de (3.47), remarquons que le nombre moyen de particules qui coupent la surface dA de V_0 est $n_c d_p dA$, que la fréquence de choc pour chaque particules est $\pi n_c d_p^2 \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}$ (relation (F.4)), et que la quantité de mouvement moyenne transmise par chaque collision est donnée par l'équation (3.46) :

$$-\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \overline{\sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{c\ell}} dA = -\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \pi n_c d_p^2 \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \left(\frac{m}{2}(1 + \kappa) \overline{\left(\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \right) \vec{k}} \right) n_c d_p dA \quad (3.48)$$

Rappelons que $m = \rho_c \frac{\pi}{6} d_p^3$, et $\varepsilon_c = m n_c$ l'équation (3.48) devient :

$$-\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} \overline{\sigma_{contact} \cdot \vec{n}_{c\ell}} dA = -\frac{1}{V_0} \int_{A_{ce}} 3\varepsilon_c^2 \rho_c (1 + \kappa) \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \overline{\left(\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \right) \vec{k}} dA \quad (3.49)$$

Il reste donc à modéliser le terme (3.46). Appliquons la décomposition de Gray [65] (relation (A.5)) dans (3.46) pour les vitesses \vec{V}_1 et \vec{V}_2

$$\underbrace{\overline{\left(\vec{k} \cdot (\langle \widetilde{V}_1 \rangle^c - \langle \widetilde{V}_2 \rangle^c) \right) \vec{k}}}_{\text{composante A}} + \underbrace{\overline{\left(\vec{k} \cdot (\widetilde{V}_1 - \widetilde{V}_2) \right) \vec{k}}}_{\text{Composante B}} \quad (3.50)$$

Pour la modélisation de la composante B , supposons que $\widetilde{V}_1 = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \vec{u}$ et $\widetilde{V}_2 = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \vec{v}$. Les vecteurs \vec{u} et \vec{v} étant les vecteurs unitaires des directions de \widetilde{V}_1 et \widetilde{V}_2 .

$$\left(\vec{k} \cdot (\widetilde{V}_1 - \widetilde{V}_2) \right) \vec{k} = \left(\sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} (\cos\alpha - \cos\beta) \right) \vec{k} \quad (3.51)$$

Nous avons supposé que $\vec{k} \cdot \vec{u} = \cos\alpha$ et $\vec{k} \cdot \vec{v} = \cos\beta$. Pour que le choc ait lieu, il faut vérifier la condition $\cos\alpha - \cos\beta \geq 0$. Sous cette contrainte, la valeur moyenne de (3.51) sur l'ensemble des valeurs possibles de α , β et \vec{k} est

$$\overline{\left(\vec{k} \cdot (\widetilde{V}_1 - \widetilde{V}_2) \right) \vec{k}} = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \frac{2}{3\pi} \vec{n}_{c\ell} \quad (3.52)$$

En intégrant dans la relation (3.49), l'égalité (3.52), la contribution de la composante B dans le tenseur des efforts est un tenseur diagonal, dont la composante est :

$$P_{choc}^0 = \frac{2}{\pi}(1 + \kappa)\rho_c \varepsilon_c^2 \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \quad (3.53)$$

Résultat en accord avec la relation (E.15) obtenue par la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 74, 72], décrite dans l'annexe E.

Pour la modélisation de la composante A , nous proposons de réaliser un développement limité à l'ordre 1 de la vitesse moyenne :

$$\langle \vec{V}_1 \rangle^c = \langle \vec{V}_2 \rangle^c + \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot d_p \vec{k} \quad (3.54)$$

La composante A devient :

$$\overline{\left(\vec{k} \cdot \left(\langle \vec{V}_1 \rangle^c - \langle \vec{V}_2 \rangle^c \right) \right) \vec{k}} = \overline{\left(d_p \vec{k} \cdot \left(\nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \vec{k} \right) \right) \vec{k}} \quad (3.55)$$

Introduisons une base orthonormée $(\vec{n}, \vec{u}, \vec{v})$, telle que le vecteur \vec{n} soit orthogonal à l'interface de V_0 . Nous pouvons alors décomposer le vecteur \vec{k} dans cette base :

$$\vec{k} = \cos\theta \vec{n} + \sin\theta (\cos\psi \vec{u} + \sin\psi \vec{v}) \quad (3.56)$$

Par ailleurs, rappelons l'expression du gradient de la vitesse moyenne :

$$\nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c = \begin{bmatrix} \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial n} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial y} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial z} \\ \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_u^c}{\partial n} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_u^c}{\partial y} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_u^c}{\partial z} \\ \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_v^c}{\partial n} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_v^c}{\partial u} & \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_v^c}{\partial v} \end{bmatrix} \quad (3.57)$$

En injectant les relations (3.56) et (3.57) dans la relation (3.55), et en moyennant sur l'ensemble des valeurs possibles de θ et ψ , on obtient :

$$\overline{\left(d_p \vec{k} \cdot \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \vec{k} \right) \vec{k}} = d_p \left[\begin{array}{l} \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial n} \vec{n} \\ \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_u^c}{\partial n} + \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial u} \right) \vec{u} \\ \frac{1}{4\pi} \left(\frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_v^c}{\partial n} + \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial v} \right) \vec{v} \end{array} \right] + d_p \frac{1}{4\pi} \nabla \cdot \langle \vec{V}_c \rangle^c \vec{n} \quad (3.58)$$

Dans la relation (3.58), le second terme du second membre va apporter une contribution aux termes diagonaux du tenseur des contraintes. Dans le premier terme du membre droite, nous reconnaissons :

$$d_p \left[\begin{array}{l} \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial n} \vec{n} \\ \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial y} \vec{u} \\ \frac{1}{4\pi} \frac{\partial \langle \vec{V}_c \rangle_n^c}{\partial v} \vec{v} \end{array} \right] = \frac{1}{4\pi} \left(\nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) \cdot \vec{n} \quad (3.59)$$

Ces résultats intégrés dans l'équation (3.49) font apparaître dans le tenseur des contraintes solide la contribution suivante :

$$P_{choc}^1 = -\frac{3}{4\pi}\varepsilon_c^2\rho_c d_c(1+\kappa)\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}\nabla\langle\vec{V}_c\rangle^c - \frac{3}{4\pi}\varepsilon_c^2\rho_c d_c(1+\kappa)\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}(\nabla\cdot\langle\vec{V}_c\rangle^c).I \quad (3.60)$$

Ces résultats sont en bon accord avec les relations (E.16) et (E.17) de la théorie cinétique des milieux granulaires [91, 146, 73, 74, 72], décrite dans l'annexe E.

Le bilan de l'équation fermée de quantité de mouvement des cristaux découle de l'intégration des relations (3.26), (3.40), (3.42), (3.53) et (3.60) dans l'équation (3.38).

$$\begin{aligned} \frac{\partial\rho_c\varepsilon_c\langle\vec{V}_c\rangle^c}{\partial t} + \nabla\cdot(\varepsilon_c\rho_c\langle\vec{V}_c\rangle^c\langle\vec{V}_c\rangle^c) &= -\varepsilon_c\nabla\langle P_\ell\rangle^\ell + \varphi_{\ell c}(\langle\vec{V}_\ell\rangle^\ell - \langle\vec{V}_c\rangle^c) + \rho_c\varepsilon_c\vec{g} \\ &+ \mu_\ell\nabla\langle\vec{V}_\ell\rangle^\ell\cdot\nabla\varepsilon_c + \rho_c\langle\vec{V}_c\rangle^c\tau - \nabla\cdot(P_{choc} + P_K + P_{dis}) \end{aligned}$$

(3.61)

avec

	Origine	Terme diagonal	Diffusivité
P_{choc}^0	Chocs	$2(1+\kappa)\rho_c\varepsilon_c^2\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}$	
P_{choc}^1	Chocs	$-\frac{3}{4\pi}\varepsilon_c^2\rho_c d_c(1+\kappa)\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}(\nabla\cdot\langle\vec{V}_c\rangle^c)$	$\frac{3}{4\pi}\varepsilon_c^2\rho_c d_c(1+\kappa)\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}$
P_K	Agitation		$\sqrt{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}^{\frac{\lambda}{6}}$
P_{dis}	Dispersion	$\varepsilon_c\rho_c\frac{\langle\vec{V}_c^2\rangle^c}{3}$	

TAB. 3.2: Caractéristiques des tenseurs macroscopiques d'efforts.

3.5 Equation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation

L'énergie cinétique d'agitation des cristaux : $\rho_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c$ quantifie la dispersion de la distribution des vitesses au sein de la phase solide. Elevons au carré la décomposition de Gray [65] (équation (A.5)) de la vitesse solide :

$$\rho_c \vec{V}_c^2 = \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 + 2\rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \widetilde{\vec{V}}_c + \rho_c \widetilde{\vec{V}}_c^2 \quad (3.62)$$

En prenant la moyenne de (3.62) sur V_0 et en négligeant la contribution du deuxième terme au second membre (c'est le produit d'un terme fluctuant et d'un terme moyenné), devant les autres termes :

$$\rho_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle = \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 + \rho_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle \quad (3.63)$$

Pour modéliser l'évolution de l'énergie cinétique d'agitation, une équation différentielle sur le carré de la vitesse moyenne va être développée, ainsi qu'une équation de conservation de l'énergie moyenne. La première équation sera ensuite soustraite à la seconde.

3.5.1 Equation différentielle sur le carré de la vitesse moyenne

La décomposition de la dérivée temporelle du carré de la moyenne des vitesses solide donne :

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2}{\partial t} = 2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} - \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c}{\partial t} \quad (3.64)$$

Dans le second membre de (3.64), la première dérivée temporelle est celle de l'équation macroscopique (3.61) de conservation de la quantité de mouvement, alors que la seconde apparaît dans l'équation (3.4) de conservation macroscopique de la masse. En intégrant dans (3.64) ces équations, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2}{\partial t} &= -2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) - 2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \nabla \cdot (P_k + P_{choc} + P_{dis}) \\ &+ 2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot (-\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_c \rho_c \vec{g} + \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c)) - \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \tau + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \end{aligned} \quad (3.65)$$

Nous pouvons regrouper les premier et dernier termes du second membre de (3.65) :

$$-2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \langle \vec{V}_c \rangle^c) \quad (3.66)$$

De même, le second terme du second membre de (3.65) peut être décomposé de la façon suivante

$$2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \nabla \cdot (P_k + P_{choc} + P_{dis}) = 2 \nabla \cdot (\langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot (P_k + P_{choc} + P_{dis})) - 2(P_k + P_{choc} + P_{dis}) : \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \quad (3.67)$$

L'intégration des relations (3.66) et (3.67) dans l'égalité (3.65), donne l'équation différentielle suivante, portant sur le carré de la vitesse moyenne :

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) = -2 \nabla \cdot \langle \vec{V}_c \rangle^c (P_k + P_{choc} + P_{dis}) \\
 & + 2 \langle \vec{V}_c \rangle^c \left(-\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \vec{g} + \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) \right) + 2(P_k + P_{choc} + P_{dis}) : \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \\
 & - \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \tau - \rho_c \widetilde{V}_c^2 \tau
 \end{aligned} \tag{3.68}$$

Nous rappelons la définition du double produit scalaire “:” de deux tenseurs : $A : B = \sum_{ij} A_{ij} B_{ji}$. L'équation différentielle (3.68) est similaire à l'équation obtenue par la théorie cinétique des milieux granulaires [54, 73, 74].

3.5.2 Equation de conservation de l'énergie cinétique moyenne

L'application du théorème (A.6) de permutation de la prise de moyenne avec la dérivée temporelle à l'énergie cinétique moyenne donne :

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}{\partial t} = 2 \rho_c \langle \vec{V}_c \cdot \frac{\partial \vec{V}_c}{\partial t} \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{w}_{\ell c} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \tag{3.69}$$

L'équation microscopique de conservation de la quantité de mouvement (2.6) est introduite dans le premier terme du second membre de (3.69). Par ailleurs nous pouvons décomposer la vitesse de l'interface en la vitesse solide et la vitesse de changement de phase dans l'intégrale de surface du second terme du membre de droite de (3.69) :

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}{\partial t} = 2 \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \vec{g} - 2 \langle \vec{V}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \tag{3.70}$$

Dans la première intégrale de surface du membre de droite de l'équation (3.70), la décomposition (3.62) de \vec{V}_c^2 est introduite. La contribution du terme $\langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \vec{V}_c$ dans l'intégrale de surface est négligée car \vec{V}_c est en moyenne nul sur $A_{\ell c}$:

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c \widetilde{V}_c^2 \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \tag{3.71}$$

Dans l'équation (3.71), la décomposition de Gray [65] (équation (A.5)) du carré de la fluctuation des vitesses : $\widetilde{V}_c^2 = \langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2 + \widetilde{\widetilde{V}_c^2}$ est appliquée dans la seconde intégrale surfacique. La contribution de l'intégrale de $\widetilde{\widetilde{V}_c^2}$ est négligeable car ce terme est en moyenne nul sur $A_{\ell c}$. Dans les

intégrales restantes, portant sur des termes moyens, nous reconnaissons l'expression du taux de changement de phase :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau + \rho_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c \tau \quad (3.72)$$

Dans la deuxième intégrale de surface , de l'équation (3.70), rappelons que dans la phase solide, nous avons $\nabla \cdot \vec{V}_c^2 \vec{V}_c = 0$ (puisque \vec{V}_c est uniforme dans le coeur de la phase solide). Prenons la moyenne de ce dernier terme, pour obtenir :

$$\langle \nabla \cdot \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \rangle = \nabla \cdot \langle \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = 0 \quad (3.73)$$

L'intégrale que nous calculons est donc égale à $-\nabla \cdot \langle \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \rangle$, dans lequel nous décomposons la vitesse solide selon la décomposition de Gray [65] (équation (A.5)) en sa moyenne et sa fluctuation et le terme \vec{V}_c^2 selon la décomposition (3.62) :

$$\begin{aligned} -\nabla \cdot \langle \rho_c \vec{V}_c^2 \vec{V}_c \rangle &= -\nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) - \nabla \cdot \left(\rho_c \langle \langle \vec{V}_c \rangle^c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) - 2\nabla \cdot \left(\rho_c \langle \langle \vec{V}_c \rangle^c \rangle^c \cdot \widetilde{\vec{V}}_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) \\ &\quad - 2\nabla \cdot \left(\rho_c \langle \langle \vec{V}_c \rangle^c \rangle^c \cdot \widetilde{\vec{V}}_c \widetilde{\vec{V}}_c \right) - \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \vec{V}_c \rangle^c \right) \end{aligned} \quad (3.74)$$

Dans l'expression (3.74), le second terme du second membre qui présente une moyenne d'une fluctuation est négligeable. Pour les troisième et quatrième termes, nous reconnaissons respectivement les expressions des tenseurs des efforts P_K (3.40) et P_{dis} (3.42) qui apparaissent dans l'équation macroscopique de conservation de la quantité de mouvement solide (3.61) :

$$\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) + 2\nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c (P_{dis} + P_K) \right) + \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \vec{V}_c \rangle^c \right) \quad (3.75)$$

Dans le dernier terme du membre de droite de l'équation (3.75), nous pouvons appliquer la décomposition (A.17) et la relation (B.11)

$$\nabla \cdot \rho_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \vec{V}_c \rangle = \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c \right) + \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \frac{\lambda_p \sqrt{\langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c}}{6} \nabla \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \rangle^c \right) + \nabla \cdot \rho_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c^2 \widetilde{\vec{V}}_c \rangle \quad (3.76)$$

Dans l'équation (3.76), même si nous manquons de données pour connaître l'ordre de grandeur du dernier terme, nous le négligeons.

La contribution du tenseur des contraintes dans l'équation (3.70) se traduit par le terme $\langle \widetilde{\vec{V}}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle$. Utilisons la décomposition de Gray [65] (équation (A.5)) de la vitesse solide :

$$\langle \widetilde{\vec{V}}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle = \langle \langle \widetilde{\vec{V}}_c \rangle^c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle + \langle \widetilde{\vec{V}}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle \quad (3.77)$$

Le premier terme du membre de droite de l'équation (3.77) s'exprime plus facilement en utilisant les résultats (3.26), (3.53) et (3.34) portant sur $\langle \nabla \cdot \sigma_c \rangle$:

$$\langle \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle = \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \langle \nabla \cdot \sigma_c \rangle = \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \left(-\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) - \nabla P_{choc} \right) \quad (3.78)$$

Dans le deuxième terme du membre de droite de l'équation (3.77) l'intégrale volumique est décomposée sur l'ensemble des cristaux (le volume de chaque cristal est V_{cris}) contenus dans V_0 :

$$\langle \vec{V}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle = \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \int_{V_{cris}} \vec{V}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c dV \quad (3.79)$$

Dans les intégrales du second membre de (3.79), étant donnée que chaque cristal a un mouvement de translation, \vec{V}_c est constant et peut être sorti de l'intégrale. Par ailleurs, chaque intégrale de volumique est transformée en intégrale de surface (sur la surface A_{cris} des cristaux), par application du théorème de Gauss :

$$\langle \vec{V}_c \cdot \nabla \cdot \sigma_c \rangle = \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{V_{cris}} \nabla \cdot \sigma_c dV = \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{cris}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA \quad (3.80)$$

Parmi l'ensemble des surfaces constituant l'enveloppe totale des cristaux, certaines constituent une interface solide-liquide ($A_{\ell c}$), d'autre constituent une interface solide-solide (A_{cc}) lors des collisions, et d'autres, l'intersection de l'enveloppe de V_0 avec un cristal (A_{ce}) (voir figure A.1). L'équation (3.80) devient donc :

$$\begin{aligned} \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{cris}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA &= \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{\ell c}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA \\ &+ \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{cc}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{ce}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA \end{aligned} \quad (3.81)$$

L'intégrale sur $A_{\ell c}$ est traitée en intégrant la relation de saut de quantité de mouvement (2.10) à l'interface solide-liquide. Le tenseur σ_c est remplacé par le tenseur des efforts dans la phase liquide où la décomposition de Gray [65] (équation(A.5)) est appliquée aux champs \vec{V}_ℓ et P_ℓ :

$$\frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{\ell c}} \sigma_c \vec{n}_{c\ell} dA = \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{\ell c}} (\langle P_\ell \rangle^\ell + \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) \vec{n}_{\ell c} dA + \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \vec{V}_c \int_{A_{\ell c}} (\tilde{P}_\ell + \mu_\ell \nabla \tilde{V}_\ell) \vec{n}_{\ell c} dA \quad (3.82)$$

Négligeons la contribution apportée par la première intégrale de surface du membre de droite de (3.82) car elle concerne l'intégrale sur $A_{\ell c}$ du produit de grandeurs moyennées avec la fluctuation de \vec{V}_c . Il vient alors :

$$\frac{1}{V_0} \sum_{cris} \overline{\vec{V}_c} \int_{A_{\ell c}} (\overline{P}_\ell + \mu_\ell \nabla \overline{\vec{V}_\ell}) \overline{n_{\ell c}} dA = \frac{1}{V_0} \sum_{cris} \overline{\vec{V}_c} \phi_{cris} (\langle \overline{\vec{V}_\ell} \rangle^\ell - \overline{\vec{V}_c}) = \varphi_{\ell c} \langle \overline{\vec{V}_c} \langle \overline{\vec{V}_\ell} \rangle^\ell \rangle^c - \varphi_{\ell c} \langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c \quad (3.83)$$

Dans (3.83), l'intégrale de surface du membre de gauche, quantifie les échanges de quantité de mouvement entre une particule solide et le liquide extérieur. Nous avons noté ϕ_{cris} , le coefficient de traînée pour un cristal, et nous utilisons le fait que $\frac{1}{V_0} \sum_{cris} \phi_{cris} = \varphi_{\ell c}$.

L'intégrale sur A_{cc} intervient lors des collisions et évalue les pertes d'énergie cinétique dues au travail des forces de contact. Nous avons calculé dans l'annexe F, dans l'équation (F.12), l'énergie moyenne dissipée par le choc de deux particules. Afin d'intégrrer les effets des chocs, nous réalisons la moyenne temporelle de ce terme. Nous pouvons modéliser ce terme comme le produit de la densité de particule n_c , par la fréquence de chocs par particule (équation (F.4)), et par l'énergie moyenne dissipée lors d'un choc (équation (F.13)).

$$\overline{\frac{1}{V_0} \sum_{cris} \overline{\vec{V}_c} \int_{A_{cc}} \sigma_c \overline{n_{\ell c}} dA} = n_c \pi n_c d_p^2 \sqrt{\langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c} \rho_c \frac{\pi}{6} d_p^3 (\kappa^2 - 1) \frac{\langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c}{3} = \rho_c \varepsilon_c^2 \frac{2}{d_p} (\kappa^2 - 1) \langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c \frac{2}{3} \quad (3.84)$$

Le terme (3.84) est en bon accord avec les résultats de la théorie cinétique des milieux granulaires, décrite dans l'annexe E, et la relation (E.22).

L'intégrale sur A_{ce} est traitée de la même façon que celle portant sur A_{cc} . Elle quantifie les pertes d'énergie cinétique pour les particules sur la frontière de V_0 , subissant une collision. La moyenne temporelle de ce terme est réalisée pour intégrer les effets des chocs. Elle est modélisée par le produit du nombre de particules présentes sur la frontière de V_0 : $n_c d_p 4\pi R_0^2$, par la fréquence de choc (F.4), et l'énergie moyenne dissipée lors d'un choc (équation (F.13)). Par ailleurs, nous rappelons que le volume V_0 est donné par $V_0 = \frac{4}{3}\pi R_0^3$:

$$\overline{\frac{1}{V_0} \sum_{cris} \overline{\vec{V}_c} \int_{A_{ce}} \sigma_c \overline{n_{\ell c}} dA} = \frac{n_c d_p 4\pi R_0^2}{V_0} \pi n_c d_p^2 \sqrt{\langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c} \rho_c \frac{\pi}{6} d_p^3 (\kappa^2 - 1) \frac{\langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c}{3} = \rho_c \varepsilon_c^2 \frac{6}{d_p} (\kappa^2 - 1) \langle \overline{\vec{V}_c}^2 \rangle^c \frac{2}{3} \frac{d_p}{R_0} \quad (3.85)$$

Nous remarquons que le résultat de (3.85) est similaire à celui de (3.84), à l'exception du coefficient $\frac{d_p}{R_0}$. Nous en déduisons que lorsque $d_p \ll R_0$, le terme (3.85) est négligeable. En considérant les relations (3.70), (3.72), (3.75), (3.76), (3.77), (3.83) et (3.84), nous obtenons alors l'équation bilan suivante, relative à l'énergie cinétique moyenne :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \left(\langle \widetilde{V}_c \rangle^c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c + \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \right) &= -2 \nabla \cdot \langle \widetilde{V}_c \rangle^c (P_k + P_{choc} + P_{dis}) \\
 - \nabla \cdot \overline{q\vec{k}} - 2\varphi_{lc} \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c + \rho_c \varepsilon_c^2 \frac{2}{d_p} (\kappa^2 - 1) \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c &^{\frac{3}{2}} \\
 - \rho_c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \tau + 2 \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \left(-\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_c \rho_c \overline{g} + \varphi_{lc} \left(\langle \widetilde{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \right) \right) &
 \end{aligned}$$

(3.86)

3.5.3 Bilan de l'équation macroscopique de conservation de l'énergie cinétique d'agitation :

L'équation de bilan est obtenue en faisant la différence entre les équations (3.68) et (3.86) :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \right) &= 2 (P_k + P_{choc} + P_{dis}) : \nabla \langle \widetilde{V}_c \rangle^c \\
 - \nabla \cdot \overline{q\vec{k}} + \rho_c \varepsilon_c^2 \frac{2}{d_p} (\kappa^2 - 1) \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c + \rho_c \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \tau - 2\varphi_{lc} \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c &
 \end{aligned}$$

(3.87)

Dans l'équation de bilan 3.87, à droite, nous obtenons respectivement, un terme de production d'énergie cinétique turbulente, un terme de diffusion, un terme de dissipation par plasticité lors des chocs, un terme de production par changement de phase, et un terme de dissipation par les forces de traînée.

3.6 Les régimes de transport de phase solide

Nous avons développé dans les sections 3.2, 3.3, 3.4 et 3.5, un modèle d'écoulement diphasique présentant une phase liquide et un milieu solide dispersé. Le modèle a été développé par une méthode de prise de moyenne volumique. Pour fermer l'équation de conservation de la phase solide, nous avons introduit un champ quantifiant l'énergie cinétique d'agitation des cristaux ($\sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}$). Ce champ contrôle directement les transferts macroscopiques de quantité de mouvement dans l'équation (3.61), qui proviennent du tenseur de dispersion P_{dis} , des interactions entre particules P_{chocs} , et des transferts dûs à l'agitation des cristaux P_K .

Par rapport aux problèmes classiques d'écoulements diphasiques existant dans la littérature (lits fluidisés [54, 73, 74, 72], sédimentation [153, 90, 117]), notre problème est caractérisé par des changements de phase. Ces derniers vont transformer les grains qui s'écoulent, du stade de noyau (de dimension $d_p \sim 10^{-8}m$) à celui de cristaux dendritiques ($d_p \sim 10^{-4}m$), et modifier les régimes d'écoulement. Avant de continuer les développements, nous proposons dans cette section une discussion sur les différents régimes d'écoulements et les conséquences sur l'équation (3.61) et les tenseurs P_{choc} , P_K et P_{dis} .

3.6.1 Régime dilué

Dans les premiers instants, les cristaux qui viennent de germer sont très petits (quelques $10^{-8}m$) et leur libre parcours moyen λ_p est très grand, car la probabilité de rencontre entre deux cristaux est faible. Nous appelons *régime dilué* les situations correspondant à $\lambda_p \geq L_D$, où L_D est la taille du bain liquide. Ce régime présente une analogie avec le mouvement de molécules dans un gaz parfait, et a été étudiés dans la théorie cinétique des gaz ou des milieux granulaires dispersés [54, 34, 78]. Les efforts de contact solide-solide (tenseur P_{choc} dans l'équation (3.61)) sont négligeables alors que les tenseurs P_K et P_{dis} sont susceptibles d'être prépondérants. Pour ce régime d'écoulement, l'énergie cinétique d'agitation des cristaux est susceptible d'être forte si le fluide est peu visqueux (cas des lits fluidisés [54, 73, 74, 72]), alors qu'elle est faible si le fluide est très visqueux (sédimentation dans un fluide visqueux [153, 90, 117]), car les particules de faible inertie sont emportées par l'écoulement qui homogénéise leur vitesse.

3.6.2 Régime collisionnel

Lorsque la taille et (ou) la densité de cristaux augmente, le libre parcours moyen diminue et la probabilité de choc augmente. Lorsque $L_D \geq \lambda_p \geq d_p$, ceux-ci interviennent dans le transport macroscopique de quantité de mouvement. Nous appelons *régime collisionnel* ce régime d'écoulement granulaire qui a donné lieu à de nombreux modèles dans le contexte des lits fluidisés [54, 8] ou de la sédimentation [104, 146]. Des méthodes eulériennes-eulériennes comme la théorie cinétique des milieux granulaires [54, 8, 73, 74, 72] ont été employées, ainsi que des méthodes eulériennes-lagrangiennes [4, 153, 117]. Les termes modélisant les efforts de contact entre particules prennent de l'importance et ne peuvent plus être négligés (P_{choc}), alors que les transports de quantité de mouvement dû à l'agitation des cristaux (P_K et P_{dis}) diminuent mais restent prépondérants.

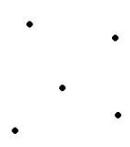
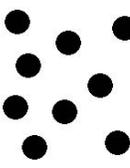
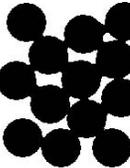
3.6.3 Régime dense

Pour des conditions de fortes fractions solides et (ou) fortes densités de cristaux nous avons $d_p \geq \lambda_p$, les contacts solide-solide deviennent très fréquents et ont des durées de plus en plus longues. Les transferts de quantité de mouvement interviennent sous forme de frottements, plutôt que sous forme de chocs. Nous appelons *régime dense* ce régime d'écoulement. A l'échelle des grains, ce phénomène peut être représenté par des lois de frottement entre les particules, alors qu'à l'échelle macroscopique les tenseurs des efforts, sont modélisés par des lois de comportement (relations entre déformations et contraintes). Des modèles de transport dans les milieux solides denses peuvent se trouver dans le contexte des poudres [163, 99, 42]. Etant donné la complexité de la forme des dendrites, il est difficile de trouver des lois de comportement mécanique macroscopique d'un lit de cristaux. Des auteurs ont cependant proposé une modélisation viscoplastique de ce genre d'écoulement [41]. Nous n'avons pas développé les calculs correspondant à ce régime pour l'établissement de l'équation de conservation de la quantité de mouvement solide. Les déplacements de solide lors de ce régime étant très faibles, et comme la phase solide reste peu longtemps dans ce régime, (le changement de phase et la forme dendritique des cristaux, font qu'ils vont rapidement se consolider), nous le négligeons.

3.6.4 Régime consolidé

Le régime dense se termine par l'agglomération des cristaux qui ne bougent plus les uns par rapport aux autres. C'est le dernier régime, que nous appellerons *régime consolidé*. Le lit de cristaux se comporte alors comme un milieu poreux immobile. La condition d'agglomération dépend de la forme des cristaux. Plus ceux-ci ont une forme arborescente, et plus la consolidation est précoce et a lieu pour une fraction volumique solide faible. De nombreux auteurs ont proposé d'introduire le rayon de l'enveloppe des cristaux, pour caractériser la condition d'agglomération [18, 175, 176]. En supposant que les sphères enveloppes s'accumulent selon un empilement régulier, la limite d'agglomération est atteinte lorsque les sphères constituent un réseau de tétraèdres réguliers. La valeur maximale de la fraction volumique occupée par l'intérieur de l'enveloppe des cristaux est 0,64 [18, 175, 176]. Dans notre modèle, pour modéliser la consolidation du lit de cristaux, nous admettons que le tenseur P_{choc} dégénère en un terme visqueux avec une viscosité solide effective μ_c^* [77, 16, 175, 109, 186, 100, 153, 38] :

$$\nabla \cdot P_{chocs} = \nabla \cdot (\varepsilon_c \mu_c^* \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c) \quad (3.88)$$

	Régime dilué	Régime choc	Régime dense	Régime Aggloméré
n_c				
ε_c	faible	élevé	élevé	élevé
$R = \left(\frac{3 \cdot \varepsilon_c}{4\pi n_c}\right)^{\frac{1}{3}}$	faible	faible	élevé	élevé
λ_p	$\geq L_D$	$L_D \geq \lambda \geq R$	$R \geq \lambda_p$	nul
Agitation	? $\left\{ \begin{array}{l} \text{faible si } \mu_\ell \text{ est fort} \\ \text{fort si } \mu_\ell \text{ est faible} \end{array} \right.$? $\left\{ \begin{array}{l} \text{faible si } \mu_\ell \text{ est fort} \\ \text{fort si } \mu_\ell \text{ est faible} \end{array} \right.$	faible	nul
frottements	aucun	aucun	important	cristaux consolidés
P_{choc}	négligeable	Important	faible	nul
P_{dis}	Important	Important	négligeable	nul
P_K	Important	Important	négligeable	nul

TAB. 3.3: Les différents régimes d'écoulements dans la phase dispersée.

3.7 Un modèle d'écoulement diphasique simplifié

Après avoir établi dans les parties 3.1, 3.2, 3.3, 3.4 et 3.5 un modèle macroscopique complet d'écoulements diphasiques, nous allons, dans cette partie, tester une version simplifiée sur un cas-test de sédimentation.

3.7.1 Modèle d'écoulement diphasique simplifié

Pour ce travail, nous avons décidé de négliger l'énergie d'agitation cinétique des cristaux. Cela élimine l'équation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation (3.166), ainsi que les tenseurs d'efforts dus à l'agitation cinétique des cristaux (P_{choc} , P_K et P_{dis}) dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement (3.165).

Cette hypothèse est raisonnable lorsque le fluide présente une forte viscosité (voir table 3.3) et des écoulements laminaires [153, 90, 117]. Si la viscosité du fluide est faible, nous n'en sommes pas assurés, même si les écoulements sont laminaires [54, 73, 74, 72].

Dans le cas d'écoulements à fort nombre de Rayleigh caractérisés par de la turbulence dans le liquide (dans le cas du corium en fond de cuve des Rayleigh thermiques de l'ordre de 10^{16} sont atteints), cette hypothèse n'est plus acceptable, car la turbulence dans le liquide est source d'énergie cinétique d'agitation dans la phase solide ([54, 73, 74, 72]). Il pourrait être intéressant, lors d'une prochaine étude, de d'évaluer l'ordre de grandeur de l'énergie d'agitation des particules solides sur des cas réels, pour préparer les applications envisagées à l'IRSN.

Nous avons simplifié les termes non classiques en gradient de porosité dans les équations (3.163) et (3.165), ainsi que le terme de tortuosité (3.27) dans l'équation (3.163). Lors de travaux futurs, il pourrait être intéressant de quantifier les effets de ces différents termes.

Après simplifications, nous obtenons le système d'équations de la table 3.4.

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = 0 \quad (3.89)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) &= -\varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{g} \\ + \nabla \cdot (\mu_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) - \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) &- \rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau \end{aligned} \quad (3.90)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c = 0 \quad (3.91)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) &= -\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) + \nabla \cdot (\mu_c^* \varepsilon_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c) \\ + \rho_c \varepsilon_c \vec{g} + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau \end{aligned} \quad (3.92)$$

TAB. 3.4: Bilan des équations du modèle d'écoulement diphasique simplifié

3.7.2 Discretisation

Principe et choix

Nous avons choisi de réaliser une discrétisation en volume fini [116] du modèle pour la capacité de cette méthode à assurer la conservation des différents champs. Les variables physiques régissant le transport des phases solide et liquide dans notre modèle, sont les fractions volumiques de chaque phase (qui correspondent à une unique inconnue puisque $\varepsilon_c + \varepsilon_\ell = 1$), les vitesses moyennes et la pression moyenne.

Rappel de la discrétisation du modèle colonnaire

Dans le contexte de la solidification colonnaire, où la phase solide forme un milieu poreux immobile à travers lequel le liquide s'écoule, la modélisation est simplifiée car le transport de phase solide n'est pas considéré [86] : Le couplage vitesse-pression a été traité au moyen de l'algorithme SIMPLEC dérivé de SIMPLE [116, 169, 84, 1]. Cette méthode avec une discrétisation Volumes Finis, consiste à exprimer les champs vectoriels sur les centres des faces, et les champs scalaires au centre des mailles. La résolution des champs de vitesse-pression pour un pas de temps donné se déroule de façon itérative de la façon suivante [116] :

- **Etape 1 :** L'équation de conservation de la quantité de mouvement $\langle \vec{V}_\ell \rangle_0^\ell$ est résolue avec le champ de pression de l'itération précédente $\langle P_\ell \rangle_0$.
- **Etape 2 :** Les champs de pression et vitesse nécessitent une correction $\langle \vec{V}_\ell \rangle^{\ell*}$ et $\langle P_\ell \rangle^*$. Une relation entre les corrections $\langle \vec{V}_\ell \rangle^{\ell*} = h(\langle P_\ell \rangle^*)$ est obtenue grâce à l'équation de conservation de la quantité de mouvement.
- **Etape 3 :** Dans l'équation de conservation de la masse, la vitesse liquide est remplacée en utilisant la relation h , ce qui permet d'obtenir une équation sur la correction de pression en fonction de $\langle \vec{V}_\ell \rangle_0^\ell$.
- **Etape 4 :** La correction de pression est utilisée pour corriger la valeur du champ de vitesse avec la relation h .
- **Etape 5 :** Si la norme de la différence entre deux itérations des champs de pression et vitesse est inférieure au critère de convergence choisi, alors on considère que les champs sont convergés, et l'on passe au pas de temps suivant. Dans le cas contraire, la boucle itérative est reprise à la première itération (méthode de point fixe [145]).

La discrétisation du terme de Darcy $-\varepsilon_\ell^2 \mu_\ell \mathbf{K}^{-1} \cdot \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$, de l'équation de conservation de la quantité de mouvement est implicite pour $\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$. La dépendance en ε_ℓ de \mathbf{K} est exprimée de façon explicite à chaque itération par une moyenne arithmétique des fractions volumiques dans les deux mailles les plus proches.

Changements à apporter pour les écoulements diphasiques

Dans le contexte de la modélisation des écoulements diphasiques avec des approches multiphasiques, la méthode SIMPLE (ou ses dérivées SIMPLEC et SIMPLER) doit être étendue pour traiter les cas d'écoulements diphasiques. Une adaptation a été réalisée par Spalding [156] et est dénommée algorithme IPSA (Inter-Phase-Slip-Algorithm). Cette méthode a été utilisée dans le contexte de la solidification équiaxe par Wang & Beckermann [175, 176, 18].

Nous avons choisi de résoudre le système d'équations aux dérivées partielles en adaptant la méthode SIMPLEC aux cas des écoulements multiphasiques. La particularité de la méthode, est que l'on somme les équations de conservation de la masse, ce qui nous permet une simplification, puisque $\frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} + \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} = 0$. On arrive donc à une équation de conservation de la masse globale :

$$\nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = 0 \quad (3.93)$$

La résolution du système d'équation est proche de celle de l'algorithme SIMPLE et est la suivante :

- **Etape 1 :** Les équations de conservation de la quantité de mouvement $\langle \vec{V}_\ell \rangle_0^\ell$ et $\langle \vec{V}_c \rangle_0^c$ sont linéarisés et résolues avec le champ de pression de l'itération précédente $\langle P_\ell \rangle_0$.
- **Etape 2 :** Les champs de pression et vitesse nécessitent une correction $\langle \vec{V}_\ell \rangle^{\ell*}$, $\langle \vec{V}_c \rangle^{c*}$ et $\langle P_\ell \rangle^*$. Une relation entre les corrections $\langle \vec{V}_\ell \rangle^{\ell*} = h(\langle P_\ell \rangle^*)$ et $\langle \vec{V}_c \rangle^{c*} = h'(\langle P_\ell \rangle^*)$ est obtenue grâce aux équations de conservation de la quantité de mouvement.
- **Etape 3 :** Dans l'équation (3.93), les vitesses liquide et solide sont remplacées en utilisant les relations h et h' , ce qui permet d'obtenir une équation sur la correction de pression en fonction de $\langle \vec{V}_\ell \rangle_0^\ell$ et $\langle \vec{V}_c \rangle_0^c$.
- **Etape 4 :** La correction de pression est utilisée pour corriger les valeurs des champs de vitesse avec les relations h et h' .
- **Etape 5 :** L'une des équations de conservation de la masse 3.4 ou 3.5 est résolue en utilisant les champs de vitesses qui viennent d'être calculés. La deuxième équation de conservation de la masse n'a pas à être résolue étant donné que $\varepsilon_c + \varepsilon_\ell = 1$.
- **Etape 6 :** Si la norme de la différence entre deux itérations de tous les champs est inférieure au critère de convergence choisi, alors on considère que les champs sont convergés, et l'on passe au pas de temps suivant. Dans le cas contraire, la boucle itérative est reprise à la première itération (méthode de point fixe [145]).

Discretisation temporelle et spatiale

La discrétisation en volumes finis, consiste à intégrer sur un volume de contrôle (une maille) les équations différentielles. On suppose le champ uniforme sur tout le volume de la maille, et on

obtient une équation d'évolution de celui-ci. L'intégration volumique de la divergence des flux diffusif et convectif donne des flux surfaciques sur l'enveloppe de la maille. Pour la construction des systèmes linéaires, les choix suivants sont faits :

- Les dérivées temporelles sont discrétisées par un schéma d'*Euler implicite* [116, 46, 24]. Le choix du pas de temps est adapté pendant le calcul en fonction de la convergence des systèmes linéaires. Lorsque celle-ci est réalisée en peu d'itérations, le pas de temps est augmenté, alors que lorsque le système ne converge pas en un nombre donné d'itérations, le pas de temps est réduit. Cela permet de réduire le temps de calcul lorsque les phénomènes physiques dans un cas-test ont des temps caractéristiques qui évoluent.

- Le calcul des flux de diffusion à travers la surface d'un volume de contrôle est réalisé par un schéma aux différences centrées [116, 46, 24].

- Le calcul des flux convectifs est réalisé par un schéma amont du premier ordre [116, 46, 24].

3.8 Validation du modèle d'écoulement diphasique

3.8.1 Un cas test de sédimentation

La sédimentation de grains solides dispersés dans un liquide est un exemple d'écoulement diphasique. Pour ce phénomène, les frottements solide-liquide, qui induisent la force de traînée, ont une importance prépondérante dans la cinétique de sédimentation. Simuler un tel cas est un très bon test pour étudier la sensibilité du modèle aux coefficients de traînée.

Snider & al. [153] ont présenté une expérience et des simulations numériques de sédimentation d'une phase solide dispersée dans une longue colonne inclinée. Nous avons calculé cette expérience à l'aide de notre modèle simplifié. Les propriétés physiques et les particularités de l'expérience sont données sur l'image de gauche de la figure 3.2. Dans l'expérience que nous décrivons, la colonne est inclinée d'un angle de 35 degrés, ce qui complique légèrement le problème, puisque les écoulements sont 2D, contrairement au cas d'une colonne verticale.

3.8.2 Calcul de sédimentation

Nous avons réalisé des calculs basés sur cette expérience. Le choix de la corrélation du coefficient d'échange de quantité de mouvement est important, car ce coefficient détermine la cinétique de la sédimentation. Snider & al. ont utilisé la corrélation suivante pour le coefficient de traînée :

$$C_D = \frac{24}{Re} \left(\varepsilon_\ell^{-2,65} + \frac{1}{6} Re^{\frac{2}{3}} \varepsilon_\ell^{-1,78} \right) \quad (3.94)$$

où Re est le nombre de Reynolds de l'écoulement. L'origine de cette corrélation vient des travaux expérimentaux de Richardson & Zaki [142]. Ce type de corrélation est généralement très précis, pour une plage limitée de taille de particules et de régime d'écoulement et n'est pas transposable à des tailles de grains ou des écoulements différents.

Une discussion sur les coefficients d'échanges de quantité de mouvement est proposée dans l'annexe C. Nous avons fait le choix de ne pas utiliser la corrélation (3.94), car dans l'optique de réaliser des simulations de croissance de cristaux équiaux, pour lesquelles, la taille des particules varie beaucoup, nous cherchons une corrélation qui s'adapte à différents régimes. Une loi similaire à la loi de Kozeny-Carman [10] (que nous avons utilisé dans la partie 2.3 pour la perméabilité des zones dendritiques colonnaire) a été utilisée :

$$\varphi_{lc} = \mu_\ell \frac{\varepsilon_c^2}{\varepsilon_\ell} \frac{180}{d^2} \quad (3.95)$$

La longueur caractéristique qui intervient dans la relation (3.95) a été choisie égale au rayon moyen des cristaux (soit $70\mu m$ pour cette expérience).

Nous présentons sur la figure 3.2, le champ de fraction solide obtenu à différents instants. Ces champs peuvent être comparés aux champs obtenus dans les calculs de Snider & al. [153] sur la figure 3.3.

Les résultats obtenus par le modèle sont en bon accord avec les résultats numériques de Snider & al. [153], présentés à la figure 3.3. Nous remarquons que les ordres de grandeur des fractions solides maximales correspondent pour les deux simulations (0,5 dans notre cas, 0,4

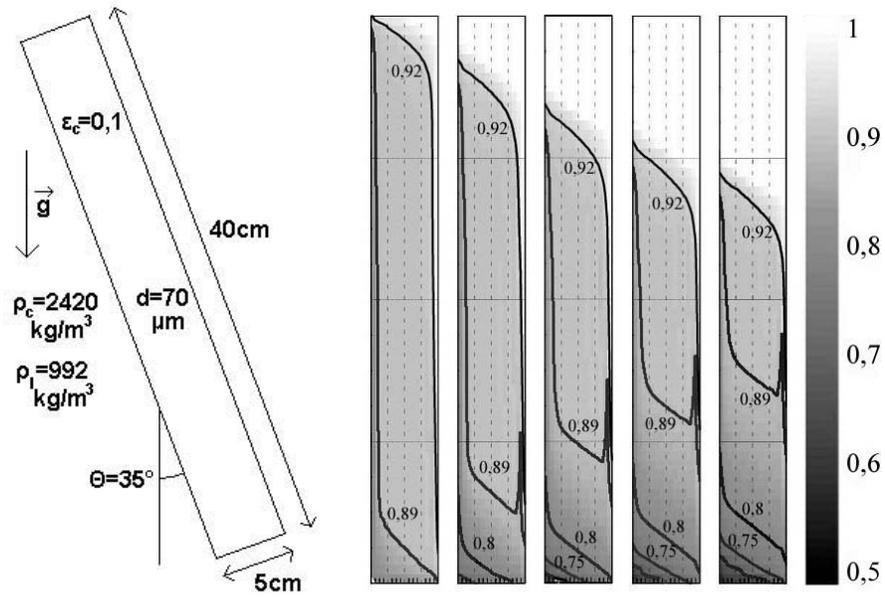


FIG. 3.2: Calculs de sédimentation de l'expérience de Snider & al. : Schéma de l'expérience à gauche et calculs du champ de fraction volumique liquide après 100, 200, 300, 400 et 500s

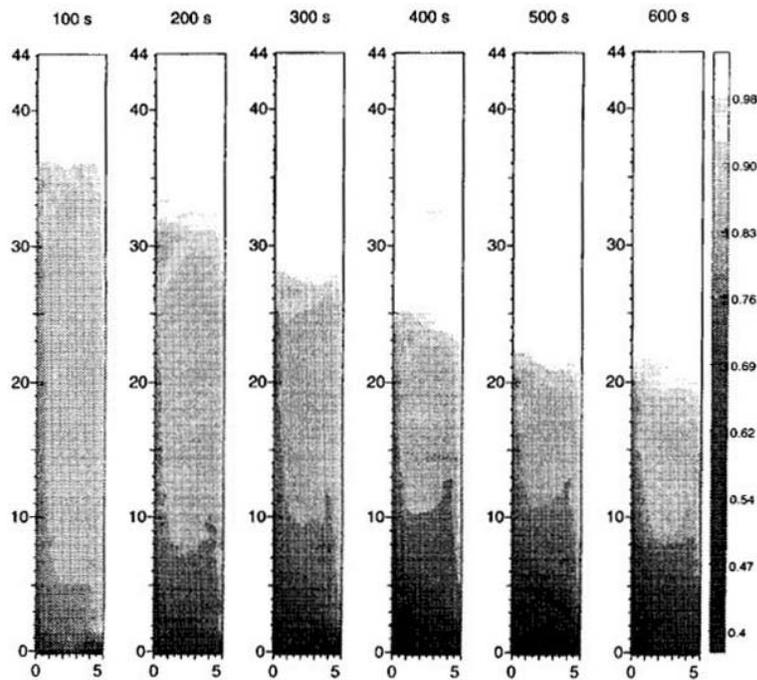


FIG. 3.3: Expérience de sédimentation, champ de fraction volumique liquide : Calculs réalisés par Snider & al

pour les calculs de Snider & al. [153]). De même, la forme du champ est relativement bien reproduite : les isovaleurs de fraction solide présentent une stratification avec une inclinaison correspondant à l'angle de la colonne. Une zone appauvrie en solide est observée à proximité de la paroi droite du domaine. Les différences quantitatives qui apparaissent entre les deux calculs peuvent être expliquées par les choix différents du coefficient de traînée.

Par ailleurs, nous avons comparé l'ordre de grandeur des vitesses liquides obtenues avec les deux modèles et nous avons remarqué un bon accord. Les vitesses maximales sont d'environ $0,26\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ dans notre cas et $0,3\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les calculs de Snider & al [153]. Ces vitesses maximales sont atteintes à proximité de la paroi gauche du domaine.

3.9 Densité de cristaux n_c

Le solide équiaxe est constitué d'un grand nombre de cristaux dispersés et indépendants les uns des autres. Thermodynamiquement, chaque particule se comporte donc comme une phase propre et la façon la plus rigoureuse de traiter le problème, serait de poser des équations de conservation pour chaque cristal. Cela est impossible car leur nombre varie avec le temps, et car celui-ci est gigantesque (jusqu'à 10^9 unités par m^3). La modélisation macroscopique nécessite une approche simplifiée.

Pour intégrer au mieux le caractère dispersé de la phase solide, les méthodes Eulérienne-Lagrangienne (utilisées dans le contexte de la sédimentation), permettent de suivre l'évolution de la phase solide en suivant de façon Lagrangienne une particule, représentative du mouvement d'une famille de particules [55, 117, 118, 43]. Dans les méthodes Eulérienne-Eulérienne, il est possible de prendre une approche multiphasique, qui associe pour chaque phase, les particules d'une certaine granulométrie [4, 153].

Nous avons choisi de suivre le champ de densité volumique de cristaux n_c pour représenter la dispersion des particules. Ce champ permettra de connaître localement une taille moyenne de cristaux. Nous ne souhaitons pas entreprendre de modélisation plus fine car cela serait très coûteux en temps de calculs (Cela n'a jamais été considéré dans le contexte de la solidification équiaxe).

Un cristal est présent dans V_0 , si son centre de gravité est situé à l'intérieur. Ecrire une équation de conservation de n_c , revient donc à suivre l'évolution des centres de gravité. Pour faciliter l'écriture de l'équation, nous proposons de suivre l'évolution d'un milieu constitué de boules uniformes centrées aux centres de gravité des particules et de rayons R (qui est choisi petit devant la taille réelle des cristaux). Nous définissons χ_c^* la fonction indicatrice, qui prend la valeur 1 pour tout point à l'intérieur de l'une des boules et 0 partout ailleurs et ε_c^* , la fraction volumique du milieu constitué par ces boules imaginaires. Sur V_0 , nous avons

$$\frac{4}{3}\pi R^3 n_c = \varepsilon_c^* = \frac{1}{V_0} \int_{V_0} \chi_c^* dV.$$

L'écriture des théorèmes de permutation de la prise de moyenne et de la dérivée temporelle [102, 183] à χ_c^* rappelés dans les équations (A.6) et (A.7), nous permet d'écrire :

$$\frac{\partial \varepsilon_c^*}{\partial t} = \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{cl} dA \quad (3.96)$$

Afin d'exprimer le second membre de (3.96), nous allons utiliser (comme pour l'écriture de l'équation de conservation de la masse (3.5)), le fait que $\nabla \cdot \vec{V}_c = 0$, et donc :

$$\langle \nabla \cdot \vec{V}_c \rangle = \nabla \cdot \varepsilon_c^* \langle \vec{V}_c \rangle^c + \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \vec{V}_c \cdot \vec{n}_{cl} dA = 0 \quad (3.97)$$

On en déduit alors l'équation de bilan pour ε_c^* :

$$\frac{\partial \varepsilon_c^*}{\partial t} = -\nabla \cdot \varepsilon_c^* \langle \vec{V}_c \rangle^c \quad (3.98)$$

En divisant l'équation (3.98) par $\frac{4}{3}\pi R^3$, nous obtenons l'équation de conservation pour n_c . Cette équation ne tient pas compte du phénomène de nucléation, qui fait apparaître des germes

dans le coeur de la phase liquide ou de fusion, qui les fait disparaître. Nous avons rajouté dans l'équation (3.99) un terme source \dot{n}_c pour tenir compte de ces phénomènes :

$$\boxed{\frac{\partial n_c}{\partial t} = -\nabla \cdot n_c \langle \vec{V}_c \rangle^c + \dot{n}_c} \quad (3.99)$$

La problématique de la nucléation de cristaux et les choix qui peuvent être pris pour \dot{n}_c sont abordés dans l'annexe G.

3.10 Equation de conservation des espèces

3.10.1 Equation macroscopique dans la phase solide

L'équation microscopique de conservation des espèces dans la phase solide (2.7) est moyennée sur le volume de prise de moyenne V_0 et les théorèmes de permutation de la prise de moyenne avec les dérivées temporelles et spatiales [102, 183] (rappelées dans les équations (A.6) et (A.7)) permettent d'aboutir à l'équation :

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c}{\partial t} = \langle \nabla \cdot \rho_c D_c \nabla C_c \rangle - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \vec{V}_c \rangle^c + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c C_c \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \quad (3.100)$$

Le terme de convection de l'équation (3.100) est décomposé selon la relation (A.17) qui fait apparaître le terme de transport convectif moyen, un terme de dispersion, et un terme dû à l'agitation des cristaux :

$$-\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \vec{V}_c \rangle^c = -\nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{C}_c \widetilde{\vec{V}}_c \rangle^c - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle (\nabla \langle C_c \rangle^c|_0 \vec{y} \widetilde{\vec{V}}_c + \widetilde{C}_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c|_0 \vec{y}) \rangle^c \quad (3.101)$$

La relation (A.20) montre que le dernier terme de (3.101) est nul.

$$\langle \widetilde{C}_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \vec{y} \rangle^c = 0 \quad (3.102)$$

Le terme de diffusion est développé en utilisant deux fois le théorème de permutation de la prise de moyenne avec une dérivée spatiale [102, 183] (équation (A.6), aboutissant à la somme suivante [24, 61]

$$\langle \nabla \cdot \rho_c D_c \nabla C_c \rangle = \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c D_c \nabla \langle C_c \rangle^c) + \rho_c D_c \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{C}_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c D_c \nabla C_c \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \quad (3.103)$$

Dans l'intégrale de surface , de l'équation (3.100), la concentration solide C_c à l'interface est égale à la concentration d'équilibre C_c^* . Cette dernière étant uniforme sur $A_{\ell c}$, il apparaît le taux de changement de phase :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c C_c \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA = \rho_c C_c^* \tau \quad (3.104)$$

L'équation macroscopique de conservation des espèces non fermée est obtenue en intégrant dans l'équation (3.100), les relations (3.101), (3.103) et (3.104). Elle est présentée dans l'équation suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c}{\partial t} &= \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c D_c \nabla \langle C_c \rangle^c) + \rho_c D_c \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{C}_c \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \\
 + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c D_c \nabla \widetilde{C}_c \cdot \vec{n}_{\ell c} dA &- \rho_c D_c \nabla \varepsilon_c \cdot \nabla \langle C_c \rangle^c - \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{C}_c \vec{V}_c \rangle^c \\
 - \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \nabla \langle C_c \rangle^c |_0 \langle \vec{y} \vec{V}_c \rangle) &+ \rho_c C_c^* \tau
 \end{aligned} \tag{3.105}$$

3.10.2 Modélisation du terme dépendant de l'agitation des cristaux

Pour traiter les termes de l'équation (3.105), qui dépend de la fluctuation de la vitesse solide, nous appliquons la méthode proposée dans l'annexe B. L'application de la relation (B.11) aboutit à un terme de diffusion :

$$\langle \nabla \langle C_c \rangle^c |_0 \vec{y} \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \langle C_c \rangle^c |_0 \langle \vec{y} \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \langle C_c \rangle^c |_0 \frac{\lambda_p \sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}}{6} I \tag{3.106}$$

Le coefficient de diffusion est proportionnel au libre parcours moyen et à une vitesse d'agitation des particules, ce qui est cohérent avec la théorie cinétique [54] (cf. annexe E).

3.10.3 Equation macroscopique dans la phase liquide

La prise de moyenne de l'équation microscopique de conservation des espèces dans la phase liquide (2.3) a été réalisée. Les théorèmes de permutation de la prise de moyenne volumique, avec les dérivées spatiales et temporelles [102, 183] (rappelées dans les équations (A.6) et (A.7)) donnent :

$$\frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} = \langle \nabla \cdot \rho_\ell D_\ell \nabla C_\ell \rangle - \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle C_\ell \vec{V}_\ell \rangle^\ell + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell C_\ell \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \tag{3.107}$$

Dans l'équation 3.107, nous reconnaissons trois termes similaires à ceux obtenus dans l'équation (3.100) de la phase solide. Le terme de convection est décomposé selon la relation (A.12). Un développement du terme de diffusion, identique à celui réalisé dans l'équation (3.103) est réalisé. Dans l'intégrale de surface, la concentration à l'interface $A_{\ell c}$ est égale à la concentration d'équilibre C_ℓ^* , ce qui nous permet de reconnaître le taux de changement de phase, comme dans le terme (3.104). Tous ces développements intégrés dans l'équation (3.107) forment l'équation suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} &= \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell D_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell D_\ell \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{C}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \\
 + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell D_\ell \nabla \widetilde{C}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA &- \rho_\ell D_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) - \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \widetilde{C}_\ell \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \rho_\ell C_\ell^* \tau
 \end{aligned}
 \tag{3.108}$$

3.10.4 Fermeture des équations de conservation des espèces :

Les équations (3.108) et (3.105) présentent des termes dépendants des fluctuations \widetilde{C}_c et \widetilde{C}_ℓ . Pour modéliser ces termes, nous allons poser un problème de fermeture sur ces fluctuations. Les équations sont développées en utilisant la décomposition de Gray [65] de C_c et C_ℓ dans les équations microscopiques (2.7) et (2.3). Le résultat est multiplié par la fraction volumique de la phase et l'on retranche les équations macroscopiques (3.105) et (3.108). Nous avons obtenu les deux équations suivantes [24, 61, 131, 133] :

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \frac{\partial \widetilde{C}_\ell}{\partial t} + \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell \cdot \nabla \widetilde{C}_\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \widetilde{C}_\ell \vec{V}_\ell \rangle^\ell =
 \tag{3.109}$$

$$\rho_\ell C_\ell^* \tau + \rho_\ell \varepsilon_\ell D_\ell \nabla^2 \widetilde{C}_\ell - \frac{\rho_\ell D_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell s} \cdot \nabla \widetilde{C}_\ell dA - \nabla \cdot \left[\frac{\rho_\ell D_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{C}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right]$$

$$\varepsilon_c \rho_c \frac{\partial \widetilde{C}_c}{\partial t} - \rho_c \langle C_c \rangle^c \frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} = -\rho_c C_c^* \tau + \rho_c \varepsilon_c D_c \nabla^2 \widetilde{C}_c
 \tag{3.110}$$

$$-\frac{\rho_c D_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \widetilde{C}_c dA - \nabla \cdot \left[\frac{\rho_c D_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{C}_c \vec{n}_{\ell c} dA \right]$$

Pour simplifier les équations (3.109) et (3.110), une analyse d'ordre de grandeur des différents termes est réalisée. Nous avons montré dans la partie 3.2.2 que la longueur de variation spatiale des grandeurs moyennées L_D étaient très supérieure à la longueur de variation spatiale l_ε des grandeurs fluctuantes [129, 133, 134]. Nous pouvons donc négliger les dérivées spatiales de termes moyennés devant les dérivées spatiales de termes fluctuants [129, 133, 134].

Nous avons aussi vu que le temps caractéristique d'évolution des grandeurs fluctuantes est faible devant celui des grandeurs moyennées [131] ($|\tilde{t}| \ll |t|$). Les déviations des champs évoluent donc très rapidement, et le problème de fermeture peut être considéré quasi-stationnaire.

De plus, nous avons discuté dans la partie 3.1 de l'intérêt de poser et résoudre les problèmes de fermeture dans un repère mobile lié se déplaçant à la vitesse moyenne de la phase solide $\langle \vec{V}_c \rangle^c$. Nous avons montré que les équations vérifiées dans le nouveau repère sont identiques à celles vérifiées dans le repère initial, à l'exception des vitesses \vec{V}_ℓ et $\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell$, auxquelles il faut retrancher $\langle \vec{V}_c \rangle^c$ (voir tableau 3.1).

Des considérations précédentes, découlent les équations suivantes [19, 24, 61] :

$$\varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \widetilde{C}_\ell + \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell = \rho_\ell \varepsilon_\ell D_\ell \nabla^2 \widetilde{C}_\ell - \frac{\rho_\ell D_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell s} \cdot \nabla \widetilde{C}_\ell dA \quad (3.111)$$

$$\rho_c \varepsilon_c D_c \nabla^2 \widetilde{C}_c - \frac{\rho_c D_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{c\ell} \cdot \nabla \widetilde{C}_c dA = 0 \quad (3.112)$$

Les équations (3.111) et (3.112), permettent de calculer les champs de fluctuation \widetilde{C}_ℓ et \widetilde{C}_c sur des cellules périodiques représentatives de structures réelles. Pour résoudre les problèmes de fermeture, des conditions aux limites doivent être rajoutées sur l'interface solide liquide $A_{\ell c}$, ainsi que sur la frontière de V_0 . L'équilibre chimique à l'interface solide liquide permet d'exprimer les compositions en fonction de la température [129, 130, 135] sur la surface $A_{\ell c}$:

$$\widetilde{C}_\ell = g_\ell(T_\ell) - \langle C_\ell \rangle^\ell \text{ sur } A_{\ell c} \quad (3.113)$$

$$\widetilde{C}_c = g_c(T_c) - \langle C_c \rangle^c \text{ sur } A_{\ell c} \quad (3.114)$$

Les conditions aux limites à la frontière de V_0 sont fixées par la périodicité du milieu [24, 61, 135] :

$$\widetilde{C}_c(\mathbf{r} + l_\varepsilon) = \widetilde{C}_c(\mathbf{r}) \text{ et } \widetilde{C}_\ell(\mathbf{r} + l_\varepsilon) = \widetilde{C}_\ell(\mathbf{r}) \quad (3.115)$$

Une dernière condition est imposée, pour assurer la nullité de la moyenne des champs fluctuants [19, 24, 61] :

$$\langle \widetilde{C}_c \rangle = 0 \text{ et } \langle \widetilde{C}_\ell \rangle = 0 \quad (3.116)$$

Les expressions (3.111), (3.112), (3.113), (3.114) (3.115) et (3.116), suggèrent que les déviations des champs C_ℓ et C_c sont générées par les grandeurs $C_c^* - \langle C_c \rangle^c$, $C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell$ et $\nabla \langle C_\ell \rangle^\ell$. Il est judicieux de poser [24, 61] :

$$\begin{cases} \widetilde{C}_c = \alpha_c (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) \\ \widetilde{C}_\ell = \alpha_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \mathbf{b}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \end{cases} \quad (3.117)$$

L'intégration des relations (3.117) dans les différentes équations (3.111), (3.112), (3.113), (3.114) (3.115) et (3.116) du problème de fermeture, permet d'établir 3 problèmes de fermeture [19, 24, 61] :

Problème 1 : portant sur la variable de fermeture \mathbf{b}_ℓ

$$\begin{aligned} \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \mathbf{b}_\ell + \vec{V}_\ell \cdot \nabla \mathbf{b}_\ell &= D_\ell \nabla^2 \mathbf{b}_\ell - \varepsilon_\ell^{-1} \mathbf{u}_\ell \\ \mathbf{b}_\ell &= 0 \text{ sur } A_{\ell c} \\ \langle \mathbf{b}_\ell \rangle &= 0 \\ \mathbf{b}_\ell(\mathbf{r} + l_i) &= \mathbf{b}_\ell(\mathbf{r}) \text{ sur } A_{\ell e} \end{aligned} \quad (3.118)$$

avec

$$\mathbf{u}_\ell = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot D_\ell \nabla \mathbf{b}_\ell dA \quad (3.119)$$

Problème 2 : portant sur la variable de fermeture α_ℓ

$$\begin{aligned} \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \alpha_\ell &= D_\ell \nabla^2 \alpha_\ell - \varepsilon_\ell^{-1} h_{m_{\ell c}} \\ \alpha_\ell &= 1 \text{ sur } A_{\ell c} \\ \langle \alpha_\ell \rangle &= 0 \\ \alpha_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) &= \alpha_\ell(\mathbf{r}) \text{ sur } A_{\ell e} \end{aligned} \quad (3.120)$$

avec

$$h_{m_{\ell c}} = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot D_\ell \nabla \alpha_\ell dA \quad (3.121)$$

Problème 3 : portant sur la variable de fermeture α_c

$$\begin{aligned} D_c \nabla^2 \alpha_c - \varepsilon_c^{-1} h_{m_c} &= 0 \\ \alpha_c &= 1 \text{ sur } A_{\ell c} \\ \langle \alpha_c \rangle &= 0 \\ \alpha_c(\mathbf{r} + \ell_i) &= \alpha_c(\mathbf{r}) \text{ sur } A_{\ell e} \end{aligned} \quad (3.122)$$

avec

$$h_{m_c} = \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot D_c \nabla \alpha_c dA \quad (3.123)$$

Les variables de fermeture \mathbf{b}_ℓ , α_ℓ et α_c sont utilisées pour quantifier les termes des équations macroscopiques (3.105) et (3.108).

Les termes d'échanges de masse interfaciaux des équations (3.105) et (3.108) sont modélisés en intégrant les relations (3.117) :

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c D_c \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \widetilde{C}_c dA = \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) \quad (3.124)$$

$$\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell D_\ell \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \widetilde{C}_\ell dA = \rho_\ell h_{m_{\ell c}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (3.125)$$

Les flux d'espèces sont proportionnels à des coefficients d'échanges h_{m_c} (phase c) et $h_{m_{\ell c}}$ (phase ℓ), et à l'écart entre la concentration moyenne et la concentration d'équilibre [107, 16, 149, 175, 24]. Par ailleurs, dans la phase liquide intervient un autre terme dans l'équation (3.125), qui quantifie les effets du gradient de concentration moyenne.

Le terme de dispersion fait intervenir la moyenne des produits des déviations de la vitesse liquide et de la concentration. Le terme est modélisé en remplaçant \widetilde{C}_ℓ par l'égalité (3.117) et $\widetilde{\mathbf{V}}_\ell$ par la relation (3.22) :

$$\nabla \cdot \rho_\ell \langle \widetilde{C}_\ell \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \rangle = \nabla \cdot \rho_\ell \langle \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \alpha_\ell \rangle (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot \rho_\ell \langle \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \quad (3.126)$$

Les termes de tortuosité dans les équations (3.105) et (3.108) quantifient les effets de la morphologie

$$\nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \rho_c D_c \vec{n}_{c\ell} \widetilde{C}_c dA = \nabla \cdot \rho_c D_c (-\nabla \varepsilon_c) (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) \quad (3.127)$$

$$\nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{t_c}} \rho_\ell D_\ell \vec{n}_{\ell c} \widetilde{C}_\ell dA = \nabla \cdot \rho_\ell D_\ell (-\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \quad (3.128)$$

3.10.5 Bilan :

Les équations macroscopiques de bilan de conservation des espèces sont les suivantes :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \rangle^\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) = \nabla \cdot (\rho_\ell D_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) \\ & + \rho_\ell h_{m_{t_c}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \rho_\ell C_\ell^* \tau - \rho_\ell D_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ & + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot \rho_\ell \langle \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \alpha_\ell \rangle (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \nabla \cdot \rho_\ell \langle \widetilde{\mathbf{V}}_\ell \mathbf{b}_\ell \rangle \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ & + \nabla \cdot \rho_\ell D_\ell (-\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \end{aligned} \quad (3.129)$$

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle C_c \rangle^c \langle \widetilde{\mathbf{V}}_c \rangle^c) = \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) \\ & + \rho_c C_c^* \tau + \nabla \cdot \rho_c D_c (-\nabla \varepsilon_c) (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) \\ & + \nabla \cdot (\rho_c D_c \nabla \langle C_c \rangle^c) - \rho_c D_c \nabla \varepsilon_c \cdot \nabla \langle C_c \rangle^c \end{aligned} \quad (3.130)$$

3.11 Equation sur le taux de changement de phase

Le système d'équations de conservation macroscopiques doit être complété par une expression du taux de solidification τ . L'équation est développée, en intégrant sur l'interface solide liquide de V_0 (surface $A_{\ell c}$), l'équation de conservation des espèces à l'interface solide-liquide (2.11) [24, 61] :

$$\int_{A_{\ell c}} [\rho_{\ell} C_c^* (-\vec{w}) - D_c \nabla C_c] \cdot \vec{n}_{\ell c} dA = \int_{A_{\ell c}} [\rho_{\ell} C_{\ell}^* (\vec{w}) - D_{\ell} \nabla C_{\ell}] \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \quad (3.131)$$

La décomposition de Gray [65] de C_c et C_{ℓ} est appliquée dans l'équation (3.131). De plus, en sortant les concentrations d'équilibres C_{ℓ}^* et C_c^* des intégrales, l'expression du taux de changement de phase apparaît :

$$\begin{aligned} -(C_c^* - C_{\ell}^*) \int_{A_{\ell c}} \rho_{\ell} \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA &= \int_{A_{\ell c}} (D_c \nabla \langle C_c \rangle^c - D_{\ell} \nabla \langle C_{\ell} \rangle^{\ell}) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \\ &+ \int_{A_{\ell c}} (D_c \nabla \tilde{C}_c - D_{\ell} \nabla \tilde{C}_{\ell}) \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \end{aligned} \quad (3.132)$$

Dans le membre de droite de l'équation (3.132), nous reconnaissons des termes similaires à ceux obtenus dans le développement des équations macroscopiques de conservation des espèces. Les égalités (3.124) et (3.125) sont intégrées dans l'équation du taux de changement de phase (3.132), pour former l'équation suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned} \rho_{\ell} (C_{\ell}^* - C_c^*) \tau &= \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) + \rho_{\ell} h_{m_{\ell}} (C_{\ell}^* - \langle C_{\ell} \rangle^{\ell}) \\ &+ \rho_{\ell} \mathbf{u}_{\ell} \cdot \nabla \langle C_{\ell} \rangle^{\ell} - \rho_c D_c \nabla \varepsilon_c \cdot \nabla \langle C_c \rangle^c - \rho_{\ell} D_{\ell} \nabla \varepsilon_{\ell} \cdot \nabla \langle C_{\ell} \rangle^{\ell} \end{aligned} \quad (3.133)$$

3.12 Conservation de l'énergie

Pour développer un modèle à une seule température [135, 56, 130] (température commune dans le solide et le liquide), nous intégrons les équations microscopiques (2.4) et (2.8) sur chaque phase. Les équations moyennes vérifiées sur chaque phase sont ensuite sommées. Une discussion portant sur le choix d'un modèle d'équilibre thermique a été proposée dans la partie 3.1.3.

3.12.1 Equation dans la phase solide

La prise de moyenne de l'équation microscopique de conservation de l'énergie dans la phase solide (2.8) a été réalisée. Les théorèmes de permutation de la prise de moyenne volumique, avec les dérivées spatiales et temporelles [102, 183] (rappelées dans les équations (A.6) et (A.7)) donnent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle H_c \rangle^c}{\partial t} &= -\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle H_c \vec{V}_c \rangle^c + \langle \lambda_c \nabla \cdot \nabla T \rangle \\ &+ \langle \rho_c \dot{Q}_c \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_c H_c \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell} dA \end{aligned} \quad (3.134)$$

La moyenne du terme de convection dans l'équation (3.134), peut-être décomposée selon la relation (A.17) pour aboutir à [24, 61] :

$$\begin{aligned} -\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle H_c \vec{V}_c \rangle^c &= -\nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle H_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \widetilde{H}_c \vec{V}_c \rangle^c \\ &- \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle (\nabla \langle H_c \rangle^c \vec{y}) \cdot \widetilde{\vec{V}}_c + \widetilde{H}_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \vec{y} \rangle^c \end{aligned} \quad (3.135)$$

Dans le membre de droite de (3.135), intervient le terme classique de convection moyenne, le terme de dispersion, et deux autres termes de transport. L'utilisation de la relation (A.20), démontrée dans l'annexe A permet d'écrire :

$$\langle \widetilde{H}_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \cdot \vec{y} \rangle^c = 0 \quad (3.136)$$

La moyenne du terme de diffusion de l'équation 3.134 est développée en appliquant deux fois le théorème de permutation de dérivée spatiale avec une intégrale volumique [102, 183], rappelé dans l'équation (A.7) :

$$\langle \lambda_c \nabla \cdot \nabla T \rangle = \nabla \cdot \lambda_c \varepsilon_c (\nabla \langle T \rangle^c) + \lambda_c \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T} \vec{n}_{\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \lambda_c \nabla T \cdot \vec{n}_{\ell} dA \quad (3.137)$$

L'équation macroscopique de conservation de l'énergie dans la phase solide est obtenue en intégrant les relations (3.135), (3.136) et (3.137) dans l'équation (3.134) :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle H_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle H_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) &= \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \rho_c H_c \vec{w} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA + \varepsilon_c \rho_c \langle \dot{Q}_c \rangle^c \\
 + \nabla \cdot (\lambda_c \varepsilon_c \nabla \langle T \rangle^c) + \lambda_c \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \tilde{T} \vec{n}_{c\ell} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \lambda_c \nabla T \cdot \vec{n}_{c\ell} dA & \\
 - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \nabla \langle H_c \rangle^c |_0 \vec{y} \vec{V}_c \rangle^c - \nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \tilde{H}_c \vec{V}_c \rangle^c &
 \end{aligned} \tag{3.138}$$

3.12.2 Modélisation des termes dépendants de l'agitation de la phase solide

Dans l'équation (A.17), une démarche pour modéliser les termes dépendants de la fluctuation de la vitesse solide a été proposée. Elle va être appliquée pour l'avant dernier terme de l'équation (3.138). Les résultats exposés dans l'équation (B.11) donnent un terme de diffusion :

$$\langle \nabla \langle H_c \rangle^c |_0 \vec{y} \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \langle H_c \rangle^c |_0 \langle \vec{y} \vec{V}_c \rangle^c = \nabla \langle H_c \rangle^c |_0 \frac{\lambda \sqrt{\langle \vec{V}_c \rangle^2}}{6} I \tag{3.139}$$

Le coefficient de diffusion est proportionnel au libre parcours moyen et à une vitesse d'agitation des particules, ce qui est cohérent avec la théorie cinétique [54] (cf. annexe E).

3.12.3 Equation dans la phase liquide

L'équation de conservation microscopique de l'énergie dans la phase liquide (2.4) est moyennée sur V_0 et nous appliquons le théorème (A.6) de permutation de la prise de moyenne avec la dérivée temporelle [102, 183], et le théorème (A.7) de permutation de la prise de moyenne avec la dérivée spatiale [102, 183], pour le terme de convection :

$$\frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell H_\ell \rangle^\ell = \langle \lambda_\ell \nabla \cdot \nabla T \rangle + \langle \rho_\ell \dot{Q}_\ell \rangle + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \rho_\ell H_\ell \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \tag{3.140}$$

Le terme de convection de l'équation (3.140) est traité en appliquant la relation (A.12) :

$$\nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell H_\ell \rangle^\ell = \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle H_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \tilde{H}_\ell \rangle^\ell \tag{3.141}$$

Le terme de diffusion est décomposé en appliquant deux fois le théorème (A.7) de permutation de la prise de moyenne avec la dérivée spatiale [102, 183] :

$$\langle \lambda_\ell \nabla \cdot \nabla T \rangle = \nabla \cdot (\lambda_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle T \rangle^\ell) + \lambda_\ell \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \tilde{T} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \lambda_\ell \nabla T \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \tag{3.142}$$

Les résultats obtenus dans les relations (3.141) et (3.142), sont intégrés dans l'équation (3.140) et donnent l'équation suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell}{\partial t} &= -\nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle H_\ell \rangle^\ell) - \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \widetilde{H}_\ell \rangle^\ell \\
 &+ \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \rho_\ell H_\ell \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA + \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \dot{Q}_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot (\lambda_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle T \rangle^\ell) \\
 &+ \lambda_\ell \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T} \vec{n}_{\ell c} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \lambda_\ell \nabla T \cdot \vec{n}_{\ell c} dA
 \end{aligned} \tag{3.143}$$

3.12.4 Problèmes de fermeture pour les fluctuations de l'enthalpie

Dans cette partie, nous allons écrire des problèmes de fermeture sur \widetilde{H}_ℓ et \widetilde{H}_c afin de fermer les équations macroscopiques de conservation de l'énergie. Nous avons discuté dans la partie 3.1 de la possibilité de développer les problèmes de fermeture dans un repère lié au mouvement moyen de la phase solide et en supposant nulle la fluctuation de la vitesse solide. Les équations de fermeture dans ce nouveau repère sont identiques à celles obtenues dans le repère fixe, à l'exception de la vitesse liquide \vec{V}_ℓ pour laquelle il faut retrancher $\langle \vec{V}_c \rangle^c$ (voir tableau 3.1).

Les relations de fermeture sont obtenues en introduisant la décomposition de Gray [65] (rappelée dans l'équation (A.5)) dans les équations microscopiques, qui sont multipliée par les fractions volumiques de phase et auxquelles sont retranchées les équations macroscopiques.

Dans la phase liquide l'équation vérifiée dans le repère mobile est la suivante [24, 61] :

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_c \rho_c \frac{\partial \widetilde{H}_\ell}{\partial t} &= -\rho_\ell \langle \vec{V}_\ell^* \rangle^\ell \langle H_\ell \rangle^\ell \nabla \varepsilon_\ell - \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \widetilde{H}_\ell - \varepsilon_\ell \rho_\ell \vec{V}_\ell \cdot \nabla \langle H_\ell \rangle^\ell \\
 &+ \nabla \cdot \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \widetilde{H}_\ell \rangle^\ell + \lambda_\ell \varepsilon_\ell \nabla^2 \widetilde{T}_\ell - \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA \right] - \frac{\lambda_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \nabla \widetilde{T}_\ell \cdot \vec{n}_{\ell c} dA
 \end{aligned} \tag{3.144}$$

Dans la phase solide l'équation vérifiée est la suivante [24, 61] :

$$\varepsilon_c \frac{\partial \rho_c \widetilde{H}_c}{\partial t} = \varepsilon_c \lambda_c \nabla^2 \widetilde{T}_c - \nabla \cdot \left[\frac{\lambda_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T}_c \vec{n}_{c\ell} dA \right] - \frac{\lambda_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{c\ell} \cdot \nabla \widetilde{T}_c dA \tag{3.145}$$

Pour simplifier les équations (3.144) et (3.145) un raisonnement sur les ordres de grandeurs des différents termes a été mené. Nous procédons de la même façon que dans la partie 3.2.2 où nous avons vu que la longueur de variation spatiale des grandeurs moyennées L_D étaient très supérieure à la longueur de variation spatiale l_c des grandeurs fluctuantes [129, 133, 134]. Les dérivées spatiales de termes moyennés sont négligeables devant les dérivées spatiales de grandeurs fluctuantes [129, 133, 134].

Par ailleurs, l'échelle temporelle de variation des fluctuations étant inférieure à celle des champs moyens [131] ($|\tilde{t}| \ll t$), l'évolution du champ fluctuant est beaucoup plus rapide que celles des champ moyen, et le problème de fermeture est quasi-stationnaire. Cela permet de simplifier les termes de dérivées temporelles et aboutir aux équations :

$$\varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \vec{V}_{\ell}^* \cdot \nabla \widetilde{H}_{\ell} + \varepsilon_{\ell} \rho_{\ell} \vec{V}_{\ell} \cdot \nabla \langle H_{\ell} \rangle^{\ell} = \lambda_{\ell} \varepsilon_{\ell} \nabla^2 \widetilde{T}_{\ell} - \frac{\lambda_{\ell}}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \nabla \widetilde{T}_{\ell} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA \quad (3.146)$$

$$\lambda_c \nabla^2 \widetilde{T}_c - \frac{1}{V_c} \int_{A_{\ell c}} \lambda_c \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \widetilde{T}_c = 0 \quad (3.147)$$

La résolution du problème de fermeture est réalisée sur une cellule périodique représentative des structures locales (comme celle de l'image A.1) [24, 61]. Il convient donc de rajouter des conditions aux limites, à l'interface solide-liquide ($A_{\ell c}$), et à la frontière de V_0 .

La continuité de la température , à l'interface solide-liquide, fournit la première condition [24] :

$$\widetilde{T}_{\ell} - \widetilde{T}_c = \langle T_c \rangle^c - \langle T_{\ell} \rangle^{\ell} = 0 \implies \widetilde{T}_{\ell} = \widetilde{T}_c \quad (3.148)$$

La condition à la limite, à l'interface solide-liquide, pour le flux découle de l'équation (2.12) [24, 61] :

$$\begin{aligned} \rho_c \vec{n}_{\ell c} \cdot \vec{w} \left(\widetilde{H}_{\ell} - \widetilde{H}_c \right) + \vec{n}_{\ell c} \cdot \left(\lambda_c \nabla \widetilde{T}_c - \lambda_{\ell} \nabla \widetilde{T}_{\ell} \right) = \\ \rho_c \vec{n}_{\ell c} \cdot \vec{w} \left(\langle H_c \rangle^c - \langle H_{\ell} \rangle^{\ell} \right) + \vec{n}_{\ell c} \cdot \left(\lambda_{\ell} \nabla \langle T_{\ell} \rangle^{\ell} - \lambda_c \nabla \langle T_c \rangle^c \right) \end{aligned} \quad (3.149)$$

L'hypothèse d'équilibre thermique local ($\langle T_c \rangle^c = \langle T_{\ell} \rangle^{\ell} = \langle T \rangle$) [135] est conservée dans ce problème de fermeture, et en considérant que les vitesses de diffusion thermique sont grandes devant les vitesses de croissance cristalline [24, 135], il vient :

$$\vec{n}_{\ell c} \cdot \left(\lambda_c \nabla \widetilde{T}_c - \lambda_{\ell} \nabla \widetilde{T}_{\ell} \right) = (\lambda_{\ell} - \lambda_c) \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \langle T \rangle \quad (3.150)$$

Les conditions aux limites sur les frontières de V_0 sont imposées par la périodicité du milieu et des champs [24, 61, 135] :

$$\widetilde{T}_c(\mathbf{r} + l_{\varepsilon}) = \widetilde{T}_c(\mathbf{r}) \text{ et } \widetilde{T}_{\ell}(\mathbf{r} + l_{\varepsilon}) = \widetilde{T}_{\ell}(\mathbf{r}) \quad (3.151)$$

De plus, il est nécessaire d'ajouter une relation pour garantir une valeur moyenne nulle des fluctuations [24, 61, 135] :

$$\langle \widetilde{T}_c \rangle = 0 \text{ et } \langle \widetilde{T}_{\ell} \rangle = 0 \quad (3.152)$$

Pour la résolution du problème de fermeture, nous rappelons que $\nabla \langle H_{\ell} \rangle^{\ell} = C_{p_{\ell}} \nabla \langle T \rangle$ et $\nabla \widetilde{H}_{\ell} = C_{p_{\ell}} \nabla \widetilde{T}_{\ell}$ [24, 61, 135]. En toute rigueur, il faudrait rajouter une dépendance de l'enthalpie à la concentration C_{ℓ} . Un couplage serait alors nécessaire entre les problèmes de fermeture thermique et solutaux. Comme Bousquet-Mélou [24, 61], nous négligeons cette dépendance même si nous manquons d'éléments pour justifier cette hypothèse.

Etant donnée la structure des équations (3.150), (3.146) et (3.147), nous pouvons considérer que $\nabla\langle T \rangle$ est l'unique terme source qui génère les fluctuations de \widetilde{T}_ℓ et \widetilde{T}_c . Par conséquent, les champs \mathbf{e}_c et \mathbf{e}_ℓ sont introduits :

$$\begin{cases} \widetilde{T}_c = \mathbf{e}_c \cdot \nabla\langle T \rangle \\ \widetilde{T}_\ell = \mathbf{e}_\ell \cdot \nabla\langle T \rangle \end{cases} \quad (3.153)$$

Les relations (3.153) sont introduites dans les équations (3.150), (3.146) et (3.147), pour donner le système suivant, valable dans le repère mobile.

$$\begin{aligned} \lambda_c \nabla^2 \mathbf{e}_c - \frac{\lambda_c}{V_c} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{c\ell} \cdot \nabla \mathbf{e}_c dA &= 0 \\ \rho_\ell C_{p\ell} \vec{V}_\ell^* \cdot \nabla \mathbf{e}_\ell + \rho_\ell C_{p\ell} \vec{V}_\ell \cdot \nabla \mathbf{e}_\ell &= \lambda_\ell \nabla^2 \mathbf{e}_\ell - \frac{\lambda_\ell}{V_\ell} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \mathbf{e}_\ell dA \\ \lambda_c \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \mathbf{e}_c - \lambda_\ell \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \mathbf{e}_\ell &= (\lambda_\ell - \lambda_c) \vec{n}_{\ell s} \text{ sur } A_{\ell c} \\ \mathbf{e}_c &= \mathbf{e}_\ell \text{ sur } A_{\ell c} \\ \mathbf{e}_c(\mathbf{r} + \ell_i) &= \mathbf{e}_c(\mathbf{r}), \mathbf{e}_\ell(\mathbf{r} + \ell_i) = \mathbf{e}_\ell(\mathbf{r}) \text{ sur } A_{\ell c} \\ \langle \mathbf{e}_c \rangle &= 0, \langle \mathbf{e}_\ell \rangle = 0 \end{aligned} \quad (3.154)$$

Après résolution du système (3.154), sur une cellule périodique représentative du milieu, nous pouvons évaluer les champs \mathbf{e}_ℓ et \mathbf{e}_c [24, 61]. Il est alors possible d'exprimer certains termes complexes des équations moyennées (3.138) et (3.143).

Le terme de dispersion dans l'équation (3.143) prend la forme :

$$-\nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \widetilde{H}_\ell \rangle^\ell = -\nabla \cdot \left(\rho_\ell C_{p\ell} \langle \vec{V}_\ell \mathbf{e}_\ell \rangle \nabla \langle T \rangle \right) \quad (3.155)$$

Les termes de tortuosité dans les équations (3.138) et (3.143) prennent la forme :

$$\lambda_\ell \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T}_\ell \vec{n}_{\ell c} dA_\ell = \nabla \cdot \left(\frac{\lambda_\ell}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \mathbf{e}_\ell dA \nabla \langle T \rangle \right) \quad (3.156)$$

$$\lambda_c \nabla \cdot \frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \widetilde{T}_c \vec{n}_{\ell c} dA_\ell = \nabla \cdot \left(\frac{\lambda_c}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \mathbf{e}_c dA \nabla \langle T \rangle \right) \quad (3.157)$$

Nous pouvons alors regrouper les termes de diffusion des équations (3.138) et (3.143), dispersion (3.155), tortuosité (3.156) et (3.157) pour former le tenseur de diffusion-dispersion anisotrope dont l'expression est [24, 61, 135] :

$$\Lambda_{eff} = \underbrace{(\varepsilon_\ell \lambda_\ell + \varepsilon_c \lambda_c)}_{diffusion} I - \underbrace{\rho_\ell C_{p\ell} \langle \vec{V}_\ell \mathbf{e}_\ell \rangle}_{dispersion} + \underbrace{\frac{\lambda_\ell + \lambda_c}{V} \int_{A_{\ell c}} \vec{n}_{\ell c} \mathbf{e}_\ell dA}_{tortuosité} \quad (3.158)$$

3.12.5 Bilan

Pour obtenir une unique équation de conservation de l'énergie, vérifiée dans le mélange des deux phases, les équations de conservation (3.138) et (3.143) sont sommées [24, 61, 135]. La relation de conservation de l'énergie à l'interface solide-liquide (2.12) permet la simplification de quatre des termes :

$$\begin{aligned} & \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \rho_c H_c \vec{w} \cdot \vec{n}_{cl} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \lambda_c \nabla T \cdot \vec{n}_{cl} dA + \\ & \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \rho_\ell H_\ell \vec{w} \cdot \vec{n}_{\ell c} dA + \frac{1}{V_0} \int_{A_{tc}} \lambda_\ell \nabla T \cdot \vec{n}_{\ell c} dA = 0 \end{aligned} \quad (3.159)$$

L'équation de conservation de l'énergie du mélange, tenant compte des relations (3.158), (3.139) est la suivante :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle H_\ell \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \langle H_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle H_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle H_c \rangle^c) = -\nabla \cdot \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \widetilde{H}_c \rangle^c \\ & + \frac{\lambda \sqrt{\langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2}}{6} \nabla \cdot \rho_\ell \varepsilon_\ell \nabla H_c + \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \dot{Q}_\ell \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \langle \dot{Q}_c \rangle^c + \nabla \cdot \Lambda_{eff} \nabla \langle T \rangle^\ell \end{aligned}$$

(3.160)

L'expression de l'énergie dans chacune des phases peut-être exprimée en fonction de la température moyenne, après avoir au préalable introduit, la chaleur latente L [24] :

$$\langle H_c \rangle^c = C_{p_c} \langle T \rangle \text{ et } \langle H_\ell \rangle^\ell = C_{p_\ell} \langle T \rangle + L.$$

Notons $\rho C_{p_m} = \rho_c \varepsilon_c C_{p_c} + \rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_\ell}$.

$$\begin{aligned} & \frac{\partial \rho C_{p_m} \langle T \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_\ell} \langle T \rangle \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell L \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c C_{p_c} \langle T \rangle \langle \vec{V}_c \rangle^c) \\ & = \frac{\lambda \sqrt{\langle \vec{V}_c \rangle^c{}^2}}{6} \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_c} \nabla \langle T \rangle) + \nabla \cdot (\Lambda_{eff} \nabla \langle T \rangle) - \rho_\ell L \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \dot{Q}_\ell \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \langle \dot{Q}_c \rangle^c \end{aligned}$$

(3.161)

3.13 Bilan du système complet d'équations macroscopiques

Dans ce chapitre, nous avons développé un modèle macroscopique de solidification équiaxe de mélanges binaires. Ce travail a été réalisé dans la continuité des développements portant sur la modélisation de la croissance colonnaire [24, 61]. En conséquence, il y a des similarités entre les deux modèles :

- La méthode utilisée pour développer les équations est la prise de moyenne volumique [183, 132, 133, 134, 131], des équations de conservation microscopiques sur chaque phase [24, 61].

- Une hypothèse de non équilibre chimique, qui distingue les concentrations moyennes intrinsèques des concentrations d'équilibre a été posée pour la conservation des espèces [108, 18, 24, 61]. Des flux de masse interviennent à l'interface entre les deux phases, du côté liquide et du côté solide, dans les équations (3.129), (3.130) et (3.133). Ces flux sont proportionnels au déséquilibre chimique $(C_k^* - \langle C_k \rangle^k)$ et à des coefficients d'échange d'espèces $h_{m_{lc}}$, côté liquide et h_{m_c} côté solide. En outre les changements de phase (équation (3.133)) sont contrôlés par ce déséquilibre chimique.

- Pour l'équation de bilan d'énergie (3.161), une hypothèse d'équilibre thermique, consistant à supposer égales les températures moyennes de chaque phase a été prise, ce qui mène à une unique équation différentielle [135, 24, 61].

- Des problèmes de fermeture portant sur les fluctuations des champs ont été posés. Ces problèmes peuvent être résolus sur des cellules périodiques représentatives et ils permettent de fermer les équations macroscopiques [60, 24, 106, 61].

- Des termes non classiques et analogues aux termes en gradients de porosité quantifiant les effets des hétérogénéités évolutives dans le modèle colonnaire [19, 59, 60], sont apparus. Ces termes qui interviennent dans les équations (3.28), (3.129), (3.61), (3.133) n'ont jusqu'à présent jamais été considérés pour la solidification équiaxe.

Des apports ont été nécessaires pour arriver au modèle équiaxe :

- Pour intégrer le transport de phase solide, nous avons développé un modèle d'écoulements diphasiques, constitué des équations (3.5), (3.28), (3.4), (3.61).

- Dans les équations de conservation de la quantité de mouvement solide (3.61), une série de termes dépendant de la fluctuation de vitesse interviennent. Nous avons proposé une méthodologie inspirée de la théorie cinétique des milieux granulaires [54, 91, 146, 73, 74, 72] pour fermer ces équations. Cette méthode donne lieu à une équation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation (équation (3.87)). Les nouveaux termes sont modélisés en fonction de ce nouveau champ.

- Une équation de conservation de la densité volumique de cristaux a été introduite (équation (3.99)). Cette grandeur est un indicateur du caractère dispersé de phase solide colonnaire.

Nous rappelons dans le tableau 3.5 l'ensemble des équations constituant le modèle macroscopique sans les problèmes de fermeture qui ont été vus dans les différentes parties de ce chapitre.

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell = -\tau, \text{ et } \frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c = \tau \quad (3.162)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) &= -\rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau - \varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{g} - \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_\ell \\ + \nabla \cdot (\mu_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) - \varphi_{lc} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) &+ \mu_\ell \nabla \cdot \left(\frac{1}{V_0} \int_{A_{\ell c}} \mathbf{M} \cdot \vec{n}_{c\ell} dA \right) (\langle \vec{V}_c \rangle^c - \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) \end{aligned} \quad (3.163)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) &= \nabla \cdot (\rho_\ell D_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell h_{m_{\ell c}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \rho_\ell D_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ - \rho_\ell C_\ell^* \tau + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell - \nabla \cdot \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \alpha_\ell (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) &- \nabla \cdot \rho_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \mathbf{b}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell + \nabla \cdot \rho_\ell D_\ell (-\nabla \varepsilon_\ell) (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \end{aligned} \quad (3.164)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) &= -\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varphi_{lc} (\langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) \\ + \rho_c \varepsilon_c \vec{g} + \mu_\ell \nabla \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \cdot \nabla \varepsilon_c + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau &- \nabla \cdot (P_{choc} + P_K + P_{dis}) \end{aligned} \quad (3.165)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) &= 2 (P_k + P_{choc} + P_{dis}) : \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c \\ - \nabla \cdot \vec{q}_K + \rho_c \varepsilon_c^2 \frac{3}{R} (\kappa^2 - 1) \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c &+ \rho_c \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c \tau - 2 \varphi_{lc} \langle \vec{V}_c^2 \rangle^c \end{aligned} \quad (3.166)$$

$$\frac{\partial n_c}{\partial t} = -\nabla \cdot n_c \langle \vec{V}_c \rangle^c + \dot{n}_c \quad (3.167)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle C_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) &= \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) + \rho_c C_c^* \tau \\ + \nabla \cdot \rho_c D_c (-\nabla \varepsilon_c) (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) &+ \nabla \cdot (\rho_c D_c \nabla \langle C_c \rangle^c) - \rho_c D_c \nabla \varepsilon_c \cdot \nabla \langle C_c \rangle^c \end{aligned} \quad (3.168)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho C_{p_m} \langle T \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_\ell} \langle T \rangle \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) &+ \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell L \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c C_{p_c} \langle T \rangle \langle \vec{V}_c \rangle^c) \\ = \frac{\lambda \sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}}{6} \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_c} \nabla \langle T \rangle) &+ \nabla \cdot \Lambda_{eff} \nabla \langle T \rangle - \rho_\ell L \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \dot{Q}_\ell \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \langle \dot{Q}_c \rangle^c \end{aligned} \quad (3.169)$$

$$\begin{aligned} \rho_\ell (C_\ell^* - C_c^*) \tau &= \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) + \rho_\ell h_{m_{\ell c}} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell \mathbf{u}_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \\ &- \rho_c D_c \nabla \varepsilon_c \cdot \nabla \langle C_c \rangle^c - \rho_\ell D_\ell \nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell \end{aligned} \quad (3.170)$$

TAB. 3.5: Bilan des équations du modèle macroscopique complet de solidification équiaxe

3.14 Discrétisation et implémentation numérique d'un modèle simplifié

3.14.1 Un modèle simplifié

Nous avons déjà présenté dans la partie 3.7.2, un modèle simplifié d'écoulements diphasiques [116, 46]. Les simplifications qui ont été faites sont maintenues et nous allons rajouter la résolution des équations de conservation de l'énergie, des espèces et de la densité volumique de cristaux. Comme nous négligeons l'agitation cinétique des cristaux, cela simplifie dans les équations (3.168) et (3.169), les termes relatifs à cette agitation.

Par ailleurs, nous négligeons les termes dépendants de gradients de la fraction volumique liquide dans les équations (3.168) et (3.169). Nous manquons d'arguments pour justifier cette simplification, car leur étude n'a jamais été réalisée pour des structures équiaxes. Nous avons cependant vu dans la partie (2.3), qu'ils avaient peu d'influence sur plusieurs exemples de solidification colonnaire.

Les équations finales du modèle macroscopique simplifié de solidification équiaxe sont listées dans la table 3.6.

3.14.2 Discrétisation du modèle complet

La discrétisation des nouvelles équations est réalisée par la méthode des Volumes Finis, en linéarisant les termes non linéaires (termes de convection...) [116, 46, 24]. Nous avons rappelé dans la partie 3.7.2, les choix qui ont été fait pour la résolution du modèle d'écoulements diphasiques. Ces choix (notamment pour les discrétisations spatiales et temporelles) ont été repris pour les nouvelles équations.

Etant donnée la complexité du système complet, constitué par neuf équations fortement couplées, nous avons décidé de réaliser une résolution itérative, en regroupant certaines équations. Ce travail de regroupement est inspiré du travail de Bousquet-Mélou [24] pour le modèle colonnaire. Pour un pas de temps donné, une itération se déroule de la façon suivante :

- **Etape 1 :** Les équations de conservation de la quantité de mouvement (3.172) et (3.174) sont résolues avec l'équation 3.93 pour obtenir des champs de vitesse moyenne des deux phases et le champ de pression moyenne. La méthode SIMPLEC [116, 46] généralisée pour les écoulements diphasiques et décrite à la partie 3.7.2 est utilisée.
- **Etape 2 :** L'équation de conservation de l'énergie (3.177) est résolue avec les champs de vitesse calculés à l'Etape 1. Le taux de changement de phase qui intervient dans cette équation est évalué sur les données de l'itération précédente.
- **Etape 3 :** L'équation de conservation de la densité volumique de cristaux (3.175) est résolue. Le taux de nucléation, qui dépend de la surfusion, est calculé avec le champ de température calculé à l'Etape 3 et le champ de concentration liquide calculé à l'itération précédente.

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^\ell = -\tau, \text{ et } \frac{\partial \varepsilon_c}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c = \tau \quad (3.171)$$

$$\frac{\partial \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^\ell \langle \vec{V}_c \rangle^\ell) = -\rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau - \varepsilon_\ell \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{g} + \nabla \cdot (\mu_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^\ell) - \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_c \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) \quad (3.172)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\ell \rho_\ell \langle C_\ell \rangle^\ell}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_\ell \rho_\ell \langle \vec{V}_c \rangle^\ell \langle C_\ell \rangle^\ell) = \nabla \cdot (\rho_\ell D_\ell \varepsilon_\ell \nabla \langle C_\ell \rangle^\ell) + \rho_\ell h_{m_\ell c} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) - \rho_\ell C_\ell^* \tau \quad (3.173)$$

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) = -\varepsilon_c \nabla \langle P_\ell \rangle^\ell + \varphi_{\ell c} (\langle \vec{V}_c \rangle^\ell - \langle \vec{V}_c \rangle^c) + \rho_c \varepsilon_c \vec{g} + \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \tau + \nabla \cdot (\varepsilon_c \mu_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c) \quad (3.174)$$

$$\frac{\partial n_c}{\partial t} = -\nabla \cdot n_c \langle \vec{V}_c \rangle^c + \dot{n}_c \quad (3.175)$$

$$\frac{\partial \rho_c \varepsilon_c \langle C_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle C_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) = \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) + \rho_c C_c^* \tau + \nabla \cdot \rho_c D_c \nabla \langle C_c \rangle^c \quad (3.176)$$

$$\frac{\partial \rho C_{p_m} \langle T \rangle}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_\ell} \langle T \rangle \langle \vec{V}_c \rangle^\ell) + \nabla \cdot (\rho_c \varepsilon_c C_{p_c} \langle T \rangle \langle \vec{V}_c \rangle^c) = \nabla \cdot (\rho_\ell \varepsilon_\ell C_{p_\ell} \nabla \langle T \rangle) + \nabla \cdot (\Lambda_{\text{eff}} \nabla \langle T \rangle) - \rho_\ell L \frac{\partial \varepsilon_\ell}{\partial t} + \rho_\ell \varepsilon_\ell \langle \dot{Q}_c \rangle^\ell + \rho_c \varepsilon_c \langle \dot{Q}_c \rangle^c \quad (3.177)$$

$$\rho_\ell (C_\ell^* - C_\ell^*) \tau = \rho_c h_{m_c} (C_c^* - \langle C_c \rangle^c) + \rho_\ell h_{m_\ell c} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \quad (3.178)$$

TAB. 3.6: Bilan des équations du modèle macroscopique simplifié de solidification équiaxe

- **Étape 4 :** Les équations de conservation des espèces (3.173) et (3.176) dans les deux phases, et l'équation différentielle sur le taux de changement de phase (3.178) sont résolues dans le même système linéaire pour tenir compte du fort couplage entre ces trois équations. Les valeurs des champs utilisés dans ce système sont celles calculées tout au long des 4 premières étapes.
- **Étape 5 :** Si la norme de la différence entre deux itérations des champs est inférieure au critère de convergence choisi, alors on considère que les champs sont convergés, et l'on passe au pas de temps suivant. Dans le cas contraire, la boucle itérative est reprise à l'étape 1 (méthode de point fixe [145]).

La résolution des systèmes linéaires s'effectue avec la méthode itérative de **Gauss Seidel** [88, 89]. Seul le problème linéaire concernant la résolution de la correction de pression est résolu par une méthode de projection **CGS avec préconditionnement LU** [145]. Le code de calcul a été réalisé en fortran 77, à partir du code de calcul développé durant la thèse de Patrick Bousquet-Mélou [24], et issu du module de thermohydraulique 2-D du code d'accident grave ICARE-CATHARE de l'IRSN [47]. Les moyens de calculs utilisés sont ceux de la DPAM, avec un calculateur SUN F4800 UltraSparc 3 à 750 MHz avec 16 Go de RAM à 150 MHz et un Cluster de PC constitué d'un maître (Intel PIV à 1,9 GHz et 1 Go de RAM) et 32 esclaves (Intel PIV à 3 GHz et 2 Go de RAM). Les moyens de calculs étant partagés avec l'ensemble des personnes de deux services de la DPAM.

3.15 Validation du modèle de solidification équiaxe

Un premier travail de validation a été réalisé à la partie 3.8, qui portait uniquement sur le modèle d'écoulements diphasiques. Dans cette partie, nous nous intéressons à des cas présentant des changements de phases.

3.15.1 Expérience de Wang & Beckermann en $NH_4Cl - H_2O$

Beckermann & Wang [18] ont réalisé cette expérience, afin de valider le modèle triphasique décrit dans [175]. Nous rappelons que ce modèle triphasique présente la particularité de distinguer une phase solide, une phase liquide interdendritique, et le liquide extra-dendritique. Le mélange utilisé pour l'expérience est un sel binaire $NH_4Cl - H_2O$ dont les propriétés sont listées dans le tableau 3.7. Le schéma de l'expérience est présenté sur la figure 3.4. Le mélange contenant 70% d'eau en masse est contenu dans une cavité carrée, refroidie par circulation d'eau. Le dispositif est instrumenté de thermocouples (notés A, B, C, D et représentés sur la figure 3.15.2) situés à l'intérieur de la cavité et sur l'une des parois du volume expérimental. Ce dernier permet donc d'estimer la condition aux limites en température, ce qui présente un intérêt pour réaliser des calculs. Par ailleurs, ce mélange binaire étant transparent, des photographies ont été réalisées durant l'expérience. Elles permettent de visualiser les cristaux dans le bain et notamment, d'observer le lit de cristaux.

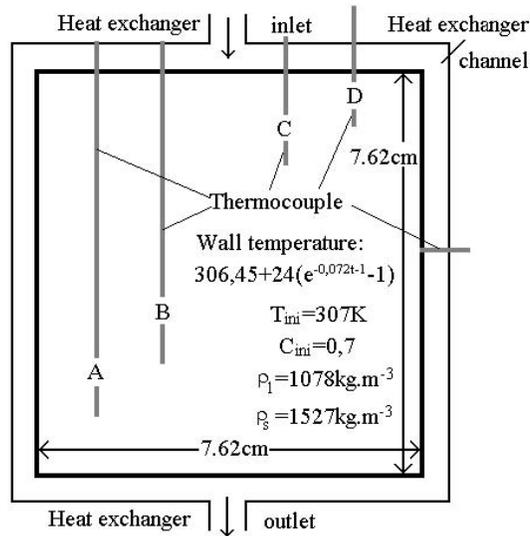


FIG. 3.4: Principe de l'expérience de solidification équiaxe de Wang & Beckermann.

3.15.2 Calcul de l'expérience de Wang & Beckermann

Nous avons utilisé le modèle simplifié de solidification équiaxe pour simuler l'expérience de Wang en $NH_4Cl - H_2O$. Nous avons utilisé la loi de coefficient d'échange de quantité de mouvement suivante :

PROPRIETES PHYSIQUES		
$C_{p\ell}$	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	3249
C_{ps}	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	1827
λ_ℓ	$W.m^{-1}.K^{-1}$	0,468
λ_s	$W.m^{-1}.K^{-1}$	2,7
L	$J.kg^{-1}$	31380
ρ_ℓ, ρ_s	$kg.m^{-3}$	1078
ρ_ℓ (terme de gravité)	$kg.m^{-3}$	$1078(1 - 3,23.10^{-4}(T - T_{ini}) - 3,65.10^{-4}(C_\ell - C_{ini}))$
ρ_s (terme de gravité)	$kg.m^{-3}$	1527
μ_ℓ	$kg.m^{-1}.s^{-1}$	0,0013
D_ℓ	$m^2.s^{-1}$	$4,8.10^{-9}$
D_s	$m^2.s^{-1}$	10^{-15}
CONDITIONS EXPERIMENTALES		
T_{ini}	K	307
T_{out}	K	$306,45 + 24(e^{-0,072t} - 1)$
DIAGRAMME DE PHASE		
T_m	K	629,403
T_{eut}	K	259,2
C_{eut}	$wt\%$	0,803
k		0,003
MAILLAGES UTILISES		
Nombre de mailles selon x (n_x)		40
Type de maillage		régulier
Nombre de mailles selon y (n_y)		40
Type de maillage		régulier

TAB. 3.7: Jeux de données pour l'expérience de Wang & Beckermann.

$$\varphi_{\ell c} = \frac{\mu_{\ell} A_k}{l_V} \quad (3.179)$$

Une discussion sur les coefficients d'échange est proposée dans l'annexe C. Le choix qui a été fait (tout comme dans la partie 3.8.2), vise à utiliser une loi valable pour toutes les tailles de cristaux. Elle dépend de la viscosité liquide, de la densité d'aire interfaciale et de longueur caractéristique de la couche visqueuse autour du solide. En supposant les cristaux sphériques, il est possible d'exprimer A_k en fonction de n_c et ε_c , pour obtenir :

$$\varphi_{\ell c} = \mu_{\ell} \left(48\pi^2 \varepsilon_c n_s^2 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.180)$$

Pour la viscosité solide, nous avons pris la loi suivante :

$$\mu_c^* = \mu_{\ell} \left(2.5 + 10^{10} \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}} \right)^{10} \right) \text{ pour } \varepsilon_c \leq \varepsilon_{cmax}, \text{ sinon } \mu_c^* = \infty \quad (3.181)$$

Une discussion sur la loi de viscosité effective est proposée dans l'annexe D. Nous avons pris le paramètre $\varepsilon_{cmax} = 0,1$, correspondant à la limite d'agglomération. La valeur de 0,1 est assez faible, ce qui correspond à la formation de cristaux très dendritiques. Ce choix a été fait, à partir des résultats présentés par Beckermann & Wang [18] qui ont calculé une fraction solide interne moyenne (le rapport entre la fraction solide et la fraction du volume constitué par la phase solide et la phase liquide interdendritique) proche de 0,15. Etant donnée que la valeur limite d'agglomération est de 0,64 pour la fraction volumique de la phase constituée de solide et liquide interdendritique, nous obtenons une limite d'agglomération de $0,15 * 0,64 \sim 0,1$.

Concernant la loi de nucléation, nous supposons une loi continue : la densité de sites de nucléation dépend du sous-refroidissement $\Delta T = T_m + m_l C_{\ell} - T$, avec :

$$\dot{n}_c = 0 \text{ pour } \Delta T \leq 8, \text{ et } \dot{n}_c = 10^{10} \cdot (\Delta T - 8)^2 \text{ partout ailleurs} \quad (3.182)$$

Une discussion sur les lois de nucléation qui ont été utilisées dans d'autres études est réalisée dans l'annexe G. Cette loi de nucléation se distingue de celle utilisée par Beckermann et Wang, qui prennent une loi de nucléation instantanée avec $n_0 = 10^9 m^{-3}$ sites de nucléation.

Concernant les coefficients d'échange d'espèces, nous avons pris la même dépendance que Beckermann et Wang [18] :

$$h_{m_{\ell c}} = \frac{\rho_{\ell} D_{\ell} A_k}{l_f}, \quad h_{m_c} = \frac{\rho_c D_c A_k}{l_c} \quad (3.183)$$

puis, nous avons évalué la densité d'aire interfaciale en supposant les cristaux sphériques pour aboutir à :

$$h_{m_{\ell c}} = \rho_{\ell} D_{\ell} \left(48\pi^2 \varepsilon_c n_s^2 \right)^{\frac{1}{3}}, \quad h_{m_c} = \rho_c D_c \left(48\pi^2 \varepsilon_c n_s^2 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (3.184)$$

La figure 3.5 présente le champ de fraction volumique de cristaux après 800s de solidification ainsi que le champ de vitesse.

Les cristaux ayant nucléé près des bords sédimentent ensuite pour former un lit de cristaux en partie basse. L'ordre de grandeur de la vitesse de la phase liquide est en accord avec les

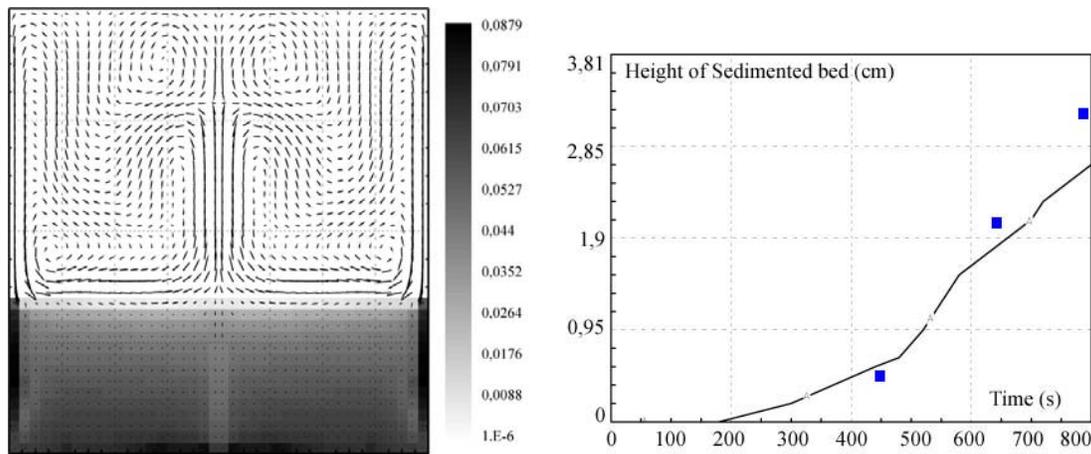


FIG. 3.5: *Gauche : Champ de fraction volumique de cristaux et champ de vitesse ($V_{\max} = 10^{-2}m.s^{-1}$) après 800s pour l'expérience de Wang [18]. Droite : Evolution temporelle de l'épaisseur du lit de cristaux sédimenté. La courbe est l'évolution calculée, les points sont les mesures réalisées expérimentalement sur les photographies*

calculs réalisés par Beckermann & Wang [18]. Par ailleurs l'ordre de grandeur de la fraction volumique solide dans le lit est aussi en accord avec les calculs de Beckermann & Wang [18]. Nous représentons sur la figure 3.5 l'évolution temporelle de l'épaisseur du lit en fonction du temps. L'épaisseur calculée est représentée sur la courbe noire et peut-être comparée aux mesures sur les photographies réalisées durant l'expérience. Ces mesures sont représentées par les points. Nous observons un bon accord avec les mesures expérimentales de la cinétique de déposition du lit de cristaux.

Nous représentons sur la figure (3.6) la densité de cristaux qui sont localisés au bas de la cavité. Nous observons que le maximum de densité volumique est observé au milieu du lit de cristaux sédimentés et non au contact des parois froides. Ceci s'explique car près de la paroi froide, les cristaux grossissent vite et forment rapidement un milieu consolidé qui ne peut accueillir de nouvelles particules. Il résulte une densité volumique relativement faible. Au contraire, plus on s'éloigne de la paroi froide et plus le refroidissement est lent (car les changements de phase ralentissent le refroidissement), ce qui implique que de nombreux cristaux ont le temps de s'accumuler. Nous observons aussi un appauvrissement au centre du lit de cristaux (formant un canal), à l'endroit où passe le liquide enrichi par la solidification.

Sur la figure 3.7, nous présentons le champ de concentration totale obtenu par le calcul. Ce champ présente un appauvrissement de la zone inférieure du domaine, où se sont accumulés des cristaux appauvris en soluté, et un enrichissement au sommet, en raison du rejet d'un liquide enrichi. A notre connaissance, aucune mesure expérimentale de la composition du mélange n'a été réalisée, mais nous pouvons comparer nos résultats à ceux du modèle de Wang & Beckermann [18]. Nous obtenons une répartition qualitative du soluté en accord avec les calculs de Wang, et les valeurs maximales et minimales de la concentration totale sont elles aussi en accord.

Concernant le champ de température, nous pouvons comparer le champ obtenu avec les mesures expérimentales des différents thermocouples. Sur la figure 3.8, nous présentons l'évolution temporelle de la température pour les différents endroits de mesures. Le phénomène de

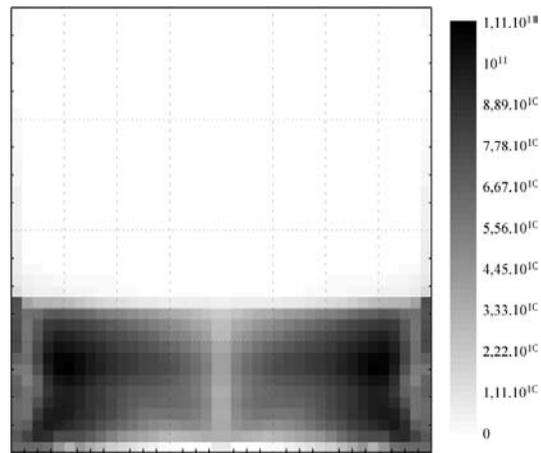


FIG. 3.6: Champ de densité de cristaux (m^{-3}) après 800s pour l'expérience de Wang.

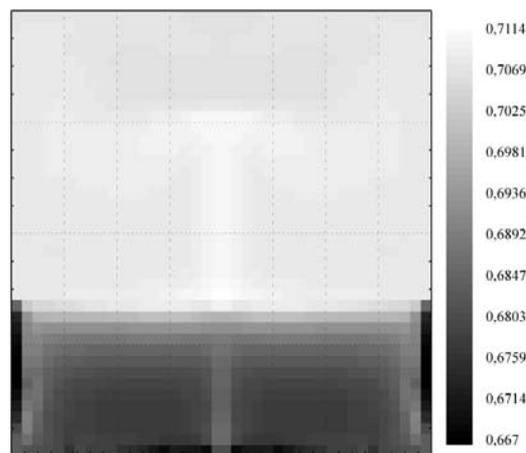


FIG. 3.7: Champ de concentration totale après 800s pour l'expérience de Wang.

recalescence, correspondant au brusque réchauffement du milieu, lorsque commence à apparaître les premiers cristaux, est visible sur certaines courbes. Le sous refroidissement nécessaire pour la nucléation des cristaux est alors très rapidement compensé. Ce phénomène est clairement apparent pour les thermocouples A (après 430s) et B (après 500s). Il n'est pas visible pour les thermocouples C et D. En effet ces thermocouples sont situés hauts dans le volume expérimental, et lorsque les cristaux nucléent, ils sédimentent instantanément, et ne modifient pas le sous-refroidissement. Ces observations sont en accord avec les observations expérimentales. A titre de comparaison entre nos calculs et les mesures expérimentales, nous représentons sur la figure de gauche, 3.8 les évolutions temporelles calculées et mesurées aux positions des thermocouples A et C.

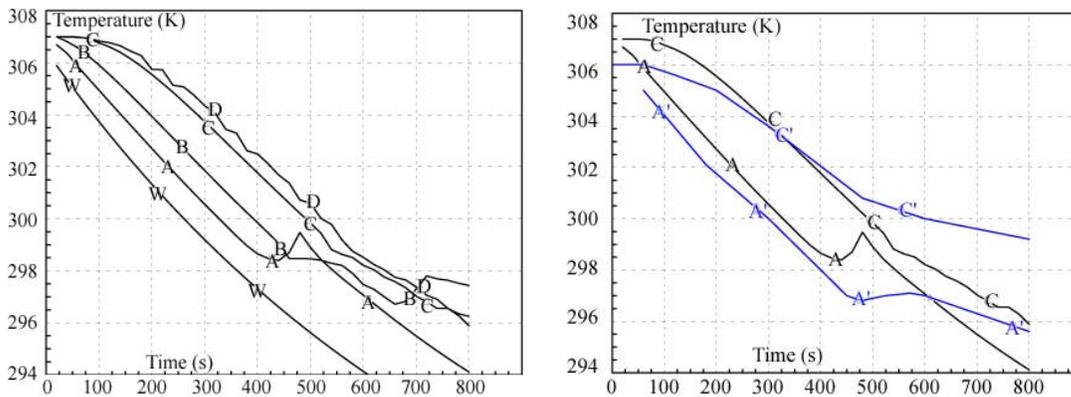


FIG. 3.8: Gauche : Evolution temporelle de la température à 5 endroits différents : courbe W : température du mur ; Thermocouple A ; Thermocouple B ; Thermocouple C ; Thermocouple D pour l'expérience de Wang. Droite : Evolution temporelle de la température aux thermocouples A et C ; Comparaison entre les mesures expérimentales (Courbes A' et C') et le présent modèle (A et C)

3.15.3 Expérience de Wang en $Al(4\%) - Cu$

Ce cas-test ne correspond pas à une expérience réelle. Il s'agit de calculs de solidification d'un alliage $Al(4\%) - Cu$ présenté dans un article de Wang & Beckermann [176] et réalisé avec leur modèle triphasique [175]. Ils ont réalisé des calculs avec le modèle complet de solidification équiaxe, et ils ont testé la dépendance des résultats à la loi de nucléation. Ils utilisent une loi instantannée et ils ont fait varier la densité de sites de nucléation ($10^9 m^{-3}$ puis $10^{11} m^{-3}$). Tous les sites de nucléation sont activés lorsque la température passe sous la valeur de la température de nucléation (Prise égale à la température de liquidus pour cet exemple). Nous avons déjà décrit ce cas-test dans la partie 2.3.2, lors de la validation du modèle colonnaire. Les propriétés physiques du mélange se trouvent dans le tableau 2.2.

3.15.4 Calcul de l'expérience en $Al(4\%) - Cu$

Nous présentons dans cette partie une comparaison des résultats obtenus entre notre modèle de solidification équiaxe et le modèle triphasique de Wang & Beckermann [176] lorsque le nombre

de site de nucléation est pris égal à $10^9 m^{-3}$.

Nous avons choisi une loi de nucléation continue (équation 3.182) similaire à celle utilisée dans la partie 3.15.2 (différentes approches pour la loi de nucléation sont proposées dans l'annexe G). Afin de coller au maximum au modèle de nucléation de Wang & Beckermann, nous rajoutons à notre modèle de nucléation, la contrainte $\dot{n}_c = 0$ si $n_c \geq 10^9 m^{-3}$. Par ailleurs, nous choisissons un seuil de nucléation nul, de façon à déclencher la germination rapidement ($\Delta T_0 = 0K$), comme Wang & Beckermann [176].

Concernant le coefficient d'échange de quantité de mouvement la relations 3.180 utilisée dans la partie 3.15.2 a été utilisée. Elle se distingue de celle utilisée par Wang & Beckermann qui ont utilisé la relation C.21 rappelée dans l'annexe C.

La corrélation (3.181) a été utilisée pour le coefficient de viscosité effective de la phase solide. Nous évaluons, au vu des résultats présentés par Wang & Beckermann [176], qu'en moyenne, dans ce cas test, la fraction solide interne (rapport entre le volume solide et le volume délimité par l'enveloppe des cristaux) est proche de 0,6. Etant donné que la fraction volumique limite de consolidation de particules sphériques est 0,64 (cela a été vu en annexe C et dans [176]), cela donne une limite d'agglomération de $\varepsilon_{cmax} \sim 0,4$, en terme de fraction solide. Nous utilisons cette dernière valeur dans l'expression de la viscosité solide.

Les figures 3.9, 3.10 et 3.11 présentent le champ de fraction volumique solide et le champ de vitesse liquide après respectivement 50, 150 et 350 s de solidification. Dans chaque cas, nous représentons les champs calculés avec notre modèle et les champs publiés par Wang & Beckermann [176]. Les cristaux qui ont nucléé près de la paroi gauche se relocalisent vers le bas. Au bout d'un certain temps, la limite d'agglomération est atteinte et le transport des cristaux est arrêté. Il se forme alors une zone figée, de moins en moins poreuse au pied du domaine. Cette zone est difficile à solidifier car le liquide, enrichi par la solidification, au contact de la paroi gauche, se retrouve dans la partie basse, dans un état sous-saturé.

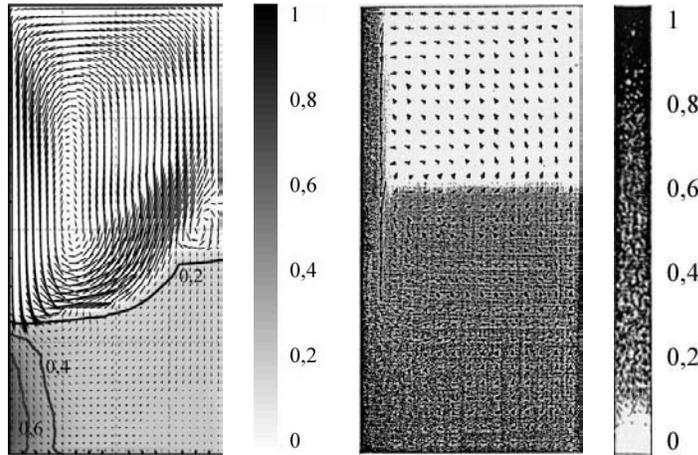


FIG. 3.9: Champ de fraction volumique solide et champ de vitesse liquide après 50 s. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle de solidification ($V_{max} = 2,6 \cdot 10^{-2} m \cdot s^{-1}$), la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann ($V_{max} = 3 \cdot 10^{-2} m \cdot s^{-1}$)

Les figures 3.12, 3.13 et 3.14 présentent des lignes d'isovaleurs de températures après 50, 150, et 350 s. Dans les premiers instants, les profils sont ceux d'un profil convectif. Ils deviennent

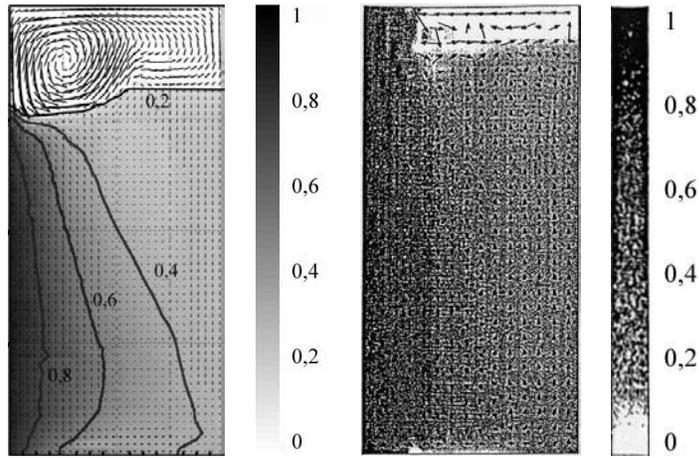


FIG. 3.10: Champ de fraction volumique solide et champ de vitesse liquide après 150 s. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle de solidification ($V_{max} = 3.10^{-3}m.s^{-1}$), la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann ($V_{max} = 5.10^{-3}m.s^{-1}$)

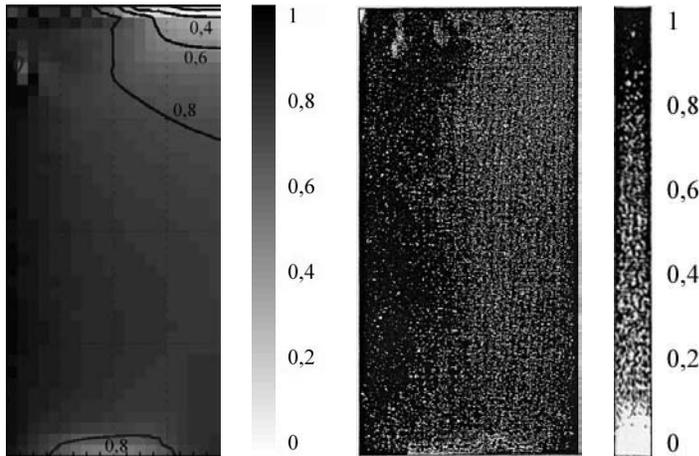


FIG. 3.11: Champ de fraction volumique solide et champ de vitesse liquide après 50 s. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle de solidification ($V_{max} = 2.10^{-4}m.s^{-1}$), la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann ($V_{max} = 5.10^{-4}m.s^{-1}$)

par la suite diffusifs, lorsque l'agglomération a eu lieu. Par rapport aux résultats de Wang & Beckermann, nous observons une ressemblance dans les formes de ces lignes d'isovaleurs et leur ordre de grandeur.

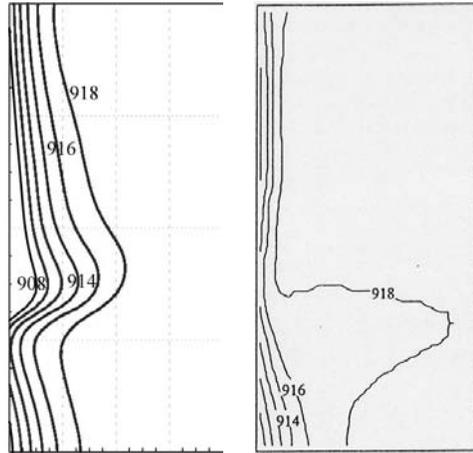


FIG. 3.12: Lignes d'isovaleurs de température après 50 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle, la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann

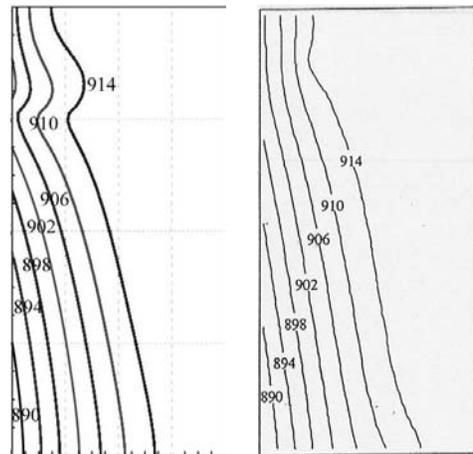


FIG. 3.13: Lignes d'isovaleurs de température après 150 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle, la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann.

Nous présentons dans les figures 3.15, 3.16 et 3.17 les champs de concentration. En début de solidification, le solide appauvri se relocalise dans la partie basse, alors qu'un liquide riche s'accumule en haut. Au contraire, en fin de solidification, nous observons un enrichissement dans la partie basse du domaine. En effet, après agglomération des cristaux, seul le mouvement du liquide est possible. Ce dernier descend à proximité de la paroi froide, et se relocalise dans les parties basses. Nous pouvons noter un bon accord entre la forme du champ de concentration pour les deux codes, ainsi qu'un bon accord sur l'ordre de grandeur des concentrations maximales et minimales.

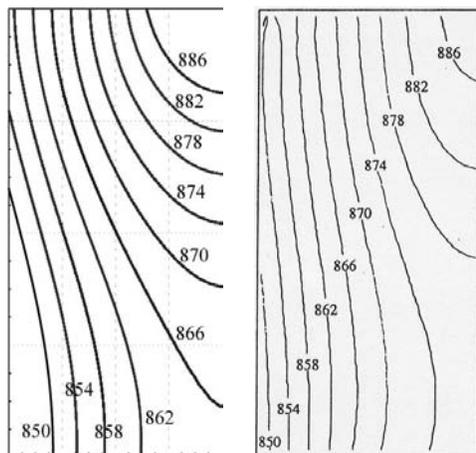


FIG. 3.14: Lignes d'isovaleurs de température après 350 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle. La figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann.

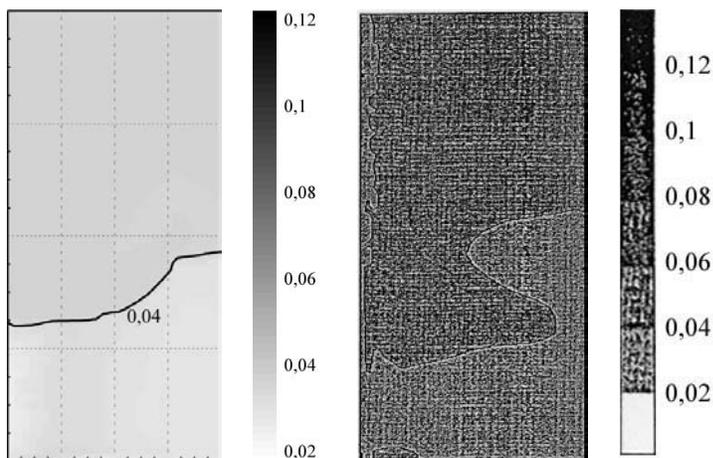


FIG. 3.15: Champ de concentration obtenu après 50 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle, la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann.

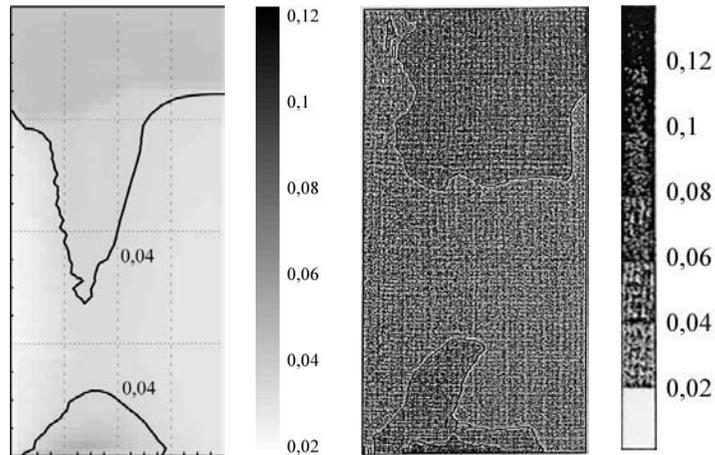


FIG. 3.16: Champ de concentration obtenu après 150 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle, la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann.

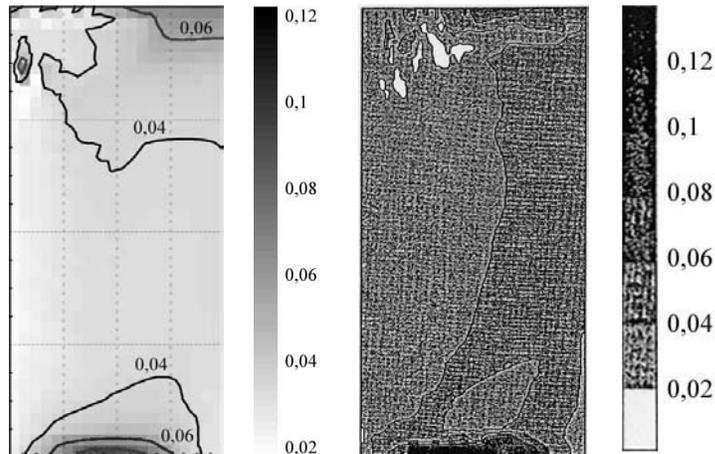


FIG. 3.17: Champ de concentration obtenu après 350 s de solidification. La figure de gauche est obtenue avec notre modèle, la figure de droite avec le modèle de Wang & Beckermann.

Chapitre 4

Transition colonnaire-équiaxe

Nous avons montré dans l'introduction que de nombreux modèles ont été proposés pour traiter un unique régime de solidification. Dans le chapitre 2, nous avons étudié la croissance colonnaire et au chapitre 3, nous avons développé un modèle macroscopique de croissance équiaxe.

Peu de travaux permettent de coupler dans un unique modèle les deux processus de croissance [49, 174, 110, 103], pour prévoir la transition de l'un vers l'autre. La principale difficulté réside dans le calcul de la surfusion dans le liquide en aval de la zone colonnaire, qui est à l'origine de la nucléation des cristaux équiaxes. Nous avons noté (dans la partie 2.4) que notre modèle de croissance colonnaire ne permettait pas de modéliser ce sous-refroidissement, car le taux de changement de phase est proportionnel à ce dernier, ce qui revient à propager les dendrites dans toutes les zones sous-refroidies. Nous allons proposer, dans ce chapitre, une modification, pour intégrer la cinétique des phénomènes. Il sera alors possible de coupler dans un même modèle les deux régimes. Nous réaliserons ensuite des calculs qui permettront de montrer qualitativement les possibilités de notre approche.

4.1 Modéliser la surfusion avec le modèle colonnaire

4.1.1 Le problème posé par le modèle colonnaire initial

Nous avons choisi une approche avec une hypothèse de non-équilibre chimique [24, 61]. Cette hypothèse considère que la concentration intrinsèque moyenne dans une phase est différente de la concentration d'équilibre. Dans le chapitre 2 portant sur le rappel du modèle macroscopique colonnaire, l'équation sur le taux de changement de phase (2.18) a été développée. Nous rappelons ici cette équation, en négligeant les termes en gradients de porosité :

$$\frac{\partial \varepsilon_s \rho_s}{\partial t} = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\rho_s h_{m_s} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \rho_\ell h_{m_\ell} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] \quad (4.1)$$

Le taux de solidification dépend des flux d'espèces à l'interface entre les deux phases. Ces flux interviennent du côté solide, $h_{m_s}(C_s^* - \langle C_s \rangle^s)$, et du côté liquide, $h_{m_\ell}(C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell)$, et font intervenir les coefficients macroscopiques d'échange h_{m_ℓ} et h_{m_s} [107, 17]. Pour ces coefficients d'échange d'espèces, pour les calculs réalisés dans la partie 2.3, nous avons utilisé la relation

(2.21) qui les fait dépendre proportionnellement à la diffusion d'espèce D_k , à la densité d'aire interfaciale A_k et à l'inverse d'une longueur caractéristique de diffusion d'espèces l_k [129, 17]. Nous avons pris la longueur de diffusion l_k égale à l'espacement interdendritique secondaire λ_2 [24, 61], et l'aire interfaciale était évaluée selon la relation (2.22) [149, 67]. Les corrélations suivantes ont donc été utilisées :

$$h_{m_{\ell s}} = 12 \frac{D_{\ell}}{\lambda_2^2 \varepsilon_s} \text{ et } h_{m_s} = 12 \frac{D_s}{\lambda_2^2 \varepsilon_s} \quad (4.2)$$

Nous remarquons que les corrélations (4.2), dépendent uniquement des fractions volumiques locales des phases sans tenir compte aux aspects liés à la cinétique d'avancée du front. Ainsi, la solidification est provoquée dès qu'un déséquilibre chimique apparaît, sans possibilité de modéliser la surfusion.

4.1.2 Proposition pour intégrer la cinétique de solidification

Les relations (4.2) découlent des équations (2.21) et (2.22). Cette dernière exprime la densité d'aire interfaciale A_k en fonction de la fraction volumique de phase. Il semble pertinent de dissocier la dépendance des coefficients d'échange à la fraction volumique solide. Nous proposons donc de considérer A_k comme un champ physique du modèle, dont dépendent directement les coefficients d'échange. Lorsque le front colonnaire n'aura pas atteint une maille donnée, la densité d'aire interfaciale étant nulle, de même seront les coefficients d'échange et le taux de solidification. Cette approche va donc nécessiter le développement d'une équation différentielle régissant l'évolution de ce nouveau champ physique.

De telles approches qui introduisent une densité d'aire interfaciales n'ont jamais été proposées, à notre connaissance, dans le contexte de la solidification. Dans d'autres contextes, présentant des écoulements diphasiques macroscopiques de deux fluides, tels que les écoulements de bulles [105, 92] ou des modèles de combustion [101, 29, 48] (entre gouttes de combustible et comburant gazeux), des approches semblables ont été proposées.

Remarquons pour notre application que certains auteurs ont mentionné qu'il n'est parfois pas judicieux d'utiliser la densité d'aire interfaciale dans l'expression des coefficients d'échange, lorsque la forme des cristaux est très dendritique [140, 174, 18, 175, 176]. Ces différents auteurs ont indiqué que la densité d'aire de l'enveloppe des cristaux était un meilleur indicateur. En effet, le liquide interdendritique est en général très homogène, et les flux d'espèces interviennent à l'extérieur de l'enveloppe des cristaux. Ceci est illustré à la figure 4.1, où l'interface solide-liquide et l'enveloppe des cristaux sont représentées sur une image du champ de concentration. Nous allons donc considérer A_k comme la densité d'aire de l'enveloppe des cristaux.

4.1.3 Modéliser l'évolution de la densité d'aire interfaciale

Equation d'évolution

Dans l'équation (4.2), si nous faisons apparaître la densité d'aire interfaciale dans les coefficients d'échange, nous pouvons interpréter le taux de changement de phase comme le produit de la densité d'aire par une vitesse de déplacement de l'enveloppe des cristaux :

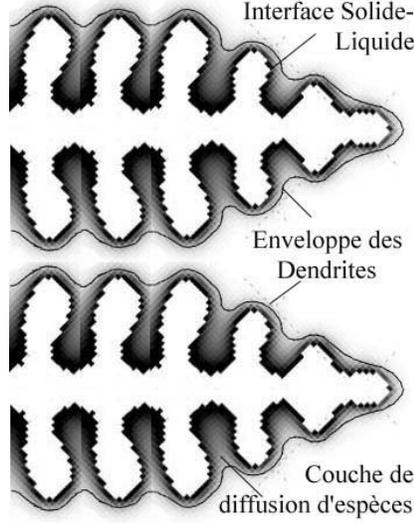


FIG. 4.1: Champ de concentration pour des dendrites colonnaires : Interface solide-liquide et enveloppe des cristaux.

$$\tau = A_k \vec{V}_i \cdot \vec{n} \quad (4.3)$$

La vitesse de l'interface, en fait assimilable à la vitesse des pointes de dendrites, est donnée par :

$$\vec{V}_i \cdot \vec{n} = \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\frac{\rho_s D_s}{\lambda_2} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \frac{\rho_\ell D_\ell}{\lambda_2} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] \quad (4.4)$$

Nous allons utiliser l'expression (4.4) pour modéliser l'évolution de la densité d'aire interfaciale.

En observant des images de dendrites [154, 71, 75], nous pouvons remarquer que leur enveloppe, a souvent une forme de parabololoïde de révolution, telle que celle représentée sur la figure 4.2.

Pour simplifier, nous allons supposer que, localement (sur une maille), et dans le coeur de la zone interdendritique, cette enveloppe est cylindrique. Ainsi l'enveloppe des dendrites dans la zone interdendritique peut être représentée par un assemblage de cylindres dont la distance interaxe est l'espacement primaire interdendritique. Cette représentation est schématisée dans la figure 4.3.

Si R est le rayon local du cylindre, alors la densité volumique de surface est donnée par :

$$A_k = \frac{2\pi R}{\lambda_1^2} \quad (4.5)$$

Connaissant la vitesse de déplacement de l'enveloppe, égale à la vitesse de pointe des dendrites, donnée par l'équation (4.4), nous écrivons l'équation d'évolution de la densité d'aire interfaciale suivante :

$$\frac{\partial A_k}{\partial t} = \frac{2\pi}{\lambda_1^2} \frac{\partial R}{\partial t} = \frac{2\pi}{\lambda_1^2} \vec{V}_i \cdot \vec{n} \quad (4.6)$$

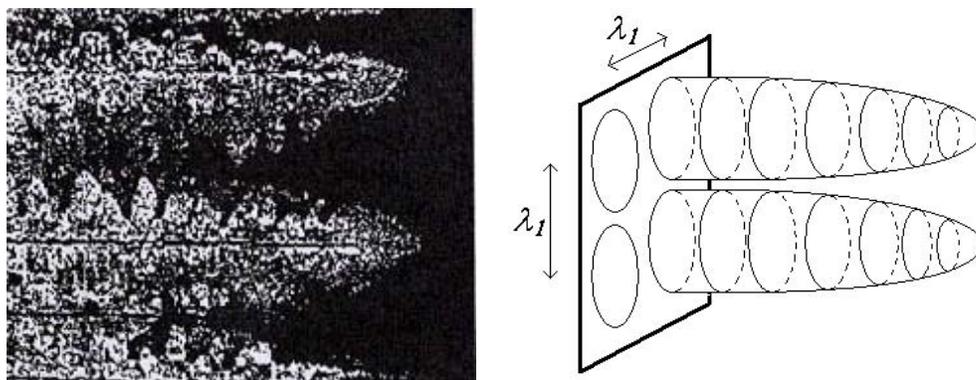


FIG. 4.2: Représentation de l'enveloppe des dendrites colonnaires; Gauche : Photos de dendrites dans un mélange $\text{NH}_4\text{Cl}(26\%) - \text{H}_2\text{O}$ issue de Huppert [75]; Droite : Schémas de l'enveloppe des cristaux.

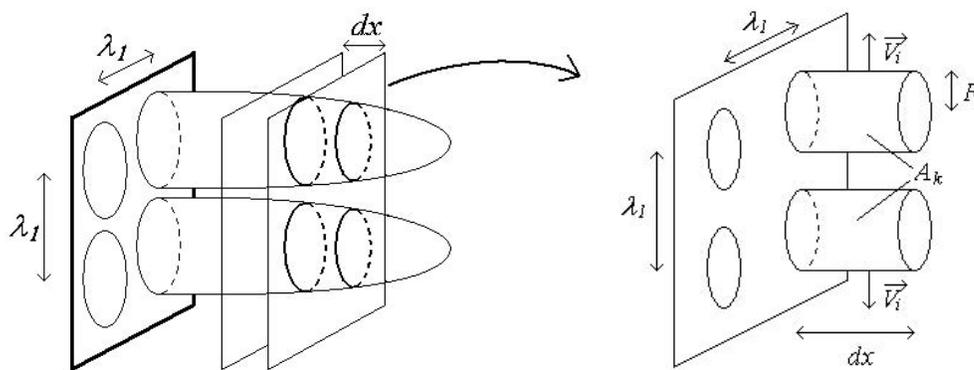


FIG. 4.3: Représentation de l'enveloppe des dendrites colonnaires; Gauche : L'enveloppe complète des dendrites; Droite : Représentation locale par des cylindres.

Nous remplaçons dans l'équation (4.6) l'expression de la vitesse de l'interface donnée par l'équation (4.4), ce qui nous donne l'équation suivante :

$$\frac{\partial A_k}{\partial t} = \frac{2\pi}{\lambda_1^2} \frac{1}{C_\ell^* - C_s^*} \left[\frac{\rho_s D_s}{\lambda_2} (C_s^* - \langle C_s \rangle^s) + \frac{\rho_s D_s}{\lambda_2} (C_\ell^* - \langle C_\ell \rangle^\ell) \right] \quad (4.7)$$

Notons que la densité de surface ne peut croître indéfiniment puisque lorsque les cylindres enveloppes deviennent tangents, leur surface ne peut plus se développer. Dans notre modèle, cette densité d'aire interfaciale maximale A_{k0} , atteinte lorsque $R = \frac{\lambda_1}{2}$, est :

$$A_{k0} = \frac{\pi}{\lambda_1} \quad (4.8)$$

A ce stade, nous proposons de distinguer deux parties dans la zone interdendritique : La “**pointe de zone interdendritique**”, où la densité d'aire interfaciale croît vers A_{k0} , et où les changements de phase sont importants et que le liquide est dans un état de déséquilibre. Le “**coeur de la zone interdendritique**” qui correspond à une zone pour laquelle la densité d'aire interfaciale a déjà atteint la valeur A_{k0} . Cela implique que les enveloppes de dendrite sont tangentes. Dans cette zone, les changements de phase sont de plus en plus lents, car un liquide enrichi, très proche de l'équilibre et difficile à solidifier est piégé. Une représentation de ces deux zones est représentée à la figure 4.4.

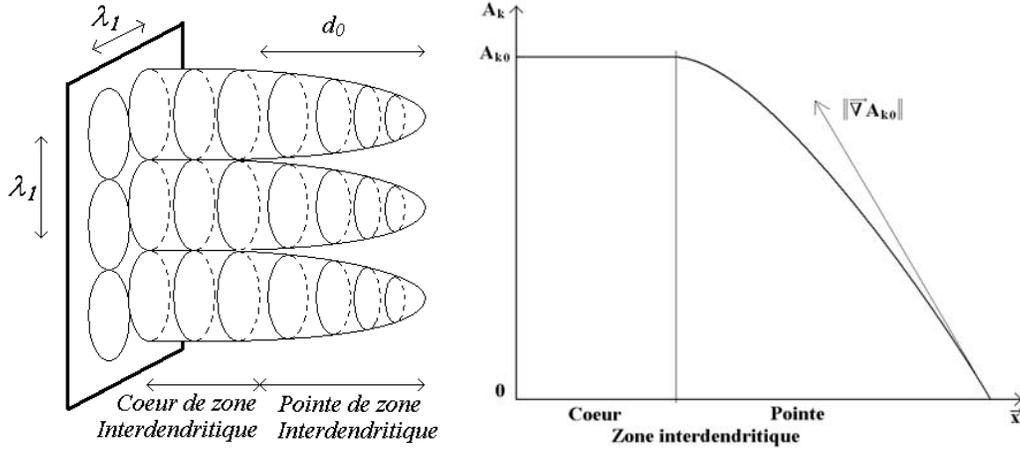


FIG. 4.4: Schémas de l'enveloppe de dendrites colonnaires. Gauche : Le coeur et la pointe de la zone interdendritique ; Droite : Profil de la densité d'aire interfaciale dans l'axe des dendrites.

Les conséquences de l'introduction d'une équation d'évolution de la densité d'aire interfaciale

En introduisant l'équation (4.7) dans le modèle, les changements de phase ne sont plus directement contrôlés par l'équation (4.2). Lorsqu'une surfusion intervient, une condition nécessaire pour que la solidification ait lieu, est que la densité d'aire interfaciale soit non nulle.

L'évolution de ce champ dépend aussi de la surfusion locale. Nous avons représenté dans la figure (4.5) les dépendances entre les principaux champs qui contrôlent les changements de phases.

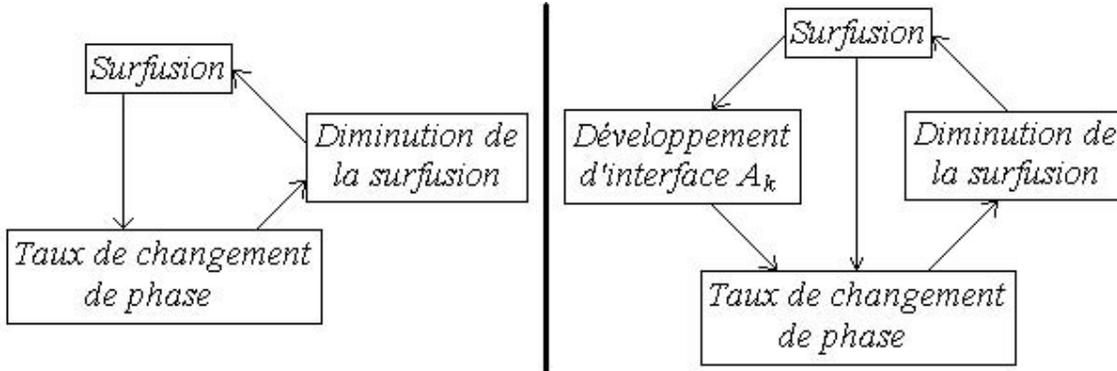


FIG. 4.5: Tableau symbolisant les effets des différents champs ; Tableau de gauche : Ancienne modélisation ; Tableau de droite : Nouvelle modélisation.

4.1.4 Intégrer l'aspect cinétique

La principale originalité de notre approche, par rapport aux travaux précédents [49, 174, 110, 103], réside dans l'introduction d'un champ de densité d'aire interfaciale et d'une équation d'évolution de celui-ci. Cependant, rajouter l'équation (4.7), dans le modèle de solidification colonnaire n'est pas suffisant pour éviter de provoquer instantanément la création d'interface et la solidification dans le liquide sursaturé. Nous devons prendre un critère qui conditionne la résolution de l'équation (4.7) et qui tient compte de la cinétique de la progression du front dendritique. Le choix du critère est important, puisqu'il va influencer la cinétique de progression du front colonnaire, et la transition colonnaire-équiaxe. Les méthodes de suivi de la pointe de dendrites telle que [49, 174, 103] sont possibles, mais difficiles à mettre en oeuvre.

Nous avons choisi un critère plus simple, basé sur le gradient minimum de densité d'aire interfaciale en pointe de zone dendritique. Celui-ci devra être supérieur à une valeur limite $\|\nabla A_{k0}\|$ (représentée sur la figure 4.4). Dans la partie 4.1.3 et dans la figure 4.4 nous avons montré que la zone de pointe de dendrites voyait sa densité d'aire interfaciale passer de A_{k0} à 0 sur une épaisseur d_0 . Il est donc pertinent d'exprimer ce gradient limite de la façon suivante :

$$\|\nabla A_{k0}\| = \frac{A_{k0}}{d_0} \quad (4.9)$$

Le paramètre d_0 qui est relatif à la morphologie de la zone dendritique, devient un paramètre du modèle. Pour les calculs que nous avons réalisés, nous avons pris une valeur constante tout au long du calcul. En pratique, la morphologie de la pointe de dendrites dépend des conditions de refroidissement : vitesse de l'interface, gradient de température, température de pointe de dendrite. Des auteurs ont proposé des corrélations permettant de relier certaines longueurs caractéristiques (comme le rayon de courbure de l'extrémité de la dendrite ou les espacements interdendritiques) à ces conditions [86].

Dans l'avenir, nous envisageons d'exprimer d_0 par ce genre de relation, qui nous permettra donc d'estimer en temps réel son évolution.

4.1.5 Implémentation numérique

Pour introduire la résolution du paramètre A_k dans la méthode numérique décrite dans la partie 3.14, nous résolvons la nouvelle équation, après la résolution des équations de Navier-Stokes (Etape 1) et de l'équation de conservation de l'énergie (Etape 2), et avant la résolution des équations de conservation de la densité de cristaux (Etape 3), des espèces et de la fraction volumique solide (Etape 4). Ainsi, ces dernières sont résolues avec la nouvelle valeur de la densité d'aire interfaciale. La vitesse de déplacement du front est exprimée explicitement, en fonction des valeurs des champs de concentration et du champ de température. De la même façon que pour le modèle colonnaire, la résolution du système complet est résolue de manière itérative jusqu'à ce que la convergence de tous les champs soit vérifiée (méthode de point fixe [145]).

4.2 Calculs réalisés

Nous avons repris le cas test du laboratoire EPM (Expérience C, décrite au chapitre 2 et réalisée par Quillet [127]) pour tester le nouveau modèle. Nous rappelons que les propriétés physiques du mélange et les conditions expérimentales sont listées dans le tableau 2.2.

4.2.1 Premiers calculs pour les régimes couplés

Pour les propriétés macroscopiques de transport telles que la perméabilité de la zone dendritique colonnaire, les tenseurs de diffusivité thermique et de diffusion massique, nous avons repris les mêmes corrélations que celles utilisées dans la partie 2.3 pour la validation du modèle colonnaire. Concernant l'épaisseur de la pointe de dendrites, ne disposant pas d'information précise sur la morphologie des dendrites, nous avons pris $d_0 = 5.10^{-3}m$ pour ces premiers calculs. La valeur de la densité d'aire interfaciale maximale est déduite de la relation (4.8), et étant donnée que $\lambda_1 = 3.10^{-4}m$ (cela a été vu au tableau 2.2), nous obtenons $A_{k0} = 10466m^{-1}$.

Pour la loi de nucléation de cristaux équiaxes, nous avons fait un choix semblable à celui de la partie 3.15 de prendre la loi de nucléation continue suivante, dépendant de la surfusion ΔT :

$$\dot{n}_c = 10^{10}(\Delta T - 3)^2 \text{ si } \Delta T \geq 3, 0 \text{ sinon} \quad (4.10)$$

Nous avons pris la valeur $3K$ pour la surfusion minimale avant que les premiers cristaux ne nucléent. Pour les transferts de quantité de mouvement avec les cristaux dispersés, nous avons pris les mêmes corrélations que celles utilisées à la partie 3.8. Pour les coefficients de traînée, nous avons utilisé :

$$\varphi_{lc} = \frac{\mu_\ell S_{fc}}{l_V} = \mu_\ell \left(48\pi^2 \varepsilon_c n_s^2\right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.11)$$

Pour la viscosité solide, nous avons pris :

$$\mu_c^* = \mu_\ell \left(2.5 + 10^{10} \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}} \right)^{10} \right) \text{ pour } \varepsilon_c \leq \varepsilon_{cmax} \text{ et } \mu_c^* = \infty \text{ sinon} \quad (4.12)$$

Nous avons pris $\varepsilon_{cmax} = 0,52$ qui est une valeur différente de celle que nous avons prise dans la partie 3.15 ($\varepsilon_{cmax} = 0,1$). En effet, ne disposant pas d'information sur la morphologie des cristaux équiaxes qui apparaissent, nous ne connaissons pas la fraction volumique maximale avant agglomération. La valeur que nous avons choisie est proche de celle correspondant à des cristaux globulaires (voir annexe G).

Les premiers calculs ont été réalisés en une dimension et les résultats sont présentés sur les figures 4.6 à 4.9. Afin de montrer la capacité du code à simuler les différentes étapes, nous présentons des courbes à différents instants : $t = 660s, 720s, 780s$ sur les figures 4.6 et 4.7, où seule la solidification colonnaire intervient, puis $t = 840s, 960s, 1080s$, sur les figures 4.8 et 4.9, où la solidification équiaxe a commencé. L'évolution du profil de fraction volumique de solide colonnaire est présentée sur la figure 4.6. Nous constatons que le profil possède une forme plus cohérente pour des structures de zones colonnaires que celles obtenues au chapitre 2.3 (par exemple sur la figure 2.20) : Cette dernière a une extension limitée, et la décroissance de la fraction solide s'accélère lorsque celle-ci tend vers 0.

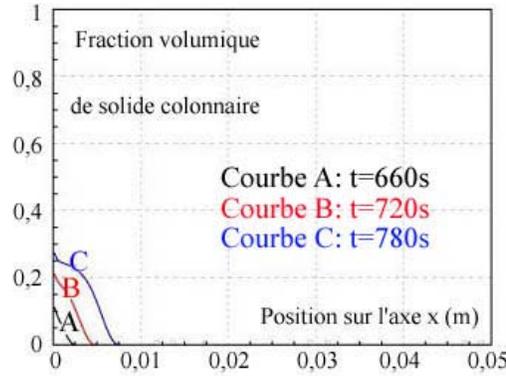


FIG. 4.6: Calcul 1D de solidification colonnaire/équiaxe ; Champ de fraction volumique de solide colonnaire

Sur la figure 4.7, nous avons représenté les profils de surfusion et de densité d'aire interfaciale en début de solidification. Concernant la première grandeur, nous constatons qu'elle est positive mais qu'à aucun moment et à aucun endroit, la surfusion ne dépasse la valeur $3K$. Cela justifie le fait que la solidification équiaxe n'ait pas commencé, puisque nous avons choisi la germination des premiers cristaux à partir de $3K$ (cf relation (4.10)). Concernant la seconde grandeur, nous remarquons qu'elle prend des valeurs non nulles aux endroits où la fraction solide est elle aussi non nulle. Cette grandeur est croissante avec le temps, ce qui traduit l'augmentation de la densité d'aire interfaciale, provoquée par la surfusion.

La seconde étape du processus de solidification concerne la nucléation et la croissance de cristaux équiaxes. Sur la figure 4.8, les profils de fraction volumique de solide colonnaire et fraction volumique de solide équiaxe sont présentés après une longue période de solidification. Nous pouvons observer le début de la solidification équiaxe, à environ $8mm$ de la paroi froide.

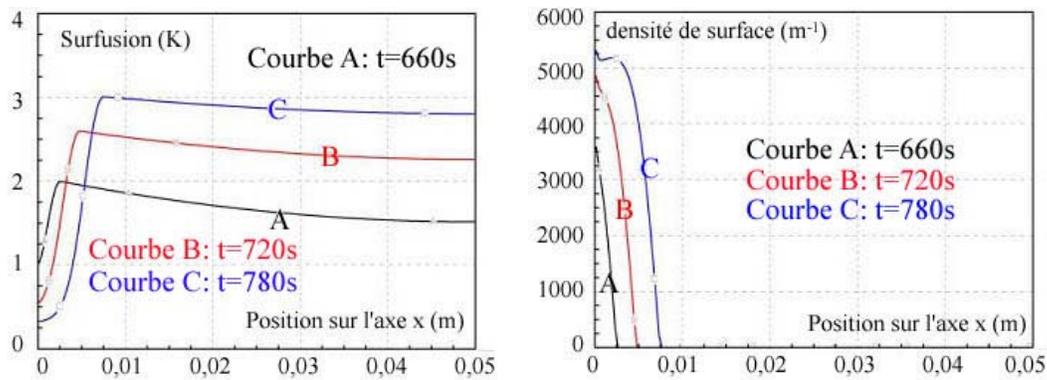


FIG. 4.7: Calcul 1D de solidification colonnaire/équiaxe; Gauche : Champ de sous-refroidissement (K); Droite : Champ de densité de surface

La fraction volumique des cristaux équiaxe augmente progressivement, et ceux-ci occupent rapidement une grande partie du volume. Dans le même temps, les dendrites colonnaires continuent de progresser, mais leur progression est influencée par la présence des cristaux qui consomment une partie de la surfusion du liquide.

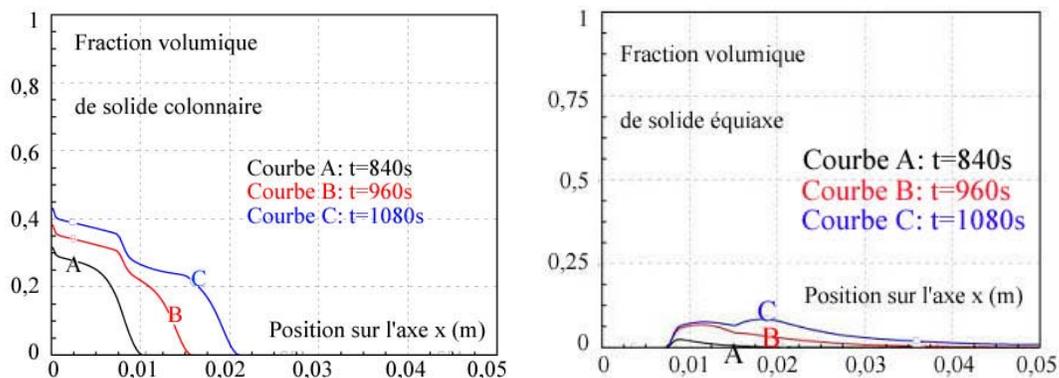


FIG. 4.8: Calcul 1D de solidification colonnaire/équiaxe; Gauche : Champ de fraction volumique de solide colonnaire; Droite : Champ de fraction volumique de solide équiaxe

Nous présentons à la figure 4.9 l'évolution de la surfusion et de la densité volumique d'aire interfaciale pendant la phase de solidification équiaxe. Nous remarquons que les profils de surfusion culminent à $3K$, valeur qui coïncide avec la nucléation des cristaux. Cette valeur n'est jamais dépassée, car les cristaux apparaissant, maintiennent le sous-refroidissement à une valeur légèrement inférieure. Le profil de densité d'aire interfaciale représenté sur la figure 4.9 est perturbé par l'apparition des cristaux.

Sur cet exemple simple de solidification, nous avons montré la capacité de cette modélisation simple à simuler la surfusion et à coupler les deux régimes de solidification. Nous allons maintenant présenter des calculs similaires en deux dimensions, afin de tester le couplage du modèle de solidification avec le modèle d'écoulement diphasique.

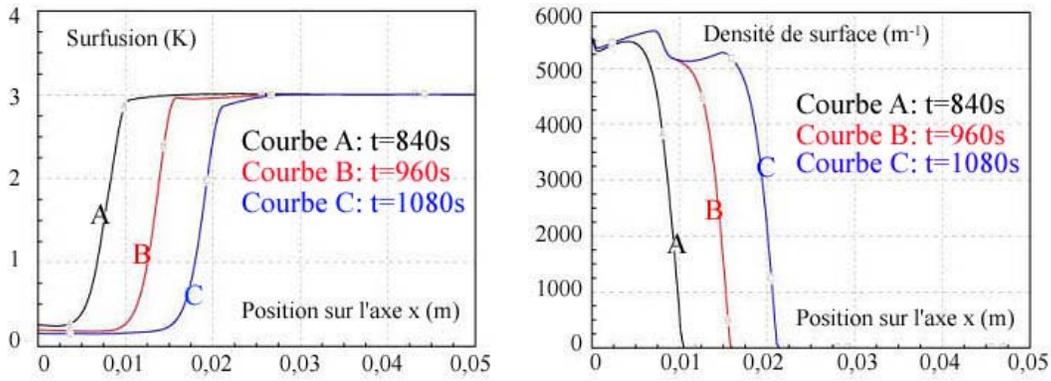


FIG. 4.9: Calcul 1D de solidification colonnaire/équiaxe ; Gauche : Champ de surfusion (K) ; Droite : Champ de densité volumique de surface

4.2.2 Calculs en deux dimensions

Nous reprenons à nouveau le cas-test de l'expérience de Quillet [127]. Dans le terme de gravité de l'équation de quantité de mouvement de la phase solide, la masse volumique solide est fixée à : $\rho_c = \rho_l + 10kg.m^{-3}$. La valeur de la densité solide est supérieure à la valeur de ρ_l , ce qui aura tendance à faire sédimenter les cristaux. Pour l'implémentation numérique, nous prenons une hypothèse identique à celle de Boussinesq : La valeur de ρ_c est uniquement utilisée dans le terme de gravité. Dans les autres termes des équations de conservation macroscopiques, où ρ_c intervient, nous utilisons $\rho_c = \rho_0$, la masse volumique de référence. Afin de montrer le déroulement du processus de solidification, nous présentons certaines variables à différents moments clés du processus. Sur la figure 4.10, nous présentons les champs de fraction volumique de solide colonnaire et de sous refroidissement en début de solidification, alors que seule la solidification colonnaire a commencé. La zone dendritique est moins étendue qu'avec la version initiale du modèle (voir figure 2.20). La surfusion atteint un maximum de $2,55K$, qui est inférieur à la valeur limite de $3K$ pour laquelle les premiers cristaux nucléent.

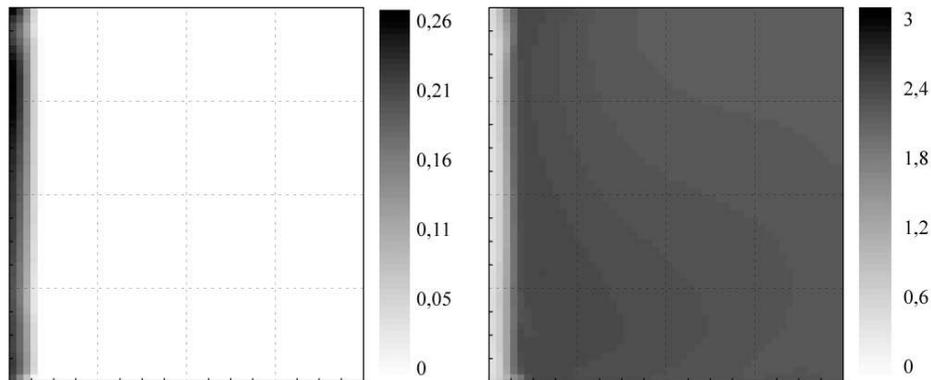


FIG. 4.10: Calcul 2D de solidification colonnaire/équiaxe après 720s de solidification ; Gauche : Champ de fraction volumique de solide colonnaire ; Droite : Champ de sous-refroidissement (K) (la valeur maximale est de $2,55K$)

Lorsque la surfusion dépasse la valeur limite de $3K$, le régime de croissance équiaxe est amorcé. Sur la figure 4.11, les champs de fraction volumique de solide colonnaire et de solide équiaxe sont représentés après la nucléation des premiers cristaux. La zone interdendritique continue à progresser, mais sa progression est ralentie par les premiers cristaux qui germent. Les cristaux nucléent à l'endroit où la surfusion est maximale, c'est à dire dans le coeur de la phase liquide et au voisinage de la zone interdendritique. Ils sont ensuite entraînés par l'écoulement, n'ayant pas assez d'inertie pour flotter à cause de leur petite taille initiale. Lorsqu'ils deviennent gros, ils sédimentent et s'accumulent au fond du volume.

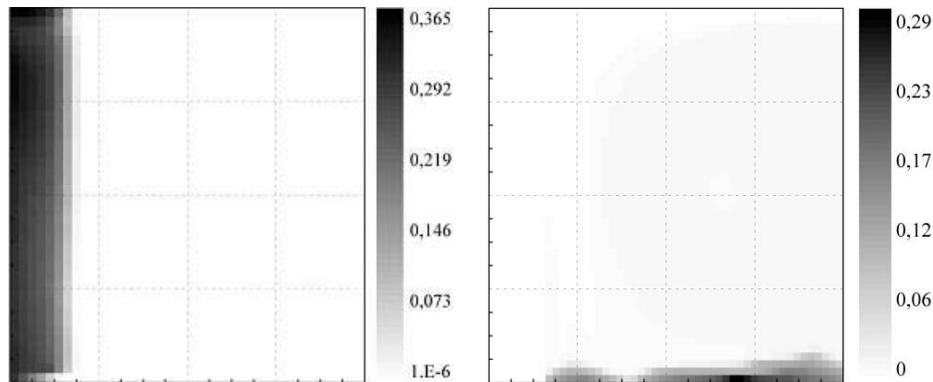


FIG. 4.11: Calcul 2D de solidification colonnaire/équiaxe après 900s de solidification ;
Gauche : Champ de fraction volumique de solide colonnaire ; Droite : Champ de fraction
volumique de solide équiaxe

Nous représentons sur la figure 4.12 les champs de surfusion et de densité de cristaux. La surfusion maximale vaut $3K$, ce qui correspond au critère de nucléation choisi. L'apparition des cristaux entraîne une diminution du déséquilibre local qui passe en dessous de $3K$. La densité de cristaux maximale est de l'ordre de $10^9 m^{-3}$, et les plus fortes densités sont dans un premier temps rencontrées aux endroits où les cristaux nucléent, dans un deuxième temps aux endroits où ils se relocalisent (en bas du domaine).

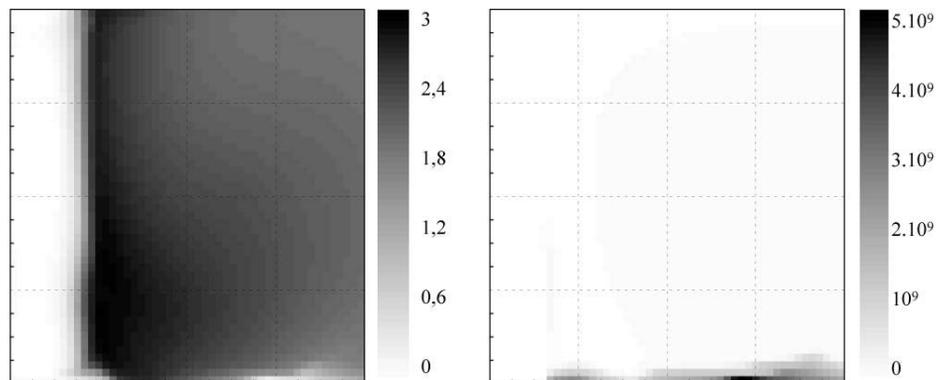


FIG. 4.12: Calcul 2D de solidification colonnaire/équiaxe après 900s de solidification ;
Gauche : Champ de surfusion ; Droite : Champ de densité volumique de cristaux

Lorsque la solidification est plus avancée, la fraction volumique des cristaux devient proche de la valeur limite de consolidation. Nous représentons sur la figure 4.13 les champs de fraction volumique de solide colonnaire et équiaxe. On peut constater que la zone dendritique colonnaire a progressé malgré la nucléation des cristaux. Les cristaux accumulés en bas du domaine occupent une zone assez étendue. Leur fraction volumique maximale est de 0,43, ce qui implique, au vue de la loi de viscosité équivalente donnée à l'équation (4.12) et de la valeur $\varepsilon_{cmax} = 0,52$ que le lit de cristaux est sur le point d'être consolidé.

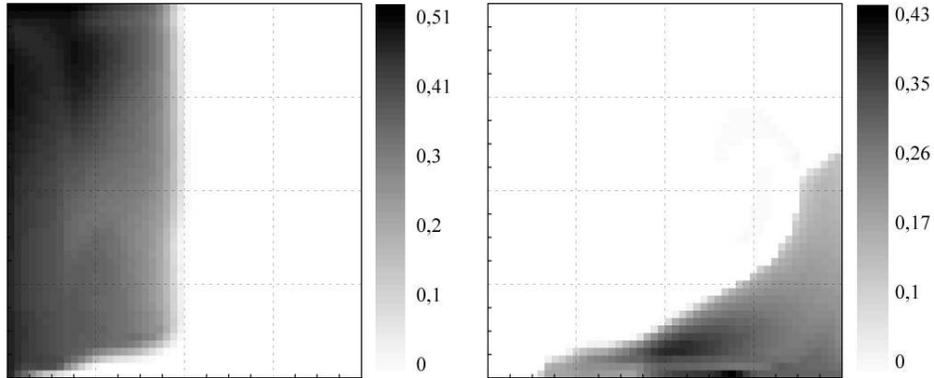


FIG. 4.13: Calcul 2D de solidification colonnaire/équiaxe après 1200s de solidification; Gauche : Champ de fraction volumique de solide colonnaire; Droite : Champ de fraction volumique de solide équiaxe

Les champs de surfusion et de densité de cristaux sont présentés sur la figure 4.14. La surfusion maximale est encore de 3K, ce qui implique que la nucléation se poursuit. Dans la zone dendritique et dans le lit de cristaux, la surfusion est très faible, ce qui signifie que ces zones sont proches de l'équilibre. La densité de cristaux maximale se maintient autour d'une valeur maximale correspondant à la limite d'agglomération.

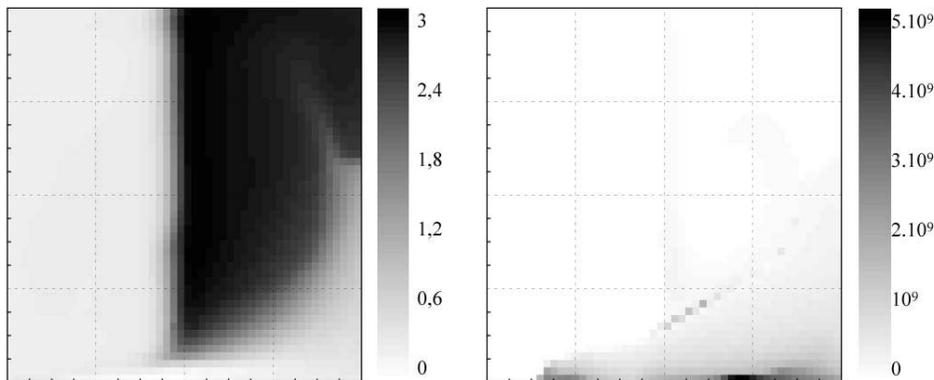


FIG. 4.14: Calcul 2D de solidification colonnaire/équiaxe après 1200s de solidification; Gauche : Champ de surfusion; Droite : Champ de densité volumique de cristaux

Sur le cas-test de solidification étudié à l'EPM, nous avons montré un calcul en deux dimensions de solidification couplée colonnaire-équiaxe. Les résultats paraissent physiquement

cohérents et le modèle semble capable de traiter la transition d'un régime vers l'autre. Une validation plus précise est nécessaire. Il faudrait alors disposer d'une expérience où les deux processus ont été observés, et connaître précisément les lois de comportement des matériaux telles que les lois de nucléation et la morphologie des dendrites et cristaux formés.

4.2.3 Test de convergence au maillage

Afin de poursuivre l'étude du code, nous avons réalisé une étude de sensibilité au maillage. Cette étude permet de vérifier que la modification de la cinétique de croissance de la zone dendritique n'introduit pas de dépendance au maillage. De plus, il est important de vérifier que les principales caractéristiques de la transition entre les deux régimes ne sont pas non plus dépendantes du maillage. L'étude a été réalisée en 1D, ce qui permet en particulier de tester des maillages très fins. Cependant en 1D, la convection n'intervient pas, ce qui peut restreindre la portée de cette étude de sensibilité. Nous avons repris le cas-test utilisé dans les parties précédentes, et avons réalisé une série de calculs pour 3 maillages différents : 40, 80 et 160 mailles. Les résultats de l'étude sont reportés sur la figure 4.15 qui montre les champs de fraction volumique solide. Les calculs sont présentés pour l'instant $t = 1200s$, alors que la solidification est bien avancée et que les deux processus de solidification sont intervenus. Nous remarquons qu'avec 40 mailles, un écart dans les résultats s'observe par rapport aux autres calculs. Au contraire, les calculs à 80 et 160 mailles sont très proches. La cinétique d'avancée du front ainsi que la transition d'un processus vers l'autre ne dépendent pas du maillage, à partir de 80 mailles dans ce cas précis.

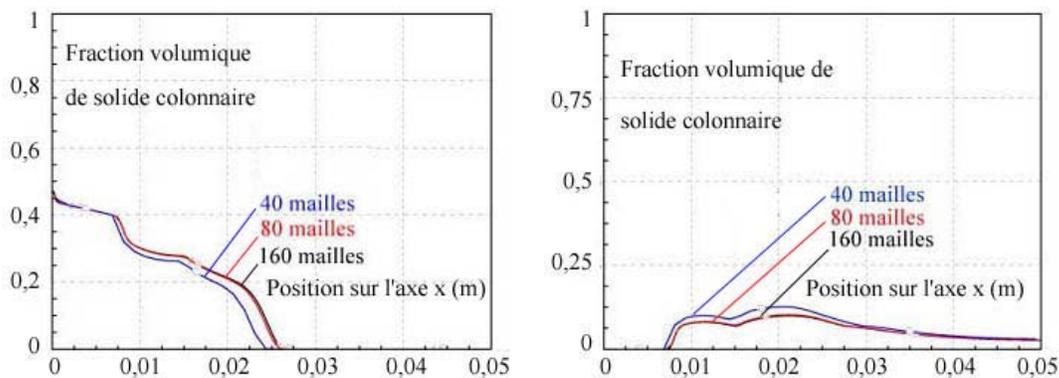


FIG. 4.15: Calculs 1D, convergence au maillage, après 1200s ; Gauche : Champ de fraction volumique de solide colonnaire ; Droite : Champ de fraction volumique de solide équiaxe

Les résultats de l'étude de convergence sont présentés pour les champs de sous refroidissement et de densité d'aire interfaciale sur la figure 4.16. Dans les deux cas, nous remarquons la bonne convergence des résultats pour des maillages comprenant plus de 80 mailles.

Il semble que la convergence des résultats soit liée au choix de la taille de la *pointe des dendrites*. Plus ce paramètre est petit, plus il faut un maillage fin pour obtenir des résultats convergés. Un nombre minimal de mailles (environ 8 mailles dans ce cas) dans la pointe des dendrites semble nécessaire, pour assurer la convergence des résultats. Cela résulte du choix

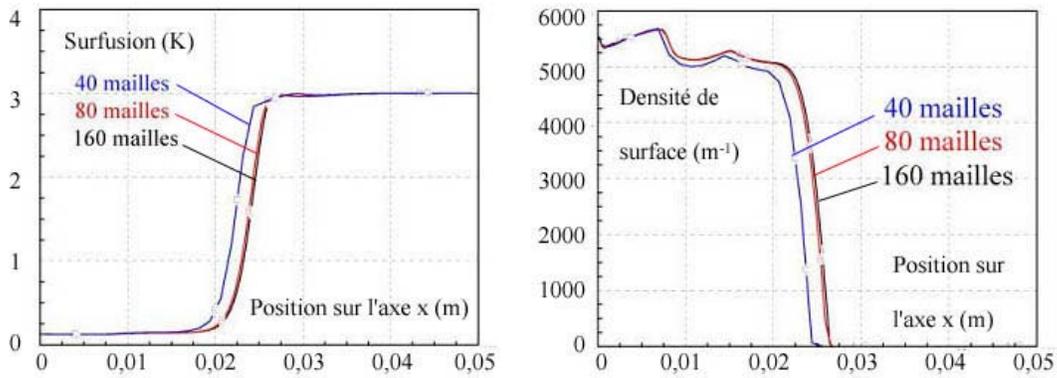


FIG. 4.16: Calcul 1D, convergence au maillage, après 1200s ; Gauche : Champ de sous-refroidissement ; Droite : Champ de densité volumique de surface

d'un critère portant sur le gradient de densité d'aire interfaciale. Cela impose d'avoir un nombre suffisant de mailles dans la zone de pointe de dendrites pour bien évaluer ce gradient.

4.2.4 Sensibilité au paramètre d_0

Nous avons réalisé des calculs dans le but de tester l'influence du paramètre d_0 . Reprenant le même cas-test, nous avons testé deux valeurs de la taille de la pointe de dendrites : $5 \cdot 10^{-3}m$ et $10 \cdot 10^{-3}m$. Les calculs ont été réalisés en 1 D. Sur la figure 4.17, les profils de fraction volumique de solide colonnaire et les profils de sous-refroidissement sont présentés.

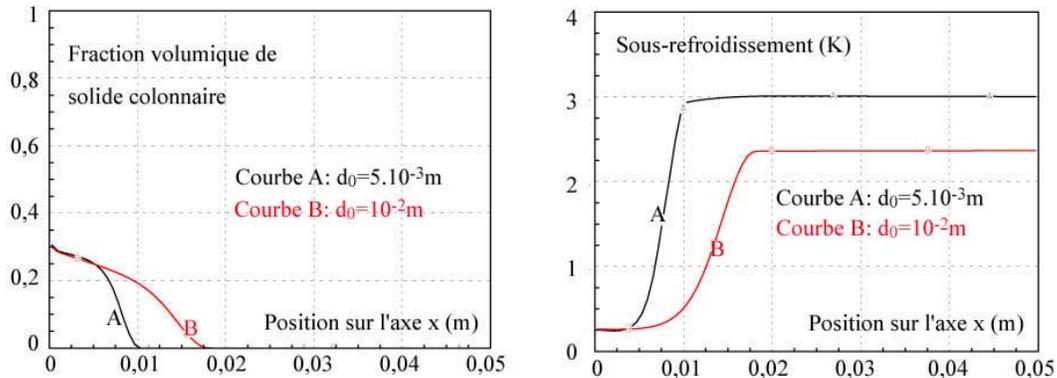


FIG. 4.17: Influence de la taille de la pointe des dendrites après 840s ; Image de gauche : Profils de fraction volumique de solide colonnaire ; Image de droite : Profil de sous-refroidissement

On peut d'abord observer que la vitesse d'avancée de la pointe des dendrites est d'autant plus rapide que le paramètre d_0 est grand. Nous pouvons aussi observer que d_0 détermine la largeur de la zone de pointe des dendrites.

Au contraire, près de la paroi froide, les deux profils présentés sur la figure de gauche de 4.17 sont superposés. Le paramètre d_0 a donc un effet sur la structure de la pointe de la zone dendritique, mais ne modifie pas le reste.

Nous remarquons que le sous-refroidissement est faible dans les deux cas, dans le coeur de la zone dendritique, et présente des profils différents en pointe de dendrites et dans le liquide. Une faible valeur de d_0 limite l'avancée des dendrites, ce qui résulte en un sous-refroidissement plus grand. Ce dernier point a une conséquence importante dans le contexte de la transition colonnaire-équiaxe, puisque la probabilité d'observer la transition entre les deux régimes de solidification sera d'autant plus élevée que d_0 sera faible.

4.2.5 Importance des critères de convergence

Nous notons qu'il est important de choisir des critères de convergence faibles pour obtenir de bons résultats. Ces critères décident pour une itération en temps, si la norme de l'écart entre deux champs consécutifs de la méthode itérative est suffisamment faible, pour que l'on puisse passer au pas de temps suivant. Les critères de convergence correspondent donc à l'ordre de grandeur de l'erreur tolérée à chaque pas de temps.

Dans le modèle, nous utilisons des lois présentant une grande sensibilité à certains champs, comme la loi de nucléation (rappelée dans l'équation (4.10)) qui dépend de la température et la concentration moyenne dans le liquide. Une erreur sur l'un de ces deux champs peut générer des écarts conséquents sur le taux de nucléation. Les résultats peuvent alors être très différents (transition colonnaire équiaxe précoce par exemple) si la précision des champs de température et concentration n'est pas assurée. Dans ce but, les critères de convergence doivent être suffisamment rigoureux et doivent être vérifiés. Nous avons observé dans nos calculs que des critères de convergence relatifs de 10^{-7} permettaient d'avoir de bons résultats.

4.3 Conclusion de l'étude de la transition colonnaire-équiaxe

Dans ce chapitre, nous avons proposé une modification du modèle colonnaire décrit dans la partie 2, permettant de modéliser la surfusion en aval de la zone dendritique et la germination des cristaux équiaxes. La principale originalité de la méthode est d'introduire un nouveau champ, la densité volumique d'aire interfaciale enveloppe, à partir de laquelle on peut estimer les coefficients d'échange d'espèces. Nous avons proposé une équation d'évolution de cette grandeur en modélisant localement l'enveloppe des dendrites par des cylindres et en se basant sur la vitesse d'avancée de la pointe des dendrites.

La seconde originalité, vise à tenir compte de la cinétique d'avancée du front colonnaire, en posant un critère qui conditionne la résolution de l'équation d'évolution de la densité d'aire interfaciale. Pour nos calculs, nous avons choisi un critère portant sur le gradient de densité d'aire interfaciale en pointe de dendrites.

Nous avons réalisé des calculs en 1 et 2 dimensions de l'expérience de solidification de l'EPM (Expérience C). Les résultats semblent physiquement acceptables, mais une validation quantitative précise reste nécessaire. Elle n'est cependant pas possible, par manque d'un cas-test précis.

Chapitre 5

Vers la perspective de simulations numériques directes de croissance de cristaux

La méthode de prise de moyenne volumique, qui a été utilisée dans les chapitres 2, et 3, présente l'avantage d'intégrer à l'échelle macroscopique les effets des structures locales, à travers les propriétés de transport macroscopiques. Ces coefficients de transfert sont déterminés numériquement, par la résolution de problèmes de fermeture portant sur les fluctuations des champs, et résolus sur des cellules unitaires représentatives du milieu diphasique. Une des difficultés de la méthode réside dans la détermination de ces structures représentatives. Goyeau & al. [60], Bousquet-Mélou & al. [26], ou Neculae & al. [106] ont utilisé des images digitalisées de dendrites obtenues expérimentalement. Malheureusement, de telles images sont difficiles à obtenir pour la plupart des mélanges et une alternative est d'utiliser une méthode de simulation numérique directe de croissance de cristaux.

Dans ce chapitre, nous allons présenter un modèle de champ de phase visant à simuler la solidification à l'échelle des plus petites structures. Nous négligeons la convection pour simplifier l'approche et nous n'allons pas intégrer les effets de l'anisotropie de la tension de surface. Ce dernier mécanisme devra être introduit afin de pouvoir simuler la croissance dendritique. Ce travail représente donc une première étape en vue de disposer d'un outil permettant le calcul des structures locales, qui pourront ensuite être utilisées pour la résolution des problèmes de fermeture.

La plupart des méthodes de champ de phase présentées dans l'introduction (1.4) sont basées sur le principe de minimisation de l'énergie libre totale du système [177, 82, 158, 3, 98, 151]. Elles nécessitent donc la construction d'une fonction, jouant le rôle de d'énergie libre. Evaluer cette fonction, qui doit tenir compte des propriétés physico-chimiques du mélange, tout en s'adaptant à la modélisation de l'interface diffuse est difficile. Nous avons décrit dans l'annexe H le principe de ces méthodes. Beckermann & al. [13] et Boettinger & al. [23] ont proposé une méthode pour laquelle l'équilibre des phases est représenté par le diagramme de phase. Nous avons choisi d'utiliser cette modélisation, plus intuitive, et plus facile à mettre en oeuvre. Nous allons présenter dans la partie suivante le développement de ce modèle, nous expliquerons ensuite le travail d'implémentation numérique que nous avons réalisé, avant de présenter une

validation et des applications.

5.1 Modèle de champ de phase

Pour la simulation numérique directe de la solidification de mélanges binaires, un modèle doit résoudre les champs de température, de concentration dans le liquide et le solide et situer l'interface entre les deux phases. Celle-ci constitue physiquement une surface infiniment fine qui est difficile à localiser avec des méthodes numériques classiques. Les méthodes de champ de phase [177, 82, 98, 151, 13] proposent l'introduction d'une variable champ de phase ϕ , qui prend la valeur 1 dans le solide, et 0 dans le liquide avec une transition continue sur une épaisseur δ , qui est un paramètre ajustable du modèle. Une équation différentielle est posée sur cette nouvelle variable physique, et elle permet de suivre les déplacements de l'interface diffuse.

Remarquons que la variable ϕ peut être interprétée comme une probabilité de présence de la phase solide. En adoptant ce point de vue, nous pouvons proposer une démarche mathématique pour construire le champ de phase. Pour un mélange solide / liquide réel, considérons la fonction indicatrice de phase, (χ), valant 1 dans le solide, 0 dans le liquide et discontinue à la traversée de l'interface (voir figure 5.1). Le champ de phase au point \vec{X}_0 peut s'interpréter comme la moyenne sur le volume total de χ :

$$\phi(\vec{X}_0) = \int_{V_{tot}} f_\phi(\vec{X} - \vec{X}_0) \chi(\vec{X}) d\vec{X} \quad (5.1)$$

La fonction f_ϕ qui apparaît dans l'intégrale de (5.1) est une fonction de pondération pour le calcul de la moyenne. Elle doit vérifier la propriété suivante $\int_{V_{tot}} f_\phi(\vec{X}) d\vec{X} = 1$. Dans le cas où cette fonction est constante égale à $\frac{1}{V_0}$ sur une sphère de volume V_0 , centrée en \vec{X}_0 , et nulle à l'extérieur de cette sphère, cette moyenne est équivalente à une moyenne volumique. Nous avons représenté cette dernière situation sur la figure 5.1, avec une sphère de diamètre δ .

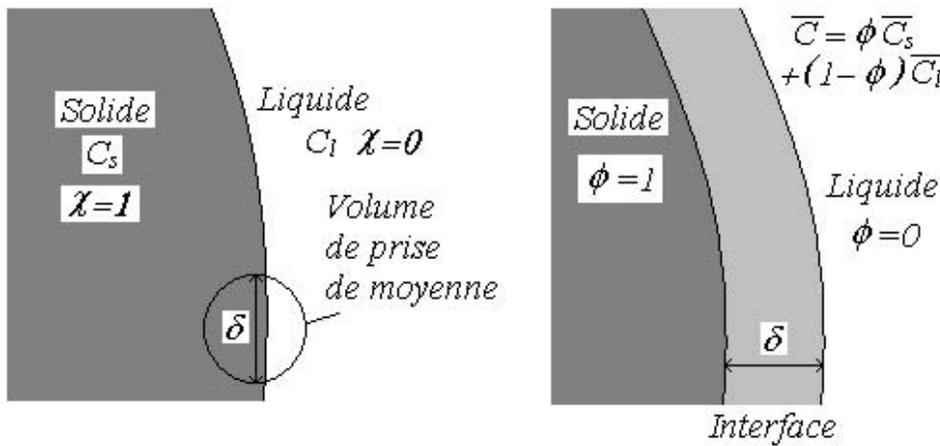


FIG. 5.1: Interprétation de la méthode de champ de phase, en terme de moyenne volumique sur un Volume de prise de moyenne sphérique.

Avec cette hypothèse, il est possible de définir une valeur moyenne, au sens de (5.1), pour chaque champ et de développer des équations d'évolution en prenant la moyenne des équations de conservation locales.

5.1.1 Equation de conservation des espèces

Dans un mélange solide / liquide réel, les champs C_s et C_ℓ sont définis sur leurs phases propres : C_s est défini dans la phase solide et n'est pas défini dans la phase liquide et réciproquement pour C_ℓ . Afin de pouvoir appliquer la définition de la prise de moyenne (5.1), nous devons prolonger les champs de façon à ce qu'ils soient définis sur tout le domaine. Nous posons donc $C_s = kC_\ell$ sur la phase ℓ et $C_\ell = \frac{C_s}{k}$ sur la phase s où k est le coefficient de partition définissant l'équilibre chimique des phases. Les champs moyens sur les concentrations vérifient la condition suivante :

$$\underline{C}_s = k\underline{C}_\ell \quad (5.2)$$

Il est aussi possible de définir un champ de concentration unique $C = \chi C_s + (1 - \chi)C_\ell$, valable dans tout le domaine, et égal à C_s dans le solide, et à C_ℓ dans le liquide. La moyenne de ce champ donne

$$\underline{C} = \phi \underline{C}_s + (1 - \phi) \underline{C}_\ell \quad (5.3)$$

Elle tend vers \underline{C}_s dans le solide et vers \underline{C}_ℓ dans le liquide, avec une transition progressive à la traversée de l'interface diffuse. Par ailleurs, en combinant les relations (5.2) et (5.3), nous pouvons exprimer les concentrations intrinsèques de chaque phase en fonction de \underline{C} et ϕ :

$$\underline{C}_s = \frac{\underline{C}}{\phi k + (1 - \phi)} \quad \text{et} \quad \underline{C}_\ell = \frac{k \underline{C}}{\phi k + (1 - \phi)} \quad (5.4)$$

Etant donné que le champ \underline{C} suffit pour caractériser les compositions des deux phases, nous nous limitons comme Beckermann & al. [13] ou Boettinger & al [23] à développer une unique équation sur la concentration. Nous moyennons les équations de conservation microscopiques des espèces sur chaque phase avant de les sommer et obtenir une unique équation de conservation des espèces, valable dans tout le domaine :

$$\frac{\partial \underline{C}}{\partial t} = \nabla \cdot [\phi D_s \nabla \underline{C}_s + (1 - \phi) D_\ell \nabla \underline{C}_\ell] \quad (5.5)$$

En injectant l'expression 5.4 dans l'équation 5.5, nous aboutissons à une équation dépendant uniquement de \underline{C} [13, 23] :

$$\frac{\partial \underline{C}}{\partial t} = \nabla \cdot \widetilde{D} \left[\nabla \underline{C} + \frac{(1 - k) \underline{C}}{1 - \phi + k \phi} \nabla \phi \right] \quad (5.6)$$

Dans l'équation (5.6), le coefficient \widetilde{D} est donné par [13, 23] :

$$\widetilde{D} = D_s + (D_\ell - D_s) \frac{1 - \phi}{1 - \phi + k\phi} \quad (5.7)$$

5.1.2 Equation de conservation de l'énergie

Pour obtenir l'équation de conservation de l'énergie, nous procédons de la même façon que pour les espèces. Nous moyennons les équations microscopiques de conservation de l'énergie sur chaque phase et nous les sommons [13, 23] :

$$\frac{\partial H_s}{\partial t} = \nabla \cdot \lambda_s \nabla T_s \text{ et } \frac{\partial H_\ell}{\partial t} = \nabla \cdot \lambda_\ell \nabla T_\ell \quad (5.8)$$

En rappelant que :

$$\underline{H}_s = C_{ps}(\underline{T}_s - T_{eut}) \text{ et } \underline{H}_\ell = C_{p\ell}(\underline{T}_\ell - T_{eut}) + L \quad (5.9)$$

Nous avons supposé les capacités thermiques de chaque phases et les conductivités thermiques égales à C_p et λ et nous prenons par ailleurs $T_s = T_\ell = T$. Les équations moyennées sont sommées pour aboutir à l'équation de conservation suivante.

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda \nabla^2 T + L \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (5.10)$$

5.1.3 Equation sur le champ de phase

Nous décrivons dans cette partie, la méthode de Beckermann & al. [13] et Boettinger & al. [23] pour développer une équation différentielle sur le champ de phase. Ces auteurs ont montré l'équivalence de leur méthode avec l'approche par minimisation de l'énergie libre pour le cas des corps purs [23].

Les deux forces qui pilotent la cinétique d'une interface sont la surfusion à l'interface et la force de tension de surface, représentées sur la figure 5.2.

L'hypothèse de départ est de supposer la proportionnalité entre la vitesse d'interface et la somme des forces de déplacement :

$$\vec{V} \cdot \vec{n} = \mu_\phi \left(T_{sol} + m_\ell C_\ell - T - \frac{\Gamma}{R_c} \right) \quad (5.11)$$

Le coefficient de proportionnalité μ_ϕ est appelé mobilité. C'est un paramètre de modèle qui apparaît également dans les modèles de minimisation de l'énergie libre.

Afin d'obtenir une équation d'évolution du champ de phase, nous pouvons exprimer la vitesse de déplacement par sa définition :

$$\vec{V} \cdot \vec{n} = \left(\frac{\partial \phi / \partial t}{\|\nabla \phi\|} \right) \quad (5.12)$$

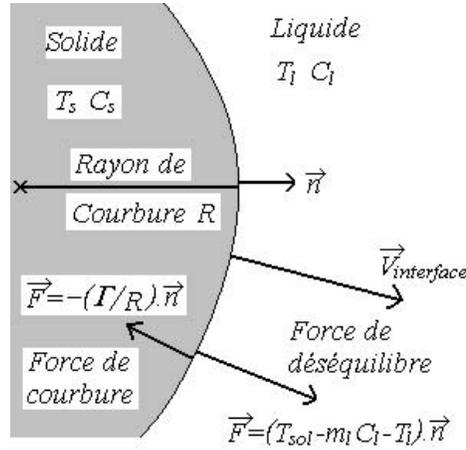


FIG. 5.2: Cinétique d'une interface : Les forces agissant sur l'interface

Par ailleurs, pour exprimer le rayon de courbure d'une interface, nous pouvons utiliser la relation classique : $\frac{1}{R_c} = \nabla \cdot \vec{n}$, ainsi que $\vec{n} = -\frac{\nabla \phi}{\|\nabla \phi\|}$. Elle donne :

$$\frac{1}{R_c} = -\frac{1}{\|\nabla \phi\|} \left[\nabla^2 \phi - (\nabla \phi \nabla) \|\nabla \phi\| \right] \quad (5.13)$$

Les équations (5.12) et (5.13) ne peuvent pas être implémentées sous cette forme dans un code de calcul, à cause des termes faisant intervenir $\|\nabla \phi\|$. Une fermeture doit être proposée pour ces termes, afin d'obtenir une équation dépendant uniquement de ϕ . La technique proposée par Beckermann, est d'imposer le profil de ϕ à travers l'interface (ce qui revient à choisir la fonction de pondération f de la prise de moyenne 5.1). La fonction suivante est proposée :

$$\phi(n) = \frac{1}{2} \left(1 - \tanh \left(\frac{3n}{\delta} \right) \right) = \frac{1}{e^{\frac{6n}{\delta}} + 1} \quad (5.14)$$

Le paramètre n , est la coordonnée sur l'axe qui traverse l'interface orthogonalement. Cette fonction possède la propriété de tendre vers 1 en $-\infty$ et vers 0 en $+\infty$. Par ailleurs, l'interface (que nous définissons comme la zone de passage entre les valeurs 0,95 et 0,05) a une épaisseur de δ . Le gradient est donné par la dérivée par rapport à n , de la fonction (5.14) :

$$\nabla \phi = \frac{\partial \phi}{\partial n} \vec{n} = -\frac{6\phi(1-\phi)}{\delta} \vec{n} \quad (5.15)$$

De même, pour estimer le dernier terme de (5.13), nous pouvons calculer la dérivée seconde de ϕ :

$$\frac{(\nabla \phi \nabla) \|\nabla \phi\|}{\|\nabla \phi\|} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial n^2} = -\frac{36\phi(1-\phi)(1-2\phi)}{\delta^2} \quad (5.16)$$

En regroupant dans l'équation (5.11) les résultats (5.12), (5.13), (5.15) et (5.17), nous obtenons l'équation d'évolution de ϕ :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \mu_\phi \Gamma \left[\nabla^2 \phi - \frac{36\phi(1-\phi)(1-2\phi)}{\delta^2} \right] + \mu_\phi (T_{sol} - T + m_\ell C_\ell) \frac{6\phi(1-\phi)}{\delta} \quad (5.17)$$

5.1.4 Analyse de l'équation sur le champ de phase

Profil d'interface

Dans l'équation (5.17), le membre de droite est composé de deux termes, le premier quantifiant les effets de tension de surface, et le deuxième quantifiant l'effet du déséquilibre thermosolutal. Remarquons qu'à l'équilibre (le dernier terme de droite est nul), et pour un régime stationnaire (le terme de dérivée temporelle est nul), l'équation dégénère en une équation différentielle, dont la forme, en une dimension, est :

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial n^2} = \frac{36\phi(1-\phi)(1-2\phi)}{\delta^2} \quad (5.18)$$

Une solution de cette équation différentielle est précisément la fonction $\phi(n)$, choisie à l'équation (5.14). Ainsi l'équation (5.17) contrôle la cinétique de solidification et d'avancée de l'interface, mais permet aussi d'établir un profil du champ de phase proche du profil d'équilibre.

Choix de l'épaisseur d'interface

Remarquons qu'en supposant *a priori* un profil du champ de phase à la traversée de l'interface, il est nécessaire de vérifier que lors de la réalisation des calculs, celui-ci prend effectivement la forme voulue. Dans le cas contraire, une erreur est faite lors de l'évaluation du gradient du champ de phase (5.15) dans l'équation (5.17).

Cela revient à s'assurer que le temps caractéristique de retour vers le profil d'équilibre est inférieur au temps caractéristique de déplacement de l'interface sous l'effet du déséquilibre thermochimique. Ce retour s'effectue grâce au terme de diffusion du champ ϕ dans l'équation (5.17), sur une distance δ , avec pour diffusivité : $\mu_\phi \Gamma$, ce qui donne un temps caractéristique de : $\frac{\delta^2}{36\mu_\phi \Gamma}$.

Le temps caractéristique de déplacement de l'interface dépend de l'écart à l'équilibre ΔT dans l'équation (5.17). A un endroit donné, le champ de phase passe de 0 à 1, avec un temps caractéristique de $\frac{\delta}{6\mu_\phi \Delta T \phi(1-\phi)}$. Pour garantir que le profil d'interface est bien celui choisi, il faut vérifier la condition :

$$\frac{\delta^2}{36\mu_\phi \Gamma} < \frac{\delta}{6\mu_\phi \Delta T \phi(1-\phi)} \quad (5.19)$$

$$\delta < \frac{6\Gamma}{\Delta T} \quad (5.20)$$

La relation (5.20), donne un critère assez contraignant sur le choix du paramètre δ , qui ne pourra être choisi aussi grand que l'on souhaite. Les calculs seront imprécis et peu fiables si le critère n'est pas vérifié.

Choix de la mobilité

La mobilité μ_ϕ a été introduite comme un paramètre du modèle, dans l'équation 5.11 qui relie la cinétique d'avancée de l'interface (donc les changements de phase) au déséquilibre thermosolutal et aux forces de tension de surface. Si μ_ϕ est faible, la cinétique de solidification est ralentie, et de forts écarts à l'équilibre sont nécessaires pour déplacer l'interface. Au contraire, si ce coefficient est grand, la cinétique est rapide, l'écart à l'équilibre reste faible. Au delà d'une certaine valeur seuil, le déséquilibre thermodynamique est si faible, que les changements de phase sont pilotés par les transferts d'espèces et d'énergie et ne dépendent plus de la valeur de μ_ϕ . Cette condition est atteinte lorsque les transferts du champ de phase sont plus rapides que les transferts d'espèces et d'énergie. C'est pourquoi il faut choisir le coefficient de diffusion du champ de phase supérieur à ceux des espèces et d'énergie :

$$\mu_\phi \Gamma > \alpha \text{ et } \mu_\phi \Gamma > D_\ell \quad (5.21)$$

5.2 Implémentation numérique

5.2.1 Discrétisation en Volumes Finis

La méthode de discrétisation en Volumes Finis avec des maillages fixes en treillis a été choisie. Ce type de maillage est couramment utilisé dans ce contexte [13, 14] avec, parfois, des méthodes de raffinement local de maillages [81, 87]

La question de l'influence du choix du maillage sur les résultats a été posée par Beckermann & al. [13]. En effet, on peut se demander si le choix de maillage en treillis est sans effet sur les directions privilégiées de croissance. Dans ce cas, les méthodes d'éléments finis avec des maillages non structurés peuvent sembler plus pertinentes. A notre connaissance, ces méthodes n'ont pas été particulièrement privilégiées.

Le modèle est constitué de 3 équations aux dérivées partielles portant sur les 3 inconnues du problème : ϕ , T et \underline{C} . Elles sont couplées, puisque \underline{C} et T apparaissent dans l'équation différentielle sur ϕ , et que ϕ intervient dans les deux autres équations. De plus, toutes ces équations sont non-linéaires.

5.2.2 Résolution du système

Nous résolvons les 3 équations (5.6), (5.10) et (5.17) simultanément. Après avoir linéarisé tous les termes, le système obtenu est résolu par la méthode itérative *GMRES* [89, 145]. L'opération est répétée jusqu'à ce que la convergence de tous les champs soit réalisée, avant de passer au pas de temps suivant (méthode de point fixe [145]).

5.2.3 Implémentation

La méthode numérique a été implémentée avec la plate forme *PELICANS* (Plateforme Evolutive de Librairie de Composant pour l'Analyse Numérique et Statistique [119, 120]), outil d'aide à la résolution de systèmes d'équations aux dérivées partielles développé à la DPAM, au Service d'Etude et Modélisation de l'Incendie, du Corium et du Confinement (SEMIC), au Laboratoire de Mathématique et de Physique du Corium (LMPC). Cette plateforme, réalisée en C++, permet de disposer d'un ensemble d'applications programmées, facilitant la résolution des systèmes d'équations aux dérivées partielles. Certaines étapes comme la construction de maillages, l'assemblage des matrices, ou les méthodes de résolution de systèmes linéaires sont réalisées par la création d'objets associés à des classes de PELICANS. Le travail de programmation est d'autant facilité [119, 120].

5.2.4 Introduction d'une perturbation

Lors de l'avancée d'une interface solide-liquide dans un mélange en cours de solidification, la croissance d'une instabilité est provoquée par une déstabilisation initiale du front susceptible de s'amplifier. Numériquement, si la résolution des équations était exacte, il n'y aurait aucune source de perturbation. En pratique, les erreurs d'arrondi de la machine et les critères de convergence choisis créent des hétérogénéités qui ne sont pas maîtrisées et mènent à leur apparition. Afin de les provoquer volontairement, nous avons procédé comme Boettinger & al. [23], en introduisant un terme aléatoire dont l'amplitude est choisie, et introduit à chaque maille dans l'équation différentielle sur le champ de phase. Nous lui avons donné la même forme que Boettinger & al. :

$$C_{rand}\mu\phi\Gamma\left(\frac{6\phi(1-\phi)}{\delta}\right)^2 rand() \quad (5.22)$$

La fonction $rand()$ est une fonction générant des valeurs réelles aléatoires comprises entre 0 et 1. On ajoute alors un terme source dans l'équation de ϕ . Le coefficient C_{rand} quantifie l'amplitude de la perturbation et nous avons utilisé une valeur de 0,001.

5.3 Premières applications

5.3.1 Calculs en 1 dimension pour un corps pur

Nous présentons ici une première série de tests en 1 dimension, pour lesquels il est possible de réaliser un grand nombre de calculs avec des maillages très fins. Comme les effets de tension de surface n'interviennent pas pour ce genre de calcul, le choix du paramètre Γ est libre. L'intérêt de cette étude préliminaire est de s'assurer du bon fonctionnement du code et vérifier les critères analytiques donnés dans la partie 5.1. Le principe des calculs à une dimension est présenté dans la figure 5.3. La température initiale est choisie de façon à ce que le liquide soit dans un état de surfusion.

Les paramètres utilisés pour les calculs sont donnés dans le tableau 5.1.

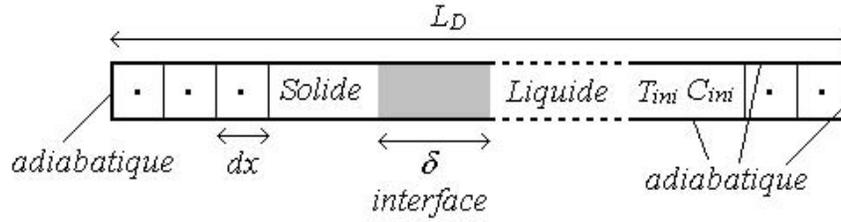


FIG. 5.3: Principe des calculs à une dimension et paramètres physiques du modèle.

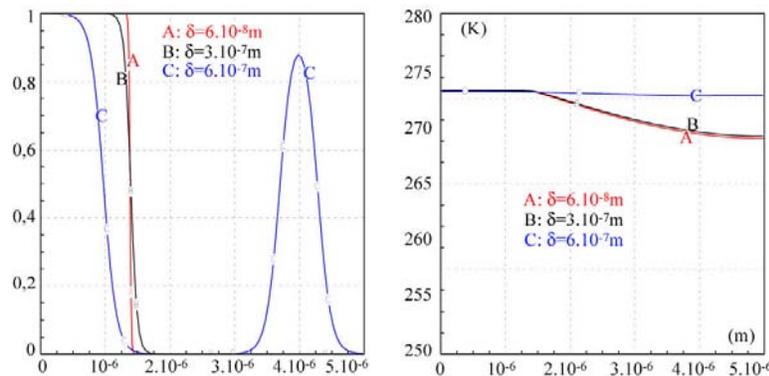
Γ	$10^{-6}m.K$	Dimension L_D	$5.10^{-6}m$	α	$1,9.10^{-7}m^2.s^{-1}$
T_m	$273,15K$	C_p	$4185J.K^{-1}.kg^{-1}$	L	$3,34.10^5J.kg^{-1}$
T_{ini}	$253,15K$	μ_ϕ	$1m.s^{-1}.K^{-1}$	δ	$3.10^{-7}m$

TAB. 5.1: Données des calculs à une dimension

Choix du paramètre δ

Nous avons réalisé une série de calculs permettant de vérifier le critère (5.20), démontré à la partie 5.1.4, portant sur le paramètre δ . Ce critère donne une valeur maximale acceptable de l'épaisseur de l'interface pour assurer un bon profil d'équilibre de l'interface. Pour le cas-test décrit dans le tableau 5.1, la valeur limite est $3.10^{-7}m$. Les calculs ont été réalisés pour les valeurs suivantes du paramètre δ : $6.10^{-8}m$ / $3.10^{-7}m$ et $6.10^{-7}m$. Pour chaque calcul, le maillage est choisi régulier, avec 6 mailles dans l'interface.

Nous reportons sur la figure 5.4 les résultats des calculs portant sur les profils des champs de phase et de température. Si le critère n'est pas vérifié, nous constatons que le profil du champ de phase (sur la figure de gauche) n'a pas la forme attendue, puisque nous voyons une singularité en amont de l'interface qui rend la solution inexacte. Cette singularité se retrouve sur le profil du champ de température (sur la figure de droite), puisque nous observons une température liquide supérieure à ce qu'elle devrait être. Lorsque le critère est respecté, le profil du champ de phase a bien la forme voulue ce qui montre la nécessité de respecter l'inégalité (5.20).

FIG. 5.4: Calculs 1D : Dépendance des résultats à l'épaisseur de l'interface : Gauche : Profil du champ de phase après $t = 6.10^{-5}s$; Droite : Profil du champ de température après $t = 6.10^{-5}s$

Choix du paramètre μ_ϕ

La mobilité est un autre paramètre du modèle qui doit être choisi suffisamment grand, pour que la solidification ne soit pilotée que par les phénomènes de transfert d'énergie et d'espèces. Nous avons proposé le critère (5.21), et nous proposons de tester sa validité. Nous avons réalisé une série de calculs en reprenant les propriétés physiques décrites dans le tableau 5.1. Pour chaque calcul, les maillages sont construits de façon à avoir 6 mailles dans l'interface. Au vu du critère (5.21), la valeur minimale de la mobilité qui doit être choisie est $0,19m.s^{-1}.K^{-1}$. Nous avons fait varier la mobilité en prenant les valeurs suivantes : $\mu_\phi = 10^{-2}m.s^{-1}.K^{-1}$ / $10^{-1}m.s^{-1}.K^{-1}$ et $1m.s^{-1}.K^{-1}$.

Nous avons représenté sur la figure (5.5), les résultats obtenus pour le champ de phase, et la température au même instant. Lorsque la mobilité ne vérifie pas le critère (5.21) (lorsque $\mu_\phi = 10^{-2}m.s^{-1}.K^{-1}$ pour nos calculs), la cinétique d'évolution de l'interface est trop lente, comme on peut le voir, sur l'image de gauche, pour la courbe A qui est en retard devant les deux autres. Il résulte que la température est sous estimée, comme on peut le voir pour la courbe A sur l'image de droite. Dans le solide, la température de changement de phase ($273,15K$ sur cet exemple) n'est pas atteinte.

Au contraire pour les deux autres valeurs du paramètre μ_ϕ , qui sont proches de la valeur donnée par le critère (5.21) nous obtenons des courbes qui se superposent, ce qui montre la nécessité de respecter l'inégalité (5.21).

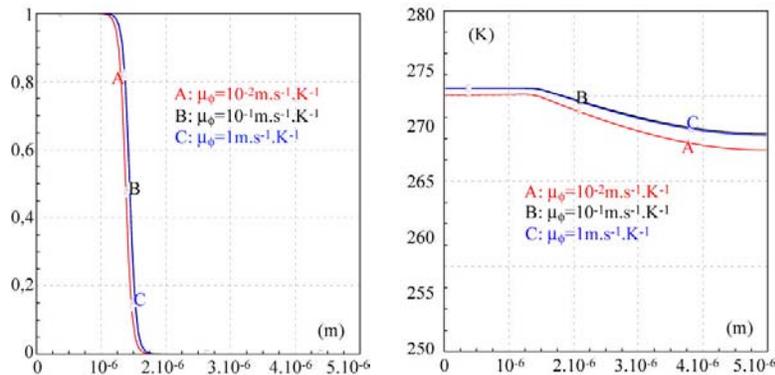


FIG. 5.5: Calculs 1D : Dépendance des résultats au coefficient de mobilité : Gauche : Profil du champ de phase après $t = 6.10^{-5}s$; Droite : Profil du champ de température après $t = 6.10^{-5}s$

Influence du nombre de mailles dans l'interface

Pour s'assurer que le profil de ϕ , soit le plus proche possible de la fonction analytique (5.14), il est important d'avoir un nombre suffisant de mailles dans l'interface. Nous avons réalisé des calculs en faisant varier la taille des mailles. Le cas test correspondant au jeu de données du tableau 5.1 a été utilisé avec 3 maillages différents correspondant à 3 / 6 et 12 mailles dans l'interface. Nous avons tracé sur les mêmes graphes, sur la figure 5.6, les profils de champ de phase et de température pour les 3 types de maillages.

Sur l'image de gauche, nous avons tracé les profils du champ de phase, et nous constatons que les trois courbes sont superposées. Au contraire, sur la figure de droite, correspondant au

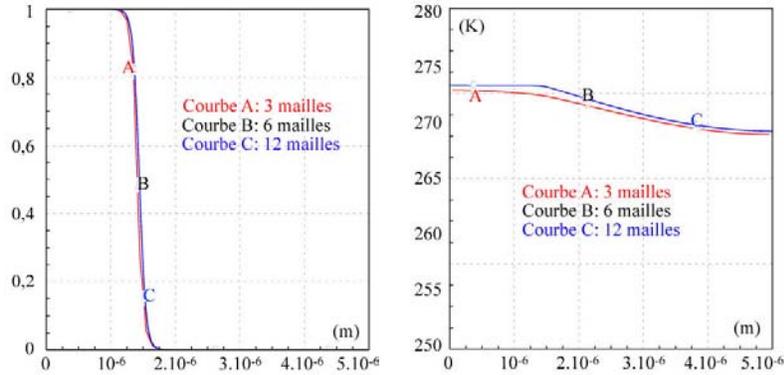


FIG. 5.6: *Calculs à une dimension : Dépendance des résultats au nombre de mailles dans l'interface : Gauche : Profil du champ de phase après $t = 6.10^{-5}s$; Droite : Profil du champ de température après $t = 6.10^{-5}s$*

profil de température, nous remarquons que la courbe correspondant à 3 mailles dans l'interface, se démarque des deux autres.

Des calculs complémentaires avec 4 et 5 mailles dans l'interface ont été réalisés (ces calculs n'ont pas été représentés sur la figure 5.6, par soucis de clarté). Dans le premier cas, la courbe de température obtenue présente un écart avec le calcul de référence (correspondant à 12 mailles dans l'interface), mais cet écart est inférieur à celui observé sur l'image de droite de la figure 5.6. Dans le second cas, nous n'avons pas observé d'écart, pour les profils de champ de phase et de température.

Au vu de ces résultats, il semble nécessaire d'avoir des maillages suffisamment fins (5 ou 6 dans l'interface) pour correctement représenter les phénomènes dans l'interface.

5.3.2 Premiers calculs en 2 dimensions

On s'intéresse maintenant à des tests en 2D, pour lesquels les effets de tension de surface interviennent.

Calculs de germination

Nous allons montrer, à l'aide de calculs 2D, que le modèle est capable de prédire le rayon critique de nucléation des cristaux. La théorie de la nucléation homogène (voir annexe G), rappelle qu'un germe, immergé dans un liquide sous-refroidi, ne peut nucléer que s'il atteint une taille critique supérieure à r_0 , donnée par le rapport suivant [86] :

$$r_0 = \frac{\Gamma}{\Delta T} \quad (5.23)$$

Nous avons réalisé des calculs 2 D de croissance d'un germe sphérique dans un corps pur en surfusion. Dans un premier cas, le germe a une taille initiale inférieure au rayon critique et, dans un deuxième cas, sa taille est supérieure. L'ensemble des données des calculs sont listées dans la table 5.2, et les résultats de calculs sont présentés sur les figures 5.7 et 5.8.

Γ	$10^{-3}m.K$	Dimensions $L_D \times L_D$	$(10^{-4}m)^2$	Nb. mailles	200×200
ΔT	$60K$	Cas 1 : r_{ini}	$10^{-5}m$	δ	$3.10^{-6}m$
r_0	$1,5.10^{-5}$	Cas 2 : r_{ini}	$2.10^{-5}m$		

TAB. 5.2: Données du calcul de croissance d'un germe sphérique autour du rayon critique

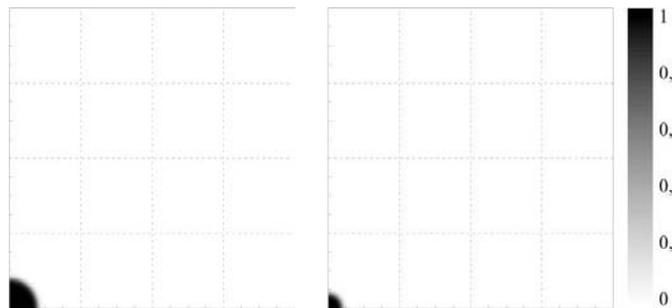


FIG. 5.7: Evolution d'un germe dans un corps pur en surfusion : Champ de phase ; Cas 1, le rayon du germe est inférieur au rayon critique ; Gauche : instant initial ; Droite : après quelques instants

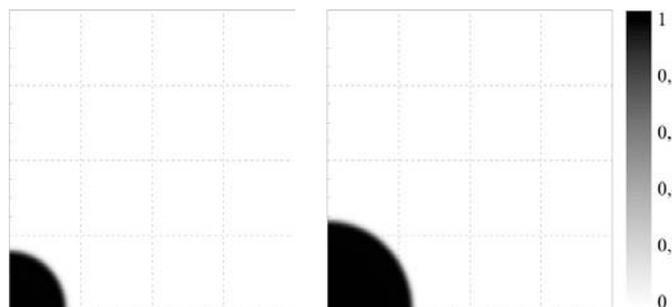


FIG. 5.8: Evolution d'un germe dans un corps pur en surfusion : Champ de phase ; Cas 2, le rayon du germe est supérieur au rayon critique ; Gauche : instant initial ; Droite : après quelques instants

Nous voyons sur ces deux figures, que le modèle prédit la régression du germe dans le premier cas et sa croissance dans le deuxième cas, conformément à la théorie.

Un cas-test de solidification d'un corps pur

Pour tester encore le modèle et son implémentation numérique, nous avons sélectionné un cas de solidification proposé par Beckermann & al. [13]. Ces auteurs ont présenté des simulations numériques en deux dimensions de solidification d'un corps pur, à partir d'un modèle similaire au notre. Les résultats sont présentés sur la figure 5.9 pour le champ de phase et sur la figure 5.10 pour les isovaleurs de température. Nous résumons dans le tableau 5.3 les propriétés physiques du corps et les conditions expérimentales.

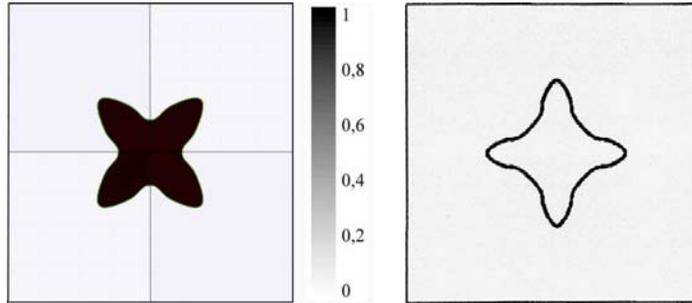


FIG. 5.9: Calcul de la solidification d'un corps pur : champ de phase après $3,5 \cdot 10^{-7} s$; Gauche : Nos calculs ; Droite : Calculs de Beckermann & al : Isovaleur 0,5

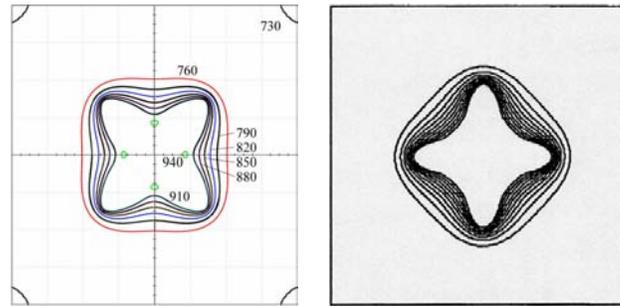


FIG. 5.10: Calcul de la solidification d'un corps pur : Isovaleurs de température après $3,5 \cdot 10^{-7} s$; Gauche : Nos calculs ; Droite : Calcul de Beckermann & al.

Γ	$2,41 \cdot 10^{-7} m \cdot K$	Domaine $L \times L$	$(54 \cdot 10^{-7} m)^2$	δ	$10^{-8} m$
L	$383838 J \cdot kg^{-1}$	α	$2,44 \cdot 10^{-8} m^2 \cdot s^{-1}$	ΔT	$233 K$
μ_ϕ	$0,202 m \cdot s^{-1} \cdot K^{-1}$	Nb. mailles	200×200	dt	$10^{-11} s$
ρ	$2475 kg \cdot m^{-3}$	C_p	$1042 J \cdot K^{-1} \cdot kg^{-1}$		

TAB. 5.3: Données du cas-test de solidification d'un corps pur

Nous remarquons que la cinétique de croissance des instabilités, ainsi que leur forme et les lignes d'isovaleurs de température, calculées avec notre modèle sont en bon accord avec les calculs réalisés par Beckermann & al. Nous remarquons que, dans notre cas, les branches partent en direction diagonale alors que Beckermann & al. obtiennent des branches verticales et horizontales. Cela vient du fait qu'ils imposent une anisotropie sur certaines propriétés, qui forcent les branches à croître dans les directions horizontales et verticales. Dans notre cas, aucune direction n'est privilégiée et les branches croissent dans les directions qui présentent les plus forts gradients de températures, imposés par les conditions aux limites.

5.4 Limitation du modèle et alternative proposée

5.4.1 Limitation des possibilités de simulation

Sur des exemples de calculs en une dimension, puis des exemples simples à deux dimensions, nous avons montré la capacité du code à simuler la cinétique de la solidification avec les forces de tension de surface. Nous avons identifié des critères portant sur les paramètres du modèle et avons réalisé des calculs permettant de vérifier leur pertinence. Cependant, ces critères s'avèrent très contraignants et imposent des limitations quant à l'utilisation du modèle.

Nous avons relié dans l'équation (5.20), le choix de l'épaisseur d'interface au coefficient de Gibbs-Thompson et à la surfusion. En considérant les ordres de grandeurs typiques du coefficient de Gibbs-Thompson pour les alliages métalliques (entre 10^{-7} et $10^{-6}m.K$) et en prenant un ordre de grandeur pour la surfusion de $10K$, nous obtenons des épaisseurs d'interface de 6.10^{-8} à $6.10^{-7}m$. Par ailleurs, nous avons montré la nécessité d'avoir un nombre minimal de mailles dans l'interface (les calculs 1D de la partie 5.3.1 semblent montrer qu'il faut au moins 6 mailles dans l'interface). Ces contraintes rendent les calculs coûteux, et nous ne pourrions simuler de grandes échelles, à l'image du calcul réalisé à la partie 5.3.2, sur une échelle spatiale de $1\mu m$, et une échelle de temps de $10^{-8}s$.

5.4.2 Une alternative pour calculer à de plus grandes échelles

Le problème posé dans la partie précédente provient de l'ordre de grandeur du paramètre Γ . Nous avons montré dans la partie 5.1.4 que ce paramètre intervient dans la force de tension de surface qui est un phénomène physique et dans la cinétique de retour vers le profil d'équilibre qui est une modélisation. Il est possible d'apporter une amélioration au modèle consistant à découpler ces deux effets, afin de conserver la valeur physique de Γ pour la tension de surface, et d'introduire un nouveau paramètre Γ^* destiné à piloter le retour vers le profil d'équilibre de l'interface.

Nous allons calculer explicitement la courbure à partir du champ de phase, à l'aide de la formule classique :

$$\frac{1}{R_c} = \nabla \cdot \vec{n} \text{ où } \vec{n} = -\frac{\nabla \phi}{\|\nabla \phi\|} \quad (5.24)$$

L'équation d'évolution modifiée du champ de phase s'écrit alors sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \mu_\phi \frac{(\Gamma^* - \Gamma)}{R_c} \frac{6\phi(1-\phi)}{\delta} + \mu_\phi \Gamma^* \left[\nabla^2 \phi - \frac{36\phi(1-\phi)(1-2\phi)}{\delta^2} \right] + \mu_\phi (T_{sol} - T + m_\ell C_\ell) \frac{6\phi(1-\phi)}{\delta} \quad (5.25)$$

Les effets de tension de surface correspondent à une partie du premier terme de droite de (5.25) :

$$-\mu_\phi \Gamma \frac{6\phi(1-\phi)}{R_c \delta} \quad (5.26)$$

Le retour vers le profil d'équilibre de l'interface est contraint par un terme qui fait intervenir le nouveau paramètre de modèle Γ^* , qui peut être choisi librement.

$$\mu_\phi \Gamma^* \frac{6\phi(1-\phi)}{R_c \delta} + \mu_\phi \Gamma^* \left[\nabla^2 \phi - \frac{36\phi(1-\phi)(1-2\phi)}{\delta^2} \right] \quad (5.27)$$

5.5 Calculs 2D

L'équation du champ de phase modifiée est utilisée pour calculer la croissance de germes immergés dans un liquide sous-refroidi et la solidification dirigée. A titre d'exemple, nous montrons un premier calcul de croissance d'un germe sphérique réalisé avec le nouveau modèle. Les données utilisées pour ce calcul sont listées dans la table 5.4. Les résultats pour le champ de phase et la température sont présentés sur la figure 5.11, et les résultats pour les concentrations dans le liquide et le solide sont présentés sur la figure 5.12.

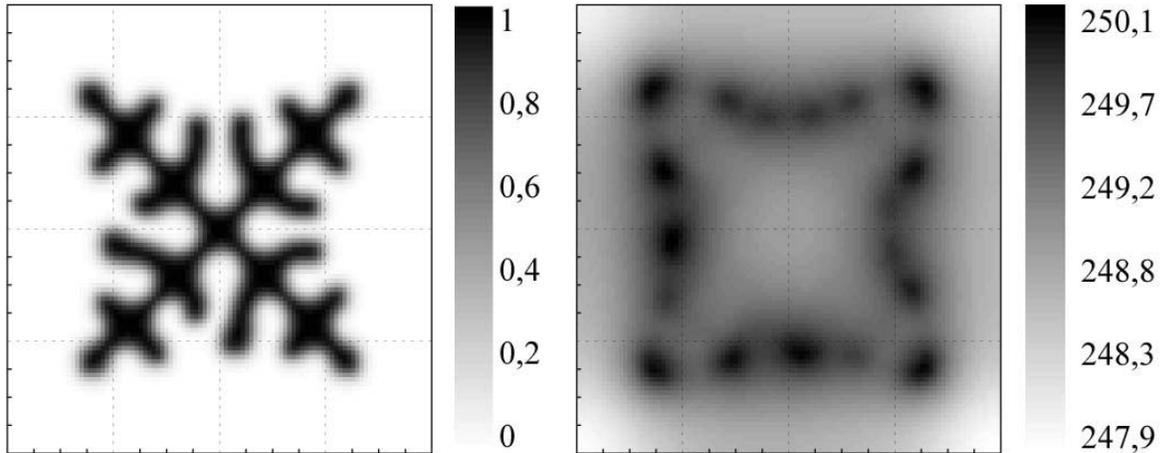


FIG. 5.11: Solidification d'un germe sphérique après 7ms ; Gauche : Champ de phase ; Droite : Température (K)

En choisissant un coefficient Γ^* 100 fois supérieur au coefficient Γ , il devient possible de choisir une épaisseur d'interface de $6 \cdot 10^{-6} m$, et simuler la croissance sur une échelle spatiale de $100 \mu m$. Avec la version initiale de modèle, le critère (5.20) imposait de choisir $\delta < 6 \cdot 10^{-7} m$.

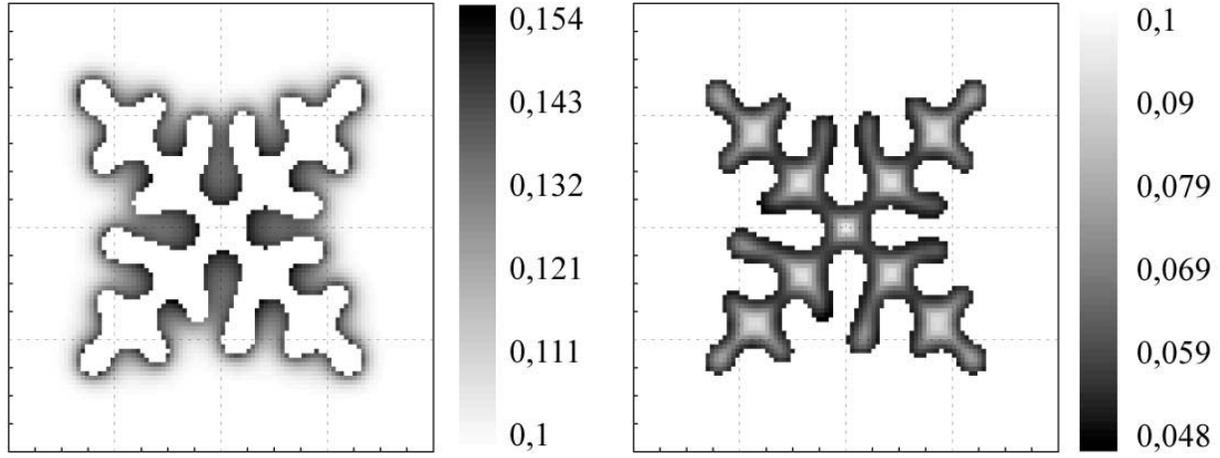


FIG. 5.12: Solidification d'un germe sphérique après 7ms; Gauche : Champ de concentration dans le liquide; Droite : Champ de concentration dans le solide

Γ	$10^{-6}m.K$	Domaine LxL	$(10^{-4}m)^2$	α	$1,9.10^{-7}m^2.s^{-1}$
Γ^*	$10^{-4}m.K$	Nb. mailles	100	L	$3,34.10^5J.kg^{-1}$
T_{ini}	233,15K	δ	$6.10^{-6}m$	C_p	$4185J.K^{-1}.kg^{-1}$
T_m	273,5K	m_ℓ	-162K	D_ℓ	$1,8.10^{-9}m^2.s^{-1}$
C_{ini}	0,1	k	0,36	D_s	$1.10^{-13}m^2.s^{-1}$
μ_ϕ	$10^{-2}m.K^{-1}.s^{-1}$	dt	$10^{-7}s$		

TAB. 5.4: Jeu de données du cas-test de solidification d'un germe sphérique

5.5.1 Influence de l'épaisseur de l'interface

Dans l'optique d'une validation du code de calcul, il est nécessaire de mener une étude de l'influence de l'épaisseur de l'interface sur les résultats. Dans ce but, nous avons repris le cas test décrit dans la table 5.4, en faisant varier le paramètre δ (et le maillage en conséquence), et en simulant uniquement un quart du domaine. Nous avons utilisé les valeurs de l'épaisseur d'interface listées sur la première ligne du tableau 5.5. Nous avons mesuré, dans chaque cas certains paramètres caractéristiques de la structure cristalline, qui sont représentées sur la figure 5.13 : La dimension du cristal, à un instant précis, l'épaisseur de la branche principale, et l'espacement des branches secondaires. Ces mesures sont rassemblées dans le tableau 5.5. Nous représentons sur la figure 5.13 deux images du champ de phase (les deux images ne correspondent pas au même instant) obtenus pour deux valeurs différentes de δ .

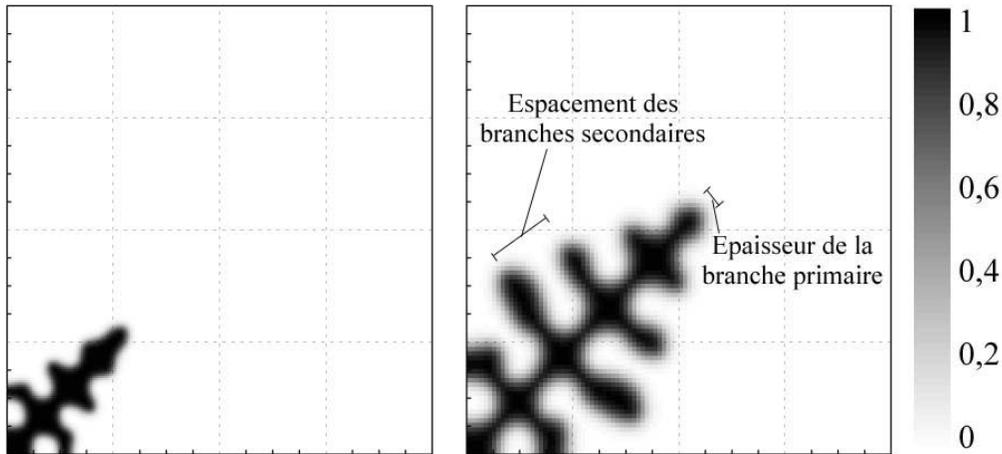


FIG. 5.13: Influence de l'épaisseur d'interface sur la forme des cristaux; Image du champ de phase; Gauche : $\delta = 3.10^{-6}m$ après 4ms ; Droite : $\delta = 6.10^{-6}m$ après 10ms

δ	$1, 2.10^{-6}m$	$2, 4.10^{-6}m$	$3.10^{-6}m$	$4, 2.10^{-6}m$	$6.10^{-6}m$
Taille du cristal	$26, 5\mu m$	$26, 5\mu m$	$25, 5\mu m$	$25\mu m$	$25, 4\mu m$
Espacement branches secondaires : λ_2	$5, 9\mu m$	$8, 82\mu m$	$9, 6\mu m$	$11, 76\mu m$	$14, 7\mu m$
Épaisseur branches primaires	$5\mu m$	$5\mu m$	$5, 1\mu m$	$5, 1\mu m$	$5, 1\mu m$
$\lambda_2 - 2\delta$	$3, 5\mu m$	$4, 02\mu m$	$3, 6\mu m$	$3, 36\mu m$	$2, 7\mu m$

TAB. 5.5: Résultat des différentes simulations; Les mesures sont effectuées à l'instant 2ms pour tous les cas tests.

Dans les première et dernière lignes du tableau 5.5, nous observons que la taille du cristal et l'épaisseur de la branche primaire ont peu varié lorsque δ a été modifié. Cela nous permet

de dire que ces paramètres géométriques de la microstructure ne dépendent pas du choix de l'épaisseur d'interface. En revanche dans la deuxième ligne du tableau, nous remarquons que l'espacement des branches secondaires a significativement varié. Les mesures montrent que plus δ est grand, et plus l'espacement des instabilités secondaires est grand.

Pour expliquer cette dépendance, nous faisons figurer sur la dernière ligne du tableau 5.5, la différence entre l'espacement secondaire mesuré et le double de la valeur δ . Nous trouvons une valeur assez stable qui est probablement la valeur physique réelle de λ_2 . Nous représentons sur la figure 5.14, les profils types de concentration, dans un plan traversant plusieurs instabilités secondaires, qui montrent pourquoi l'épaisseur de l'interface s'ajoute à l'espacement entre deux branches.

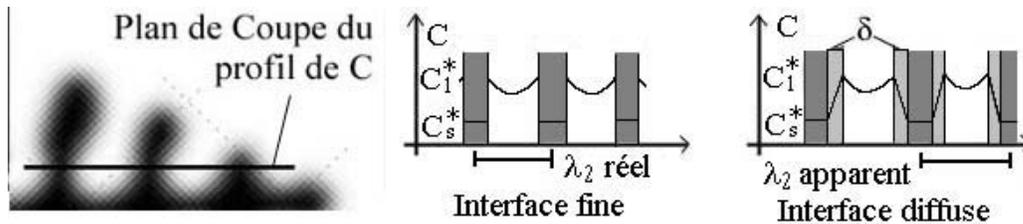


FIG. 5.14: Profil de concentration, dans un plan coupant les instabilités secondaires, parallèlement à l'axe primaire. Sur l'image de gauche, l'interface est supposée infiniment fine. Sur l'image de droite, elle a une épaisseur δ : $\lambda_{2\text{-apparent}} = \lambda_{2\text{-reel}} + 2\delta$

En conclusion de l'étude sur l'influence du paramètre δ nous avons montré que la forme des instabilités dépendait peu de ce paramètre. La seule influence qui a été trouvée porte sur l'espacement des branches secondaires. Les mesures réalisées sur nos résultats de calculs semble montrer que celui-ci est surestimé de 2δ .

5.5.2 Calcul de solidification dirigée

Afin de poursuivre l'étude du modèle de champ de phase, nous avons entrepris la simulation de la déstabilisation d'un front plan lors de la solidification dirigée. Ce régime se caractérise par l'existence d'un gradient de température allant de la phase solide vers la phase liquide [86]. Pour cette raison, le champ de température a un effet stabilisant sur l'interface, alors que les concentrations ont un effet déstabilisant. Pour réaliser ces simulations, une condition de flux thermique est imposée sur l'une des parois du volume "expérimental". Le champ de phase est initialisé par un front solide du côté de la paroi froide. Nous représentons dans le tableau 5.6, l'ensemble des propriétés physiques et des conditions aux limites retenues pour les simulations.

Les résultats des simulations sont présentés à trois instants, pour suivre l'évolution de la croissance du solide. Nous remarquons que les tailles caractéristiques des structures (de l'ordre du mm) sont supérieures à celles des structures lors de la croissance d'un germe (de l'ordre de la centaine de μm). Les temps caractéristiques de solidification sont aussi supérieurs pour ce processus (le temps caractéristique est de l'ordre de la s au lieu de la ms). Sur la figure 5.15, le champ de phase est représenté à trois instants successifs. Nous observons, dans les premiers instants, la déstabilisation du front avec deux instabilités, quasiment symétriques. Ces dernières progressent et le champ de phase devient dissymétrique, avec l'instabilité supérieure

Γ	$10^{-6}m.K$	Domaine	$750\mu m \times 250\mu m$	α	$1,9.10^{-7}m^2.s^{-1}$
Γ^*	$10^{-4}m.K$	Nb. mailles	75×25	L	$3,34.10^5 J.kg^{-1}$
\mathcal{F}	$5000W.m^{-2}$	δ	$3.10^{-5}m$	C_p	$4185J.K^{-1}.kg^{-1}$
T_m	$273,15K$	m_ℓ	$-162K$	D_ℓ	$1,8.10^{-9}m^2.s^{-1}$
T_{eut}	$200K$	k	$0,36$	D_s	$1.10^{-13}m^2.s^{-1}$
dt	$10^{-5}s$	μ_ϕ	$10^{-2}m.K^{-1}.s^{-1}$		

TAB. 5.6: Jeu de donné correspondant au calcul de solidification dirigée.

plus longue que celle du dessous. En fin de processus, la branche supérieure s'est développée devant la branche inférieure, bloquant sa progression.

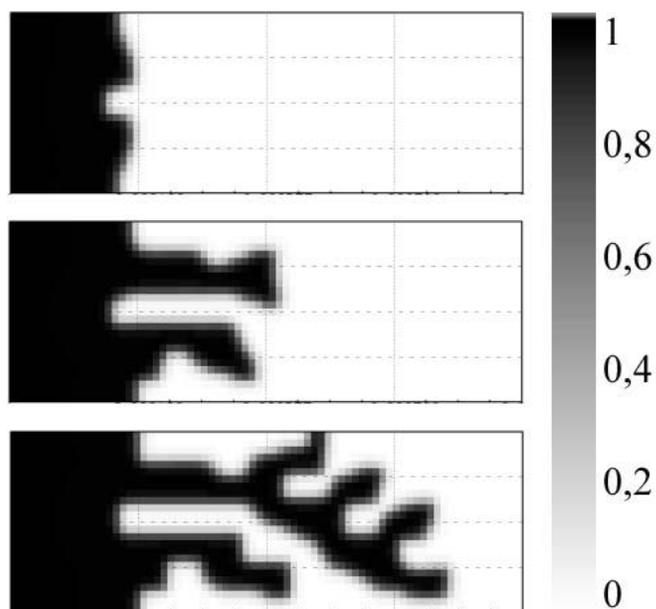


FIG. 5.15: Calcul de solidification dirigée : Champ de phase aux instants $t = 15s$, $t = 22,5s$ et $t = 30s$ (de haut en bas)

Le champ de concentration est représenté pour ces mêmes instants sur la figure 5.16. Conformément à ce qui est attendu, un liquide enrichi en soluté se trouve dans la zone diphasique. L'ordre de grandeur du rapport entre les concentrations de chaque phase est proche du coefficient de partition du diagramme de phase.

Il est intéressant de visualiser le champ de surfusion dans ces structures car il représente le moteur de la solidification. Ce champ est présenté sur la figure 5.17. Nous remarquons que la surfusion est nulle dans la zone diphasique, ce qui justifie le fait que le liquide piégé ne puisse pas solidifier. Au contraire, dans le liquide pur, l'écart à l'équilibre est positif, et d'autant plus fort que l'on s'éloigne du front solide. Il est important de noter que l'écart à l'équilibre atteint des valeurs de l'ordre de $10K$, ce qui est assez important. La surfusion dans le liquide est la grandeur provoquant la nucléation et la croissance de cristaux. On note sur ces simulations que, contrairement à ce que l'on peut croire intuitivement, les zones propices à la nucléation sont

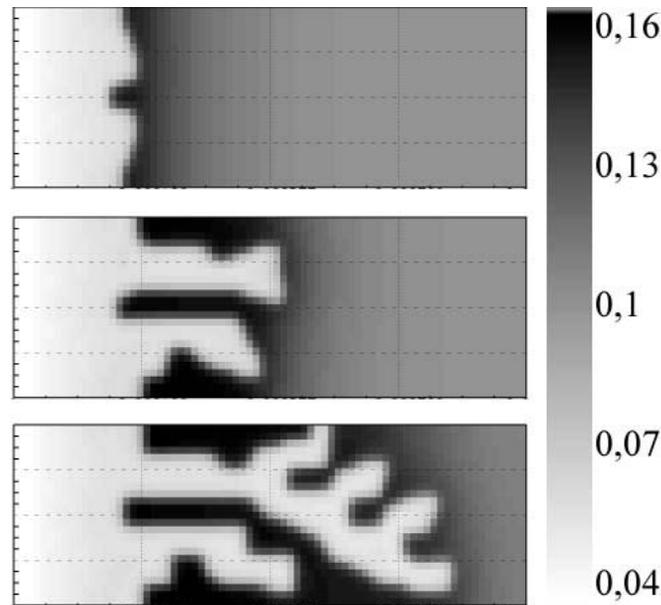


FIG. 5.16: Calcul de solidification dirigée : Champ de concentration aux instants $t = 15s$, $t = 22,5s$ et $t = 30s$ (de haut en bas)

situées relativement loin de la pointe de la zone diphasique.

5.6 Conclusion de l'étude

Le modèle de champ de phase présente la particularité de ne pas être basé sur le principe de minimisation de l'énergie libre totale du système [13, 23]. Cela rend le modèle plus intuitif, et ne nécessite pas de construire une fonction analytique, difficile à construire, qui joue le rôle d'énergie libre volumique [177, 82, 158, 3, 98, 151]. En contrepartie, des hypothèses fortes sont faites, comme l'introduction d'un paramètre de mobilité ou le choix d'un profil du champ de phase à la traversée de l'interface [13, 23]. Ces choix, décrits dans la partie 5.1 induisent des critères contraignants sur l'épaisseur de l'interface δ (critère 5.20) et la mobilité μ_ϕ (critère 5.21) pour assurer la validité des résultats. L'importance de ces paramètres a été mise en évidence sur quelques calculs en une dimension dans la partie 5.3. Le respect de ces critères limite les calculs à simuler la croissance de petits cristaux sur de courtes échelles de temps.

Nous avons proposé dans la partie 5.4.2 une modification en introduisant un terme dépendant d'un nouveau paramètre Γ^* qui pilote la cinétique de retour du champ de phase vers le profil d'équilibre de l'interface. Ce nouveau terme permet de s'affranchir de la contrainte (5.20) et donne une plus grande liberté de choix des paramètres.

Les résultats en 2D que nous avons obtenus ont été présentés dans la partie 5.5. Nous avons calculé la croissance de d'un germe sphérique dans un liquide en surfusion, et nous avons pu observer la déstabilisation d'un front lors de la solidification dirigée.

L'influence sur les résultats de certains paramètres du modèle a été étudiée dans la partie 5.5.1. Une dépendance à δ a été observée, mais nous avons pu montrer qu'elle porte sur un

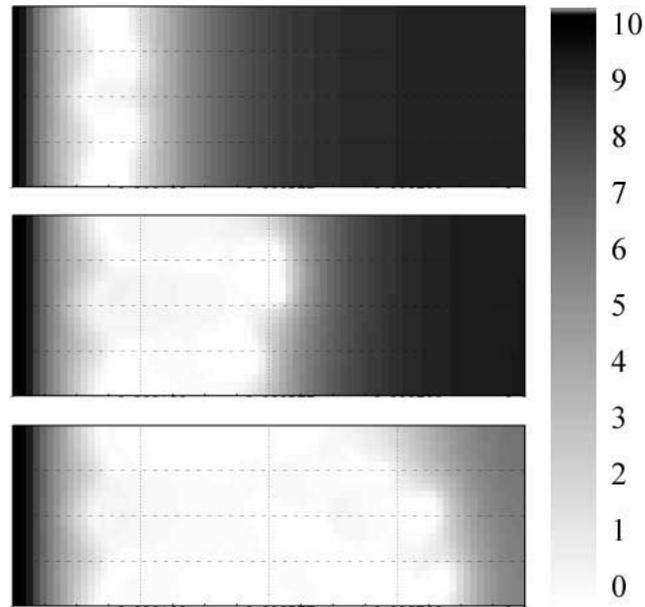


FIG. 5.17: Calcul de solidification dirigée : Champ de surfusion aux instants $t = 15s$, $t = 22,5s$ et $t = 30s$ (de haut en bas)

nombre limité de paramètres morphologiques et qu'elle diminue avec δ . Une interprétation des résultats du modèle est donc possible.

L'influence du paramètre Γ^* n'a pas été réalisée, et elle doit être faite pour confirmer ces premiers résultats et passer à une validation quantitative sur un cas-test réel.

Chapitre 6

Conclusion

Le phénomène de solidification des mélanges binaires est d'une grande complexité, et a donné lieu à de nombreux travaux de modélisation pour améliorer sa compréhension. La difficulté pour le modélisateur est de tenir compte : du couplage entre les phénomènes, des différentes échelles caractéristiques entrant en jeu et de l'existence des régimes de solidification colonnaire et équiaxe. Lors de cette thèse des approches ont été proposées pour contribuer à l'amélioration des modèles numériques. La particularité de notre démarche, réside dans une approche à deux échelles différentes : une locale, qui correspond à la croissance d'un cristal dendritique colonnaire ou équiaxe et une approche macroscopique, qui s'intéresse aux phénomènes à large échelle qui incluent une grande population de cristaux. Les résultats obtenus par la première approche sont utilisés dans les modèles globaux grâce à une méthode de changement d'échelle : la prise de moyenne volumique. Les améliorations que nous avons proposées portent sur plusieurs points :

Lors de cette thèse, le travail de Bousquet-Mélou [24] a été poursuivi. Alors que les premiers modèles, basés sur des approches empiriques, manquaient de rigueur dans les développements, il a apporté une amélioration pour la modélisation de la solidification colonnaire, en appliquant la méthode de prise de moyenne volumique des équations de conservation locales. Celui-ci a pu montrer l'existence de termes jusqu'alors ignorés et quantifiant les effets des variations continues de propriétés macroscopiques (*hétérogénéités évolutives*). Par ailleurs, il a proposé des problèmes de fermeture qui se résolvent sur des cellules périodiques de zones interdendritiques. Ces derniers ont été résolus sur des structures réelles digitalisées, par Goyeau & al. [60] pour exprimer la perméabilité, par Neculae & al. [106] pour la dispersion passive, et Bousquet-Mélou & al. [26] pour la dispersion active.

Nous avons validé ce modèle en réalisant des calculs sur de nombreux cas-tests trouvés dans la bibliographie et présentés au chapitre 2.3 :

- 2 expériences de mélanges Plomb-Etain (l'un contenant 48% en masse de Plomb, l'autre 5% en masse d'étain).
- Une expérience avec un mélange Etain-Bismuth (contenant 10% en masse d'étain).
- Un cas-test purement numérique [169], avec un sel binaire NH_4ClH_2O contenant 10% en masse de sel.

-
- Un second cas-test numérique [176] consistant en l'étude de la solidification d'un alliage $Al - Cu$ contenant 4% en masse de cuivre.

Pour tous ces cas, nous avons obtenu de bons résultats qualitatifs, et un bon accord avec les publications auxquelles nous nous sommes comparés.

Ces cas-tests ont été utilisés pour évaluer l'influence des termes non intuitifs dont Bousquet-Mélou a montré l'existence. Leur ordre de grandeur a été calculé sur la base des résultats numériques, sans les implémenter dans le code de calcul. Nous avons montré qu'ils avaient la plus grande importance en pointe de dendrite, dans les endroits présentant les plus fortes *hétérogénéités évolutives*. Nous n'avons pas trouvé de cas pour lequel les termes présentent une influence significative sur les résultats. C'est pourquoi il n'a pas été entrepris de les implémenter dans le code de calcul, mais il n'est pas exclu que sur d'autres cas, leur importance soit prépondérante.

Dans un deuxième temps, au chapitre 3, nous avons développé un modèle macroscopique de solidification équiaxe de mélanges binaires avec la méthode de prise de moyenne volumique. Nous avons rigoureusement appliqué les théorèmes de prise de moyenne volumique pour le cas des phases solides dispersées. La difficulté réside dans le fait que les cristaux peuvent avoir une agitation cinétique, ce qui complique l'application de la technique classique de fermeture. Nous avons proposé une méthode, inspirée de la théorie cinétique des milieux granulaires, pour s'affranchir de la difficulté : Nous définissons un champ qui quantifie l'énergie cinétique d'agitation des cristaux et nous en développons une équation de conservation. Ce champ est utilisé pour fermer les termes non intuitifs qui dépendent de la fluctuation des vitesses des cristaux. Les autres termes sont fermés en posant des problèmes de fermeture, qui sont résolus en supposant l'agitation des cristaux nulle.

Nous avons dans un premier temps testé le modèle d'écoulements diphasiques en calculant un cas-test de sédimentation. Nous avons pu retrouver de bons résultats qualitatifs en terme de vitesse de sédimentation, et de forme des isovaleurs de fraction volumique solide. Le modèle a ensuite été utilisé pour simuler deux cas-tests de solidification équiaxe, et a donné des résultats satisfaisants :

- Une expérience de solidification d'un sel binaire NH_4ClH_2O .
- Un cas-test purement numérique, correspondant à la solidification d'un alliage $Al(4\%) - Cu$.

Nous n'avons pas réalisé de calcul prenant en compte l'agitation cinétique des cristaux. Il serait intéressant de faire cela afin de quantifier l'importance de ce type de transport, pour les structures équiaxes.

Coupler les deux régimes de solidification, et prévoir la transition de l'un vers l'autre est un sujet de recherche majeur avec de gros enjeux industriels. Cet aspect a été rarement abordé, car il est difficile de simuler la croissance colonnaire, tout en modélisant la surfusion (responsable de la transition) en aval de la zone inter-dendritique. Le modèle colonnaire, dans sa version initiale ne permettait pas cela et nous avons proposé au chapitre 4 une modification : Un champ quantifiant la densité d'aire interfaciale est introduit, et les coefficients d'échange

d'espèce en dépendent proportionnellement. Une équation d'évolution de ce nouveau champ est écrite, en tenant compte de la cinétique d'avancée du front dendritique. Le modèle a montré de bons résultats qualitatifs, pour simuler la surfusion, et le couplage entre les deux processus de solidification. Nous manquons à ce jour d'un vrai cas-test qui permettent une comparaison quantitative, et montre que le choix des paramètres utilisés pour représenter la cinétique de croissance des dendrites est judicieux.

Pour la résolution des problèmes de fermeture sur des cellules périodiques représentatives de zones interdendritiques, il est intéressant de disposer d'un outil de simulation des plus petites structures. Nous avons utilisé un modèle de croissance de cristaux dendritiques, avec une méthode de champ de phase [13, 23]. Nous avons montré sa capacité à simuler les phénomènes physiques intervenant dans le processus de croissance de dendrites. Ainsi, nous avons pu simuler au chapitre 5 la croissance de telles structures, pour les processus de croissance colonnaire et équiaxe. Les formes des cristaux obtenus sont très cohérentes par rapport aux images de dendrites qui peuvent être observées. Par une étude numérique de l'influence des paramètres de modèle, nous avons pu observer que le modèle présentait une dépendance assez sensible au paramètre δ quantifiant l'épaisseur d'interface. Des modifications de ce paramètre ne modifient pas la vitesse de croissance des cristaux ni l'épaisseur de la branche primaire, mais nous avons observé une influence sur l'espacement des branches secondaires. Ces calculs ont montré que l'erreur était proportionnelle à δ , ce qui pousse à choisir ce paramètre petit devant les tailles caractéristiques des structures. Un autre paramètre du modèle, quantifiant la cinétique de retour vers le profil d'équilibre de l'interface a été introduit, et une étude de l'influence de ce coefficient sur les résultats est nécessaire, mais n'a pas été encore réalisée. Enfin, une validation quantitative visant à se confronter à un cas-test précis est nécessaire pour montrer sa capacité à simuler des structures réelles.

Pour conclure, nous avons développé une approche complète, permettant de modéliser la solidification des mélanges binaires. En travaillant avec deux modèles, nous pouvons tenir compte de toutes les échelles caractéristiques. Grâce à l'algorithme de résolution, nous pouvons intégrer au mieux le couplage entre les phénomènes de transferts. Enfin, nous avons proposé une technique pour coupler les deux processus de croissance et prévoir la transition de l'un vers l'autre. En l'état actuel des choses, des premières études peuvent être réalisées, pour des applications au corium en fond de cuve. L'annexe I montre une application du modèle de solidification colonnaire pour une expérience du projet Rasplav.

A l'avenir, pour améliorer la représentation du corium en fond de cuve, certains points devront être améliorés :

- Il sera nécessaire d'étendre les modèles aux cas des mélanges ternaires et multiconstituants. Ce travail sera réalisé à partir d'octobre 2005 dans le cadre d'une nouvelle thèse financée par l'IRSN.
- Les régimes d'écoulements dans les bains de corium présentent des nombres de Rayleigh très importants, et nécessitent l'utilisation de modèles de turbulence. A notre connaissance, aucune étude sur la solidification des mélanges n'a tenu compte de l'éventuelle présence d'écoulements turbulents. L'approche que nous avons adoptée pour la modélisation de la phase équiaxe, avec

l'introduction d'une agitation cinétique des cristaux sera propice au couplage avec un modèle de turbulence.

- La réalisation de calculs fiables nécessite la connaissance des propriétés physiques et des diagrammes d'équilibre des matériaux, qui sont à ce jour peu connus.

Le modèle final sera alors suffisamment fin pour simuler des situations représentatives de corium en fond de cuve. Il sera possible de l'utiliser comme un modèle indépendant pour trouver des corrélations de transferts de chaleur sur la cuve, utilisables dans les codes de calculs intégraux. Il pourra éventuellement être directement implémenté dans les codes de calculs, si son coût en temps n'est pas trop pénalisant.

Annexe A

Techniques de changement d'échelle dans les milieux diphasiques

A.1 De nombreuses techniques de changement d'échelle

A.1.1 Méthodes d'homogénéisation

L'homogénéisation périodique suppose que le milieu poreux présente une périodicité spatiale [35]. Un paramètre adimensionné, ε , rapport de la taille caractéristique du pore sur la taille macroscopique du domaine est introduit. Les équations locales sont vérifiées et résolues sur une cellule unitaire périodique avec des conditions de périodicité. Le problème macroscopique, et les paramètres macroscopiques de transport, sont obtenus en faisant tendre ε vers 0 [70, 7]. La méthode a été utilisée pour les écoulements mono et diphasiques, notamment pour obtenir des lois de Darcy, ainsi que pour des milieux poreux avec deux niveaux de porosité.

L'homogénéisation stochastique suppose que le milieu n'est pas périodique spatialement, mais statistiquement (la probabilité d'avoir une certaine structure est la même partout). C'est une méthode statistique de dérivation des équations macroscopiques, qui sont obtenues en prenant une moyenne d'ensemble dans le milieu poreux. Les équations de conservation représentent donc une moyenne des équations locales sur un espace de probabilité [166]. Des problèmes de fermeture, portant sur les propriétés de transport macroscopiques, sont introduits, et résolus, de la même façon que pour l'homogénéisation périodique.

A.1.2 Autres méthodes statistiques

La Méthode des moments [35, 27] fait intervenir une densité de présence des particules $P(X(t), t, X_0)$: Probabilité de rencontrer en X à l'instant t , une particule se trouvant en X_0 initialement. Une équation de transport sur cette densité de probabilité de présence doit être écrite et résolue.

Les méthodes d'intégrales spectrales consistent à écrire une équation de transport sur les transformées de Fourier ou Green (par exemple) des champs dans les milieux présentant

une périodicité statistique. Ces méthodes [35] ont été appliquées en premier dans le contexte de la modélisation de la turbulence [93, 122] puis de l'hydrologie [53].

A.2 La méthode de prise de moyenne volumique

Nous parlons de la prise de moyenne volumique, avec des problèmes de fermeture résolus sur des cellules représentatives [65, 31, 132, 133, 134, 128, 183]. Le principe de la méthode est présenté sur la figure A.1.

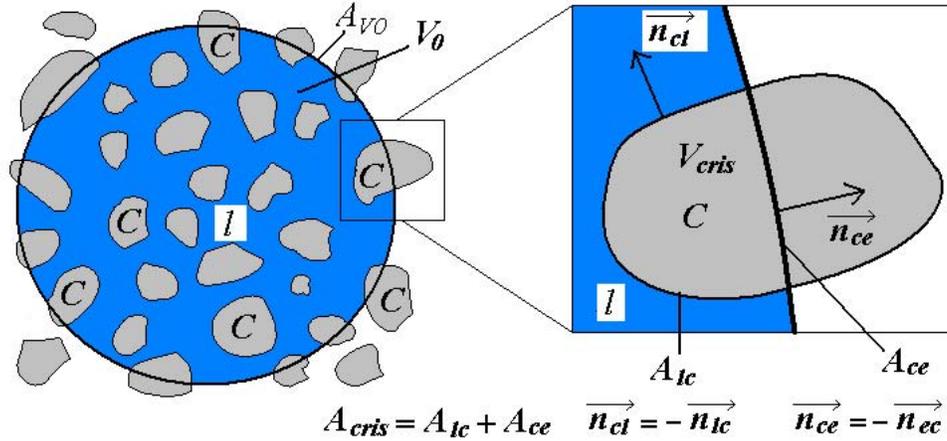


FIG. A.1: La prise de moyenne volumique sur un Volume Élémentaire Représentatif (V_0);
Principales notations

A.2.1 Hypothèses

Le milieu poreux est supposé périodique et nous définissons un Volume Élémentaire Représentatif (VER), que nous noterons V_0 pour le reste du document (voir figure A.1). Considérons une grandeur physique X , définie dans les phases ℓ et c , de sorte que :

$$X = \begin{cases} X_\ell & \text{dans la phase } \ell \\ X_c & \text{dans la phase } c \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

Nous pouvons moyenner la grandeur X sur V_0 dans chacune des phases. Deux types de moyennes peuvent être considérées, les moyennes intrinsèques de phases [132, 133, 183] :

$$\langle X_\ell \rangle^\ell = \frac{1}{V_\ell} \int_{V_\ell} X_\ell dV \quad \langle X_c \rangle^c = \frac{1}{V_c} \int_{V_c} X_c dV \quad (\text{A.2})$$

et la moyenne volumique de phase [132, 133, 183] :

$$\langle X_\ell \rangle = \frac{1}{V_0} \int_{V_\ell} X_\ell dV \quad \langle X_c \rangle = \frac{1}{V_0} \int_{V_c} X_c dV \quad (\text{A.3})$$

Les deux types de moyennes définies par les équations (A.2) et (A.4) sont reliés par la fraction volumique de phase :

$$\langle X_\ell \rangle = \varepsilon_\ell \langle X_\ell \rangle^\ell \quad \langle X_c \rangle = \varepsilon_s \langle X_c \rangle^s \quad (\text{A.4})$$

Par ailleurs, la moyenne intrinsèque étant différente de la valeur locale du champ, nous pouvons définir la fluctuation d'un champ, comme la différence entre sa valeur locale et sa moyenne intrinsèque :

$$X_\ell = \chi_\ell \langle X_\ell \rangle^\ell + \widetilde{X}_\ell \quad X_c = \chi_c \langle X_c \rangle^s + \widetilde{X}_c \quad (\text{A.5})$$

On appelle décomposition de Gray [65], le fait de décomposer un champ en sa partie moyenne et sa partie fluctuante (A.5).

A.2.2 Théorèmes

Dans l'optique du développement d'un modèle de transport macroscopique dans un milieu poreux, les théorèmes de permutation de prise de moyenne avec les dérivées temporelle et spatiale sont les suivants [102, 183] :

$$\left\langle \frac{\partial X_\ell}{\partial t} \right\rangle = \frac{\partial \langle X_\ell \rangle}{\partial t} - \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \vec{n}_{\ell c} \cdot \vec{w}_{\ell c} X_\ell dA \quad (\text{A.6})$$

$$\left\langle \frac{\partial X_\ell}{\partial x} \right\rangle = \frac{\partial \langle X_\ell \rangle}{\partial x} + \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} (\vec{n}_{\ell c} \cdot \vec{x}) X_\ell dA \quad (\text{A.7})$$

A.2.3 Contraintes d'échelle

Dans un milieu diphasique, la séparation des échelles de longueurs impose que la taille L_D du milieu soit très supérieure à la taille des plus petites structures l_ε :

$$l_\varepsilon \ll L_D \quad (\text{A.8})$$

La prise de moyenne, sur un Volume Élémentaire Représentatif V_0 , est possible si sa dimension R_0 vérifie :

$$l_\varepsilon \ll R_0 \ll L_D \quad (\text{A.9})$$

Si la contrainte (A.9) est vérifiée Quintard & Whitaker [133] et Goyeau & al. [59, 60] ont montré la validité des approximations suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \vec{n}_{\ell c} \cdot \nabla \langle X_\ell \rangle^\ell dA &= -\nabla \varepsilon_\ell \cdot \nabla \langle X_\ell \rangle^\ell \\ \frac{1}{V_0} \int_{A_{lc}} \vec{n}_{\ell c} \langle X_\ell \rangle^\ell dA &= -\nabla \varepsilon_\ell \langle X_\ell \rangle^\ell \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Les relations (A.10) sont vérifiées dans les milieux poreux homogènes [31]. Dans le cas des milieux poreux présentant des variations continues de porosité (hétérogénéités évolutives), il

semble [19] que les approximations (A.10) restent vraies pourvu que les variations soient modérées et la contrainte $l_\varepsilon < R_0 < L_D$ vérifiée. Benihaddadene [19] a montré que cette dernière contrainte restait vraie dans le cas de zones dendritiques.

Dans le cas de fortes hétérogénéités évolutives, nous n'avons pas la garantie que les relations (A.10) soient exactes. Une alternative est de construire un modèle à deux domaines [112, 113, 114], pour traiter les zones à forts gradients de porosité. Dans une telle approche, les équations macroscopiques sont écrites sur deux domaines différents, et des relations de saut relient les deux domaines.

A.2.4 Transport convectif

La prise de moyenne des équations de conservation microscopiques fait apparaître dans les phases liquide et solide des termes prenant la forme :

$$\varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell X_\ell \rangle^\ell \text{ et } \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_c X_c \rangle^c \quad (\text{A.11})$$

Carbonell & Whitaker [31] ont montré dans le contexte des écoulements en milieux poreux, que dans la phase liquide, le terme (A.11) se décompose de la façon suivante :

$$\varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell X_\ell \rangle^\ell = \varepsilon_\ell \langle \vec{V}_\ell \rangle^\ell \langle X_\ell \rangle^\ell + \varepsilon_\ell \langle \widetilde{\vec{V}}_\ell \widetilde{X}_\ell \rangle^\ell \quad (\text{A.12})$$

Dans le cadre de la contrainte :

$$\left(\frac{R_0}{L_D} \right)^2 \ll \frac{l_\varepsilon}{L_D} \quad (\text{A.13})$$

Le deuxième terme du membre de droite de (A.12), représente le transport des fluctuations de X_ℓ par l'écoulement microscopique, ou transport par dispersion. La contrainte (A.13) est vérifiée dans le cas des milieux poreux homogènes [31], et Benihaddadene [19] a montré dans le cas de zones dendritiques colonnaires que l'approximation (A.12), reste valable dans le cadre de la contrainte :

$$\left(\frac{R_0}{L_D} \right)^2 < \frac{l_\varepsilon}{L_D} \quad (\text{A.14})$$

La contrainte (A.14), que l'on peut aussi écrire $\frac{R_0}{L_D} < \frac{l_\varepsilon}{R_0}$, donne une borne inférieure limite des tailles caractéristiques des plus petites structures.

Dans le cas de la solidification équiaxe, nous aurons un écoulement diphasique présentant une phase solide dispersée. La taille des grains varie de $10^{-8}m$ lors de la germination à des tailles de l'ordre de $10^{-4}m$ en fin de solidification. Les densités volumiques de cristaux sont de l'ordre de $10^9 m^{-3}$, correspondant à $R_0 = 10^{-3}m$. Si des bains de taille $10^{-1}m$ sont considérés, la dimension minimale des structures est $l_\varepsilon > \frac{(10^{-3})^2}{10^{-1}} = 10^{-5}m$ et la contrainte (A.14) est rarement vérifiée.

A.2.5 Transport convectif dans la phase solide

Nous allons proposer une modification de la relation (A.12) pour modéliser les situations où la relation (A.14) n'est pas vérifiée dans la phase solide. Introduisons la décomposition de Gray (A.5) dans le terme (A.11) :

$$\varepsilon_c \langle \vec{V}_c X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c = \varepsilon_c \left(\langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}}^c + \widetilde{\vec{V}}_c \right) \left(\langle X_c \rangle_{\vec{y}}^c + \widetilde{X}_c \right)_{\vec{y}_0}^c \quad (\text{A.15})$$

Dans l'équation (A.15), la moyenne est réalisée en \vec{y}_0 , alors que \vec{y} désigne l'ensemble des positions à l'intérieur de V_0 . Nous proposons de prendre un développement limité à l'ordre 1 de $\langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}}^c$ et $\langle X_c \rangle_{\vec{y}}^c$ pour d'améliorer la précision de la relation (A.12) :

$$\langle X_c \rangle_{\vec{y}}^c = \langle X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c + (\nabla X_c)_{\vec{y}_0} \cdot (\vec{y} - \vec{y}_0) \quad (\text{A.16})$$

En intégrant les relations (A.16) dans l'équation (A.15), et en ne conservant que les termes du premier ordre :

$$\begin{aligned} \varepsilon_c \langle \vec{V}_c X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c &= \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \langle X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c + \varepsilon_c \langle \widetilde{\vec{V}}_c \widetilde{X}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \\ &+ \varepsilon_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \cdot \langle (\vec{y} - \vec{y}_0) \widetilde{X}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c + \varepsilon_c \nabla \langle X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \cdot \langle \widetilde{\vec{V}}_c (\vec{y} - \vec{y}_0) \rangle_{\vec{y}_0}^c \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Nous retrouvons dans la relation (A.17), les termes de l'équation (A.12) : Le transport convectif moyen $\langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \langle X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c$ et le terme de dispersion $\langle \widetilde{\vec{V}}_c \widetilde{X}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c$. Deux nouveaux termes interviennent :

$$\varepsilon_c \nabla \langle \vec{V}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \cdot \langle (\vec{y} - \vec{y}_0) \widetilde{X}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \quad (\text{A.18})$$

$$\varepsilon_c \nabla \langle X_c \rangle_{\vec{y}_0}^c \cdot \langle \widetilde{\vec{V}}_c (\vec{y} - \vec{y}_0) \rangle_{\vec{y}_0}^c \quad (\text{A.19})$$

Dans le terme (A.18), on réalise une moyenne du produit de deux termes qui ont chacun une moyenne nulle. Etant donnée que \vec{y} et \widetilde{X}_c ne sont corrélés que si $X_c = \vec{V}_c$ (car les positions des cristaux dépendent de \vec{V}_c). Nous avons :

$$\varepsilon_c \langle (\vec{y} - \vec{y}_0) \widetilde{X}_c \rangle_{\vec{y}_0}^c = 0 \text{ si } X_c \neq \vec{V}_c \quad (\text{A.20})$$

Dans le cas $X_c = \vec{V}_c$, le terme (A.18) est égal à (A.19).

Annexe B

Prise de moyenne temporelle et combinaison des opérateurs de moyenne

Les phénomènes présentant d'importantes fluctuations aléatoires sur de courtes échelles de temps \tilde{t} , sont intégrés dans les modèles macroscopiques par une prise de moyenne temporelle. Des exemples d'applications peuvent être rencontrés dans l'étude des écoulements multiphasiques [37, 32] ou l'étude de la turbulence [36, 93, 122].

B.1 Principe

Considérons un milieu diphasique dont l'une de ses phases est notée c (l'autre phase est notée ℓ), avec X_c une grandeur physique sur cette phase (X_c n'est pas définie sur la phase ℓ). Pendant un intervalle de temps $[T]$ d'amplitude T , notons $[T_c]$, l'ensemble des sous-intervalles durant lesquels la phase c est présente et T_c , la durée cumulée de présence. Nous pouvons définir la moyenne temporelle de la grandeur X_c [37, 32] :

$$\overline{X_c}(t) = \frac{1}{T} \int_{[T_c]} X_c dt \quad (\text{B.1})$$

De même que pour la prise de moyenne volumique, une moyenne intrinsèque peut-être définie [37, 32] :

$$\widehat{X_c}(t) = \frac{1}{T_c} \int_{[T_c]} X_c dt \quad (\text{B.2})$$

Le taux de présence de la phase c est [37, 32] :

$$x_c = \frac{T_c}{T} \quad (\text{B.3})$$

La grandeur (B.3) est le coefficient de proportionnalité entre les opérateurs de prise de moyenne [37, 32] :

$$\overline{X_c} = x_c \widehat{X_c} \quad (\text{B.4})$$

Le principe de la méthode est représenté sur les figures B.1 et B.2.

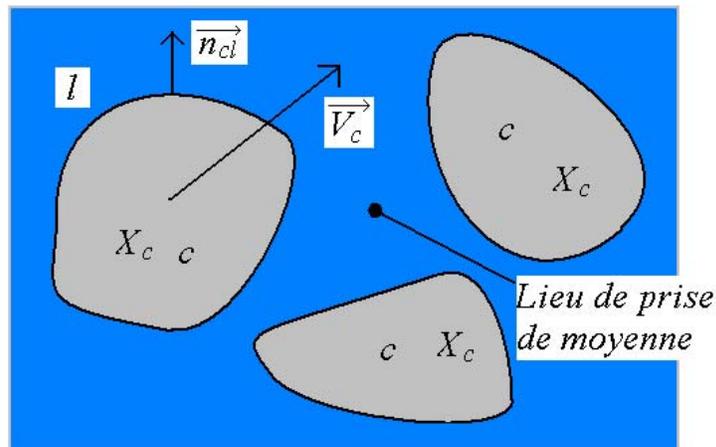


FIG. B.1: La moyenne temporelle dans un milieu diphasique

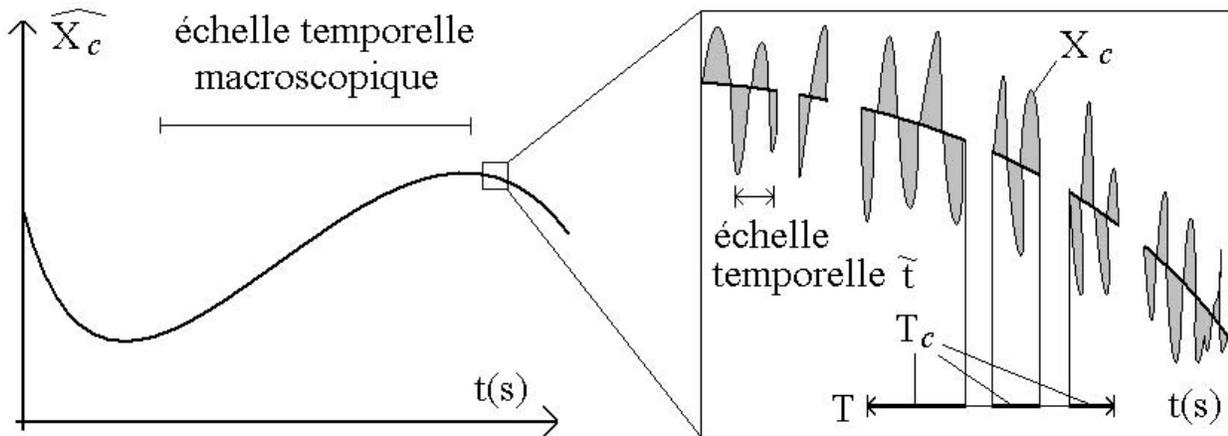


FIG. B.2: La prise de moyenne temporelle sur un segment $[T]$ d'un signal X_c ; Les différentes échelles de temps

Des conditions de séparation des échelles temporelles sont requises pour que la méthode soit applicable [37, 32].

- L'amplitude de l'intervalle temporel de prise de moyenne T doit être très supérieure devant la durée caractéristique \tilde{t} des oscillations du signal : $\tilde{t} \ll T$.

- L'échelle temporelle des phénomènes macroscopiques est très supérieure à la valeur de T , afin de pouvoir suivre les évolutions macroscopiques.

B.2 Théorèmes de permutation

Pour la prise de moyenne temporelle des équations de conservation, on est amené à permuter la prise de moyenne avec les opérateurs de dérivation. Ces opérations présentent des analogies avec la prise de moyenne volumique [37, 32].

Le théorème de Leibniz permet la permutation de la prise de moyenne avec la dérivée temporelle :

$$\int_{[T]} \frac{\partial X_c}{\partial t} dt = \frac{\partial}{\partial t} \int_{[T]} X_c dt - \sum_{[T_c]} (X(T_c^+) - X(T_c^-)) \quad (\text{B.5})$$

Nous avons noté T_c^+ la borne supérieure d'un intervalle T_c et T_c^- la borne inférieure. Ces instants marquent le passage de l'interface sur le lieu de prise de moyenne.

Le théorème de Gauss permet la permutation de la prise de moyenne avec la dérivée spatiale :

$$\int_{[T]} \frac{\partial X_c}{\partial x} dt = \frac{\partial}{\partial t} \int_{[T]} X_c dt + \sum_{[T_c]} \frac{(n_{cl} \cdot \vec{x}) X(T_c^{+-})}{|\vec{V}_c \cdot \vec{n}_{cl}|} \quad (\text{B.6})$$

La notation T_c^{+-} désigne l'ensemble des instants de passage de l'interface sur le lieu de prise de moyenne.

B.3 Combinaison des deux opérateurs de moyenne

La permutation des opérateurs de moyenne temporelle et spatiale est possible car les intégrations s'effectuent sur des intervalles de temps, et des volumes de dimensions finies. Etant donnée que les champs physiques qui interviennent dans le problème que nous étudions, sont bornés et continus par morceau, la permutation des intégrales est possible [37, 32, 93, 36, 122] :

$$\overline{\varepsilon_c \langle X_c \rangle^c} = \langle x_c \widehat{X}_c \rangle \quad (\text{B.7})$$

Lorsque l'intégration sur un domaine temporel est réalisée en second, les théorèmes (B.5) (B.6) se simplifient, puisque l'intégration est réalisée sur la totalité de l'intervalle $[T]$: Les sommes sur les bornes des intervalles de temps $[T_c]$ disparaissent. Ce qui permet d'écrire en utilisant les théorèmes (A.6) et (A.7) [37, 32] :

$$\overline{\left\langle \frac{\partial X_c}{\partial t} \right\rangle} = \frac{\partial \overline{\langle X_c \rangle}}{\partial t} - \frac{1}{V_0} \overline{\int_{A_{lc}} \vec{n}_{cl} \cdot \vec{w}_{lc} X_c dA} \quad (\text{B.8})$$

$$\overline{\left\langle \frac{\partial X_c}{\partial x} \right\rangle} = \frac{\partial \overline{\langle X_c \rangle}}{\partial x} + \frac{1}{V_0} \overline{\int_{A_{lc}} (\vec{n}_{cl} \cdot \vec{x}) X_c dA} \quad (\text{B.9})$$

B.4 Les implications pour notre travail de modélisation

B.4.1 Modèle colonnaire

Les phénomènes de transferts en milieux poreux [132, 131, 128] sont caractérisés par des champs présentant d'importantes fluctuations spatiales (les hétérogénéités sont à l'échelle du pore). En revanche, les évolutions temporelles présentent des évolutions sur des échelles de temps macroscopiques sans fluctuation à courtes échelles (sous réserve que les écoulements soient laminaires). Il résulte que réaliser une moyenne temporelle suite à une moyenne volumique est sans effet, et ne modifie pas le résultat [132, 131, 128].

B.4.2 Modèle équiaxe

Des phénomènes transitoires très brefs, tels que des chocs, entre particules solides dispersées peuvent être observés. Ces phénomènes ont une importance sur les transferts macroscopiques, car les échanges de quantité de mouvement sont intenses pendant les phénomènes transitoires. On observe donc des variations temporelles rapides (quelques *ms*) des champs de vitesses et des tenseurs des efforts solides. La moyenne temporelle est nécessaire pour intégrer les effets des fluctuations de \vec{V}_c et σ_c [37, 32]. Nous allons maintenant appliquer la prise de moyenne aux termes du modèle macroscopique qui dépendent de \vec{V}_c et σ_c .

B.4.3 Transport convectif dans la phase solide

Dans l'annexe A, l'équation (A.17) présente un développement des termes de convection pour la phase solide dans les situations où la contrainte d'échelle (A.14) n'est pas vérifiée. Le terme (A.20) qui apparaît dépend de \vec{V}_c et nous pensons que la moyenne temporelle est bien adaptée pour modéliser ce terme :

$$\overline{\varepsilon_c \nabla \langle X_c \rangle^c \cdot \vec{y}_0 \cdot \langle \vec{V}_c (\vec{y} - \vec{y}_0) \rangle^c} = \nabla \langle X_c \rangle^c \cdot \vec{y}_0 \cdot \overline{\varepsilon_c \langle \vec{V}_c \vec{y} \rangle^c} \quad (\text{B.10})$$

Dans (B.10), le terme $\langle \vec{V}_c \vec{y} \rangle$ n'est pas nul car \vec{V}_c et \vec{y} sont corrélés (\vec{y} représente la localisation des cristaux qui se déplacent à la vitesse \vec{V}_c). La corrélation entre ces deux grandeurs existe durant un intervalle de temps $[t_0, t_0 + T_{choc}]$ entre deux chocs consécutifs. Nous proposons donc de moyennner temporellement $\langle \vec{V}_c \vec{y} \rangle$ sur cet intervalle de temps.

Posons $\vec{V}_c = \sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c} \vec{u}$ (avec \vec{u} vecteur unitaire), il vient $\vec{y}(t) - \vec{y}(t_0) = \frac{t - t_0}{T_{choc}} \lambda_p \vec{u}$, et :

$$\langle \overline{\overline{\vec{V}_c \vec{y}}} \rangle = \left\langle \left[\frac{t - t_0}{T_{choc}} \sqrt{\langle \overline{\overline{\vec{V}_c}^2} \rangle^c \lambda_p \vec{u} \vec{u}} \right] \right\rangle = \left\langle \left[\sqrt{\langle \overline{\overline{\vec{V}_c}^2} \rangle^c \lambda_p \vec{u} \vec{u}} \frac{t - t_0}{T_{choc}} \right] \right\rangle = \sqrt{\langle \overline{\overline{\vec{V}_c}^2} \rangle^c} \frac{\varepsilon_c \lambda_p}{6} . I \quad (\text{B.11})$$

La relation (B.11) permet de modéliser le terme (B.10) par un terme de diffusion, dont le coefficient de diffusion est $\sqrt{\langle \overline{\overline{\vec{V}_c}^2} \rangle^c} \frac{\varepsilon_c \lambda_p}{6}$.

Ce résultat est conforme à la théorie cinétique des gaz parfaits ou des milieux granulaires très dilués [54].

Annexe C

Echange de quantité de mouvement à l'interface solide liquide

Un fluide en écoulement autour d'un grain solide de diamètre d exerce une force \vec{F} sur celui-ci. Celle-ci résulte tout d'abord de la viscosité du liquide : aucun glissement n'étant possible à l'interface, la vitesse solide y égale la vitesse liquide et le gradient de vitesse à l'interface crée des contraintes visqueuses. Par ailleurs un gradient de pression entre l'amont et l'aval du cristal contribue aux efforts entre les deux phases. Que le solide soit fixe ou mobile, l'échange de quantité de mouvement dépend fortement de la différence de vitesses entre les deux phases. Ainsi le nombre de Reynolds de l'écoulement liquide autour d'un grain est introduit :

$$Re = \frac{d |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell| \rho_\ell}{\mu_\ell} \quad (\text{C.1})$$

Dans les modèles macroscopiques, l'échange de quantité de mouvement entre les deux phases s'écrit :

$$M_l^d = -R(\vec{V}_\ell - \vec{V}_c) \quad (\text{C.2})$$

Toute la difficulté réside dans l'évaluation du coefficient de transfert de quantité de mouvement R dans l'équation (C.2).

C.1 Modélisation de la perméabilité

Lorsque le solide est immobile et constitue un milieu poreux, on définit un coefficient de perméabilité K . Le coefficient d'échange de quantité de mouvement est relié à la perméabilité par la relation suivante :

$$R = \frac{\varepsilon_\ell^2 \mu_\ell}{K} \quad (\text{C.3})$$

Celle-ci dépend de la structure locale du milieu poreux. Lorsque celui-ci est représenté par un réseau de cylindres, la relation de Kozeny-Carman est utilisée [10].

$$K = K_0 \frac{\varepsilon_\ell^3}{(1 - \varepsilon_\ell)^2} \quad (\text{C.4})$$

La constante $K_0 = \frac{d_m^2}{180}$, dépend d'une longueur caractéristique d_m du milieu poreux (l'espace entre deux cylindres). La validation est très bonne pour les milieux présentant une forte fraction solide ($\varepsilon_s \geq 0,3$). Elle est cependant moins précise pour les faibles fractions solides.

Cette modélisation est intéressante dans le contexte de la modélisation d'une zone interdendritique. En effet celles-ci peuvent être représentées par un assemblage de cylindres centrés parallèlement aux axes primaires ou secondaires des dendrites. Le choix de la longueur caractéristique du milieu se porte donc généralement sur l'espacement interdendritique primaire (noté λ_1) ou l'espacement secondaire (noté λ_2).

Par ailleurs,, notons le caractère anisotrope de la perméabilité d'une zone interdendritique qui dépend de l'orientation de l'écoulement liquide : suivant l'axe des dendrites ou orthogonal à cet axe. Des travaux ont proposé des relations qui en tiennent compte : Une expression anisotrope de la perméabilité a été obtenue expérimentalement par Poirier [121]. Les méthodes expérimentales sont limitées par les faibles plages de fraction solide qu'il est possible d'explorer (à ce jour : [0, 34; 0, 81]). Les travaux numériques permettent d'explorer des plages plus larges, Ganesan & al. [51] et Goyeau & al. [60] ont obtenu, en résolvant des problèmes de fermeture sur des images digitalisée de dendrites, d'autres expressions. Enfin, Schneider & Beckermann [148] ont construit un modèle anisotrope qui s'inspire des travaux expérimentaux de Poirier [121], pour les fractions solides supérieures à 0,3 et de travaux numériques pour les fractions solides inférieures à 0,3.

C.2 Modélisation de la traînée

Lorsque le solide peut se déplacer (par exemple lors de la solidification équiaxe), on parle d'efforts de traînée. Etant donnée la forme des grains (proche de la forme sphérique), il n'est pas judicieux d'utiliser les corrélations décrites à la partie précédente.

Considérons la force de traînée \vec{F} sur une particule isolée. Nous définissons alors le coefficient de traînée de la façon suivante :

$$C_D = \frac{4 |F|}{\pi d^{2\frac{1}{2}} \rho |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell|^2} \quad (\text{C.5})$$

La contribution à la variation de la vitesse du grain est donc :

$$\frac{4}{3} \pi \frac{d^3}{8} \rho_c \frac{\partial \vec{V}_c}{\partial t} = \vec{F} + \dots \quad (\text{C.6})$$

Considérons maintenant une phase solide constituée de particules dispersées et identiques, de diamètre d , et présentant une fraction volumique solide de ε_c . Ecrivons la conservation de la quantité de mouvement sur la phase solide :

$$\rho_c \varepsilon_c \frac{\partial \vec{V}_c}{\partial t} = M_i^d + \dots = -R(\vec{V}_\ell - \vec{V}_c) + \dots \quad (\text{C.7})$$

En supposant que chaque grain se comporte de la même façon, et subit la même force de traînée, remplaçons dans (C.7) les expressions (C.6) (C.5). Nous obtenons une expression du coefficient d'échange macroscopique, en fonction du coefficient de traînée qui avait été défini pour une particule :

$$R = \frac{3\varepsilon_c \rho_\ell C_D |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell|}{4d} \quad (\text{C.8})$$

C.2.1 Coefficients de traînée sur une sphère

Les premiers travaux expérimentaux ont été réalisés par Newton en 1710, qui mesura la force exercée sur une sphère de diamètre d dans un écoulement rapide de liquide à la vitesse v (cette relation semble valide pour des nombres de Reynolds compris entre 700 et 2.10^5). Il obtint :

$$F = 0,22\pi \frac{d^2}{4} \rho |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell|^2 \quad (\text{C.9})$$

Cette force en $|\vec{V}_c - \vec{V}_\ell|^2$ correspond à des forces inertielles, dues à la pression dynamique exercée par l'écoulement fluide. En utilisant la définition du coefficient de traînée (C.5), il obtint un coefficient de traînée de 0,44.

Stokes en 1850 suggéra que pour les écoulements à faible vitesse (cette relation est valable pour des nombres de Reynolds inférieurs à 1), les effets d'inertie pouvaient être négligés et la force de frottement s'écrit :

$$F = 6\pi\mu_\ell \frac{d}{2} |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell| \quad (\text{C.10})$$

Cela donne un coefficient de traînée

$$F = \frac{24\mu_\ell}{d |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell| \rho} = \frac{24}{Re} \quad (\text{C.11})$$

Les expressions C.10 et C.11 permettent de quantifier le coefficient de traînée pour une sphère dans des écoulements respectivement à faible et fort nombre de Reynolds. De nombreux autres travaux ont permis de compléter les connaissances sur la force de traînée entre une sphère et un liquide environnant infiniment étendu pour les nombres de Reynolds intermédiaires. Une synthèse est présentée par Soo [155].

C.2.2 Modélisations utilisées dans des modèles macroscopiques diphasiques

Le phénomène de sédimentation est un cas typique d'écoulement diphasique avec une phase solide dispersée. Naturellement de nombreux travaux dans ce contexte ont porté sur la détermination de coefficients de traînée.

La méthode "Multiphase particule in cell" (MP-PIC) consiste à déterminer l'écoulement d'une phase granulaire, en suivant par une méthode lagrangienne une particule donnée. Cette méthode est particulièrement avantageuse pour traiter le cas de milieux dispersés présentant

une large gamme de tailles caractéristiques. Il est en effet possible de distinguer le comportement de différentes familles de particules classées selon leur taille.

Andrew & O'Rourke [4], Patankar & Joseph [117] et Snider & al. [153] ont utilisé dans ce type d'approche, le coefficient suivant :

$$C_D = \frac{24}{Re}(\varepsilon_\ell^{-2,65} + \frac{1}{6}Re^{\frac{2}{3}}\varepsilon_\ell^{-1,78}) \quad (C.12)$$

Bergantz & Ni [22] utilisent un modèle d'écoulement diphasique macroscopique et utilisent la définition suivante pour le coefficient de traînée :

$$C_D = \left(\frac{200\varepsilon_c}{Re\varepsilon_\ell} + \frac{7}{5} \right) \quad (C.13)$$

Latsa & al. [90] ont utilisé une définition du nombre de Reynolds utilisant le coefficient de viscosité de mélange : $\mu_m = \mu_\ell \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}}\right)^{-2,5\varepsilon_{cmax}}$, (corrélation de Ishii & Zuber [77]). Le coefficient de traînée dépend de la façon suivante du nombre de Reynolds :

$$C_D = \frac{24}{Re} \left(1 + 0,1Re^{0,75}\right) \quad (C.14)$$

Enfin Gidaspow [54] a développé une expression de la traînée qui distingue les fortes fractions solides des faibles. Cette corrélation a notamment été appliquée par Laux & Ytrehus [91] dans le contexte de la modélisation de la sédimentation et Gamwo & al. [50], Limtrakul & al. [96], Balzer [8] et Huilin & al. [73, 74] dans le contexte des lits fluidisés : Pour les fractions solides supérieures à 0,2 cette corrélation est la loi de Ergun [54] :

$$C_D = \frac{7}{3} + \frac{200\varepsilon_c}{Re\varepsilon_\ell} \quad (C.15)$$

Pour les fractions solides inférieures à 0,2, la corrélation est basée sur les travaux de Wen & Yu [179]. La force de friction dépend d'une fonction $f(\varepsilon_\ell)$. Laux & Ytrehus [91] et Gamwo & al. [50] ont utilisé la fonction $f(\varepsilon_\ell) = \frac{\varepsilon_\ell^2}{1 + \varepsilon_\ell^{\frac{1}{3}}} e^{-\frac{5\varepsilon_c}{3\varepsilon_\ell}}$. Limtrakul & al. [96] ont utilisé la fonction $f(\varepsilon_\ell) = \varepsilon_\ell^{2,7}$.

Le coefficient d'échange de quantité de mouvement devient :

$$R = \frac{\mu_\ell}{d^2} \varepsilon_c \frac{3}{4} C_D Re \frac{\varepsilon_\ell}{f(\varepsilon_\ell)} \quad (C.16)$$

$$C_D = \begin{cases} \frac{24}{\varepsilon_\ell Re} \left[1 + 0,15(\varepsilon_\ell Re)^{0,687}\right] & \varepsilon_\ell Re \leq 1000 \\ 0,44 & \varepsilon_\ell Re \geq 1000 \end{cases} \quad (C.17)$$

Enfin, Huanpeng & al. [72], utilisent une combinaison linéaire de la corrélation de Ergun (C.15) et de celle de Wen & Yu (C.17), dépendant du paramètre $\phi = \arctan\left(\frac{150*1,75(0,2-\varepsilon_s)}{\pi}\right) + 0,5$

$$R = \phi R_{Ergun} + (1 - \phi) R_{W\&Yu} \quad (C.18)$$

C.2.3 Modélisations utilisées dans le cadre de la solidification équiaxe

Les premiers modèles de solidification équiaxe traitant le transport de solide sont des modèles de mélanges. Le transport convectif de la matière est modélisé par le transport du mélange solide / liquide, avec une unique vitesse ($\rho_m \vec{V}_m = \rho_c \varepsilon_c \vec{V}_c + \rho_\ell \varepsilon_\ell \vec{V}_\ell$, avec $\rho_m = \rho_c \varepsilon_c + \rho_\ell \varepsilon_\ell$) Ni & Incropera [109] et Vreeman & Incropera [171, 170] ont modélisé les échanges par un terme de la forme :

$$M_i^d = -R(\vec{V}_\ell - \vec{V}_c) = -\frac{R\rho_m}{\varepsilon_\ell \rho_\ell}(\vec{V}_m - \vec{V}_c) = \frac{3\varepsilon_s \rho_m}{4d_s \varepsilon_\ell} C_D |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell| (\vec{V}_m - \vec{V}_\ell) \quad (\text{C.19})$$

Ils utilisèrent la loi de Stokes (C.10) pour le coefficient de traînée, avec un nombre de Reynolds $Re = \frac{\rho_\ell |\vec{V}_c - \vec{V}_\ell| d_s}{\mu_m}$, défini en fonction de la viscosité de mélange : $\mu_m = (1 - \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_{sp}})^{2,5\varepsilon_{sp}} \mu_\ell$.

Les autres modèles de solidification équiaxe avec transport de phase solide traitent les deux phases séparément. Une équation de conservation est écrite pour chacune des phases, qui contient un terme commun d'échange, proportionnel à la différence entre la vitesse liquide et la vitesse solide. Ni & Beckermann [107, 108] et Beckermann & Viskanta [16] ont développé un modèle permettant de retrouver la loi de Darcy pour les faibles écoulements dans un milieu poreux.

$$C_D = \frac{24}{2Re_m C_m \varepsilon_s} \quad \varepsilon_\ell \leq 0,5$$

$$C_m = \begin{cases} 5 & \varepsilon_\ell \leq 0,5 \\ \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_\ell^3}{1 - \varepsilon_\ell} \left[\frac{1 + 4,7\varepsilon_s}{1 - 1,83\varepsilon_s} \right] & \varepsilon_\ell \geq 0,5 \end{cases} \quad (\text{C.20})$$

Wang & Beckermann [175, 176] ont utilisé un modèle développé par Wang & al. [172] et qui permet de traiter les cas à forte fraction solide (milieu compact) et les cas à faible fraction solide (régime d'écoulement libre) :

$$M_i^d = \varepsilon_\ell \beta^2 \frac{\mu_\ell}{Re} \varepsilon_\ell (\vec{V}_\ell - \vec{V}_c) \quad \text{où } \beta = \frac{\beta_d}{\left[\varepsilon_s^n + \left(\frac{\beta_d}{\beta_l} \right) \right]^{\frac{1}{2n}}}$$

$$\beta_d = \frac{3\sqrt{5}S_s}{(1 - \varepsilon_{si})^{\frac{3}{2}} \Phi_e S_e} \quad \text{avec } S_s = \frac{2}{\lambda_2}, S_e = (36\pi)^{\frac{1}{3}} n^{\frac{1}{3}} (1 - \varepsilon_\ell)^{\frac{2}{3}} \text{ et } n = 0,176 \log \beta_d + 0,275$$

$$\beta_l = \left\{ \frac{9(1 - \varepsilon_\ell) \left(2 + \frac{4}{3}(1 - \varepsilon_\ell)^5 \right)}{2 - 3(1 - \varepsilon_\ell) + 3(1 - \varepsilon_\ell)^5 - 2(1 - \varepsilon_\ell)^6} \frac{2\beta_d^2 \left(1 - \frac{\tanh \beta_d}{\beta_d} \right)}{2\beta_d^2 + 3 \left(1 - \frac{\tanh \beta_d}{\beta_d} \right)} \right\} \quad (\text{C.21})$$

Dans l'équation (C.21), ϕ_e est le coefficient de sphéricité de l'enveloppe.

Gu & Beckermann [68] ont utilisé la corrélation suivante pour le coefficient de traînée :

$$C_D = \frac{24}{Re} \left(1 + 0,15Re^{0,687} \right) \quad (\text{C.22})$$

Enfin, notons les travaux Wu & al. [186, 100] qui utilisent une relation indépendante de l'écoulement local et du nombre de Reynolds. La loi résultante distingue le régime d'écoulement libre

($\varepsilon_c \leq \varepsilon_{cmax}$) avec une loi de Kozeny-Carman, du régime aggloméré où une loi de Blake-Kozeny est choisie.

$$\begin{aligned}
 R &= 18\varepsilon_\ell^2 \frac{\mu_\ell \varepsilon_c C_D}{d^2} \text{ avec } C_D = 10 \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_\ell^3} \text{ pour } \varepsilon_c \leq \varepsilon_{cmax} \\
 R &= \varepsilon_\ell^2 \frac{\mu_\ell}{K} \text{ avec } K = K_0 \frac{\varepsilon_\ell^3}{\varepsilon_c^2} \text{ pour } \varepsilon_c \geq \varepsilon_{cmax}
 \end{aligned}
 \tag{C.23}$$

Annexe D

Echanges de quantité de mouvement au sein d'une phase dispersée

Les échanges de quantité de mouvement d'un grain vers un autre interviennent lors des contacts entre les grains : Les chocs et les frottements locaux induisent à l'échelle macroscopique des transferts de quantité de mouvement. Ces transferts de quantité de mouvement sont introduits dans les modèles d'écoulements de milieux granulaires par un terme de diffusion : $\mu_c^* \nabla^2 \vec{V}_c$. La difficulté réside dans l'expression du coefficient de diffusion μ_c .

Nous pouvons distinguer plusieurs régimes de transferts de quantité de mouvement en fonction de la structure du milieu granulaire.

- Le premier régime intervient lorsque la phase solide est très dispersée (si la taille des cristaux est très inférieure à la distance entre deux d'entre eux), les chocs sont le principal mode de transfert de quantité de mouvement. Ceux-ci sont d'autant plus fréquents que les cristaux sont gros, nombreux, et que ceux-ci possèdent une dispersion des vitesses importante.
- Le second régime débute lorsque la distance entre deux proches cristaux devient du même ordre de grandeur que leur taille caractéristique, les contacts deviennent permanents, et les transferts de quantité de mouvement sont dûs aux frottements entre deux grains proches.
- Un dernier régime résulte de l'agglomération des grains, qui ne peuvent plus se déplacer les uns par rapport aux autres. La fraction solide limite, pour laquelle l'agglomération est observable, dépend de la forme des cristaux. Dans le cas où les cristaux ont une forme sphérique, la limite est atteinte lorsqu'ils forment l'empilement le plus compact (les sphères occupent les centres de tétraèdres réguliers de côté $2d_p$). La fraction solide correspondante est : $\varepsilon_{cmax} = 0,64$. Dans la pratique, comme les cristaux ont une forme très chaotique, ceux-ci s'agglomèrent avant la fraction limite ε_{cmax} [175, 176, 18].

Une méthode pour tenir compte de l'agglomération des cristaux sans connaître a priori la limite d'agglomération est le modèle de Wang & Beckermann [175, 176, 18]. Ils expriment la condition d'agglomération, non pas en fonction de la fraction solide, mais en fonction de la fraction volumique du mélange solide / liquide interdendritique (notation ε_g). Cela quantifie la fraction volumique délimitée par l'enveloppe des cristaux, qui a une forme approximativement sphérique. Il suffit alors de vérifier la condition $\varepsilon_g \geq 0,64$, pour avoir la condition d'aggloméra-

tion. Lorsque les cristaux sont globulaires, ε_c est proche de ε_g , et l'agglomération est atteinte pour ε_{cmax} . Au contraire, lorsque les cristaux sont dendritiques, ε_c est très inférieur à ε_g , et l'agglomération intervient plus tôt.

D.1 Corrélations utilisées dans la modélisation de la solidification équiaxe

Les modèles utilisés dans le contexte de la solidification équiaxe sont tous très similaires. Ishii & Zuber [77] ont proposé une corrélation pour la viscosité de mélange solide / liquide :

$$\mu_m = \mu_\ell(1 - \varepsilon_s)^{-a} \quad (D.1)$$

Où le paramètre a est un coefficient positif ($\simeq 2, 5$).

Ni & Beckermann [107] ont réalisé un modèle avec transport des deux phases et ont introduit un coefficient de viscosité pour la phase solide. Par analogie avec la relation de Ishii & Zuber [77], ils ont proposé la corrélation suivante :

$$\mu_c = \mu_c(\varepsilon_c = 0) \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}}\right)^{-a\varepsilon_{cmax}} \quad (D.2)$$

Où ε_{cmax} est la fraction volumique de cristaux, à partir de laquelle, l'agglomération est observée.

Beckermann & Viskanta [16] ont utilisé la même corrélation D.1, en prenant le coefficient $a = 2, 5$. Ils ont utilisé le fait que $\mu_m = \varepsilon_c\mu_c + \varepsilon_\ell\mu_\ell$, pour obtenir une expression de μ_c . Cela donne :

$$\mu_c = \frac{\mu_m - \varepsilon_\ell\mu_\ell}{\varepsilon_c} = \left(\frac{\left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}}\right)^{-2,5\varepsilon_{cmax}} - 1 + \varepsilon_c}{\varepsilon_c}\right) \mu_\ell \quad (D.3)$$

La corrélation D.3 a été reprise par Ni & Incropera [109] pour un modèle à deux phases, ainsi que WU & al. [186, 100]. Enfin, Wang & Beckermann [175, 176, 18], ont utilisé une corrélation similaire, avec la particularité de remplacer ε_c par une fraction volumique ε_g , qui représente la fraction volumique du mélange solide / liquide interdendritique.

D.2 Modèles utilisés dans d'autres contextes

Dans le contexte de la sédimentation, beaucoup de modèles ne tiennent pas compte de ce mécanisme de transport de quantité de mouvement. La raison est que la sédimentation s'effectue souvent à des vitesses assez faibles, et avec une phase liquide immobile, ce qui réduit la dispersion des vitesses des grains, et limite les transferts de quantité de mouvements entre grains [153, 38]. De ce fait, le transport de quantité de mouvement par diffusion est faible.

Cependant, la sédimentation peut avoir lieu en présence de convection naturelle dans le liquide, ce qui augmente la probabilité de chocs et contacts entre particules solides, et augmente d'autant les transferts de quantité de mouvement. Latsa & al. ont utilisé la viscosité de mélange

de Ishii et Zuber [77] (équation D.1). Bergantz & Ni [22], ont utilisé la relation de Ishii & Zuber pour déduire une relation identique à (D.3) sur la viscosité solide.

Le cas des écoulements de milieux granulaires avec une forte densité de grains (tel l'écoulement de sable sur une pente) est un peu particulier. Les grains sont toujours en contact, et les transferts s'effectuent par frottement d'une particule à une autre. De tels écoulements présentent de forts transferts diffusifs, et des lois de rhéologie du milieu sont nécessaires. Des modélisations sont proposées pour de tels écoulements [146, 115].

Annexe E

Théorie cinétique des milieux granulaires

E.1 Problématique

La technique de prise de moyenne volumique des équations de conservation locales dans la phase solide a été réalisée dans la partie 3.4. Elle a fait apparaître de nombreux termes (dans les équations (3.165), (3.168), (3.169) qui dépendent de la fluctuation de la vitesse solide. Nous sommes confrontés au difficile problème de leur modélisation. La technique habituellement utilisée dans la méthode de prise de moyenne volumique (des problèmes de fermeture sont résolus sur des cellules unitaires représentatives), n'est pas applicable, car la phase solide est mobile.

Pour modéliser les écoulements diphasiques comprenant une phase solide dispersée, des méthodes statistiques, comme la théorie cinétique des milieux granulaires ont été développées [91, 146, 73, 74, 72], par exemple dans le contexte des lits fluidisés. Elle consiste à introduire un champ quantifiant l'agitation cinétique des cristaux, et à modéliser les termes non classiques grâce à ce champ.

Nous proposons dans cette annexe, de décrire dans un premier temps cette méthode de changement d'échelle en rappelant les développements réalisés par Gidaspow [54] Dans un deuxième temps, nous décrirons les résultats pour les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie cinétique d'agitation. Ces résultats sont d'une grande utilité pour vérifier l'accord avec les résultats du chapitre 3.

E.2 Théorie cinétique des milieux granulaires

E.2.1 Quelques relations fondamentales

Considérons un milieu diphasique présentant une phase fluide et une phase solide composée de grains dispersés. Supposons par ailleurs que tous les grains ont le même diamètre d_P . La méthode consiste à utiliser une fonction de distribution des vitesses $f(t, \vec{r}, \vec{V}_c)$, dépendant du temps t , de la position \vec{r} et de la vitesse instantanée \vec{V}_c . La vitesse moyenne de la phase solide à l'instant t , est obtenue grâce à une moyenne sur l'espace des vitesses possibles :

$$\langle \vec{V}_c \rangle^c = \frac{1}{n_c} \int \vec{V}_c f(t, \vec{r}, \vec{V}_c) d\vec{V}_c \quad (\text{E.1})$$

où n_c est la densité volumique de particule donnée par :

$$n_c = \int f(t, \vec{r}, \vec{V}_c) d\vec{V}_c \quad (\text{E.2})$$

Remarquons que le paramètre n_c est proportionnel à la fraction volumique solide dans notre modèle macroscopique (En effet $\varepsilon_c = n_c \frac{1}{6} \pi d_p^3$). De même, la notation $\langle \rangle^c$ est analogue à la moyenne volumique intrinsèque. Une distribution statistique possible des vitesses est donnée par une fonction de Gauss [54] :

$$f_x(V_x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\theta^2}} \exp\left(-\frac{(V_x - \langle V_x \rangle^c)^2}{2\theta}\right) \quad (\text{E.3})$$

Où V_x désigne la composante selon l'axe x de la vitesse, et θ représente l'écart type de la distribution statistique des vitesses. f_x étant la fonction de distribution des vitesses sur l'axe x . Cette fonction présente les particularités suivantes [54] :

$$\begin{aligned} \int f_x(V_x) dV_x &= 1 \\ \int V_x f_x(V_x) dV_x &= \langle V_x \rangle^c \\ \int (V_x - \langle V_x \rangle^c)^2 f_x(V_x) dV_x &= \theta \end{aligned} \quad (\text{E.4})$$

Il apparaît donc explicitement dans la fonction de Gauss, la valeur moyenne de la vitesse et la dispersion de la distribution statistique. Notons que dans les équations (E.3) et (E.4), nous avons exprimé la fonction pour une seule composante de la vitesse. Si nous souhaitons exprimer la fonction pour le vecteur vitesse, et si nous supposons que la distribution est égale au produit des distributions de Gauss des trois composantes, nous obtenons une distribution dite de Maxwell [54] :

$$f_p(\vec{r}, \vec{V}_c) = \frac{n_c}{(2\pi\theta^2)^{\frac{3}{2}}} \exp\left[-\frac{(\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c)^2}{2\theta}\right] \quad (\text{E.5})$$

Nous avons alors $\langle (\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c)^2 \rangle^c = 3\theta$.

Une autre propriété démontrée par Gidaspow [54] concerne (avec une distribution de Maxwell (E.10)) le calcul de la moyenne de la norme de fluctuation des vitesses :

$$\langle |\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c|^2 \rangle^c = \langle |\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c|^2 \rangle^c \frac{8}{3\pi} = \frac{8\theta}{\pi} \quad (\text{E.6})$$

Il est possible de calculer à partir de la fonction de distribution de Maxwell, le nombre de collisions par unité de temps, pour une particule [54].

$$N_{12} = 4n_c d_p^2 g_0 \sqrt{\pi\theta} \quad (\text{E.7})$$

où g_0 est une fonction qui fait intervenir la limite d'agglomération (ε_{cmax}) : $g_0(\varepsilon_c) = \left[1 - \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{cmax}}\right)\right]^{-1}$.

Le libre parcours moyen (λ_p) entre deux chocs, qui est égal au produit du temps caractéristique entre deux collisions ($\frac{1}{N_{12}}$) avec la moyenne de la norme de la vitesse (relation (E.6)) donne :

$$\lambda_p = \frac{1}{6\sqrt{2}} \frac{d_p}{\varepsilon_c} \quad (\text{E.8})$$

E.2.2 Développements des équations d'évolution

Le principe de la méthode statistique est d'écrire une équation d'évolution de la fonction de distribution. Gidaspow [54] a appliqué le théorème de transport de Reynolds, pour obtenir l'équation de Boltzmann suivante [54] :

$$\frac{\partial f_p}{\partial t} + \vec{V}_c \cdot \frac{\partial f_p}{\partial \vec{r}} + \vec{F} \cdot \frac{\partial f_p}{\partial \vec{V}_c} = \left(\frac{\partial f_p}{\partial t}\right)_{coll} \quad (\text{E.9})$$

Dans l'équation (E.9), \vec{F} représente les forces volumiques exercées sur le milieu solide. Le second membre de l'équation (E.9) représente la contribution des chocs entre particules sur la variation de la fonction de distribution. La formule détaillée pour le terme $\left(\frac{\partial f_p}{\partial t}\right)_{coll}$ est donnée dans [54].

On multiplie chaque coté de l'égalité (E.9) par la grandeur physique X dont on veut obtenir une équation d'évolution, et on réalise la moyenne statistique de chaque membre de l'égalité. On obtient l'équation de Maxwell de transport pour X [54] :

$$\int X \left(\frac{\partial f_p}{\partial t} + \vec{V}_c \cdot \frac{\partial f_p}{\partial \vec{r}} + \vec{F} \cdot \frac{\partial f_p}{\partial \vec{V}_c} \right) d\vec{V}_c = \int X \left(\frac{\partial f_p}{\partial t} \right)_{coll} d\vec{V}_c \quad (\text{E.10})$$

L'application de théorèmes mathématiques classiques [54] de transformations d'intégrales permet d'écrire l'équation (E.10) sous la forme suivante [54] :

$$\frac{\partial n_c \langle X \rangle^c}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial \vec{r}} \cdot n_c \langle X \vec{V}_c \rangle^c - n_c \left[\left\langle \frac{\partial X}{\partial t} \right\rangle^c + \langle \vec{V}_c \cdot \frac{\partial X}{\partial \vec{r}} \rangle^c + \vec{F} \cdot \langle \frac{\partial X}{\partial \vec{V}_c} \rangle^c \right] = \int X \left(\frac{\partial f_p}{\partial t} \right)_{coll} d\vec{V}_c \quad (\text{E.11})$$

La formule (E.11), appliquée aux champs physiques : ρ_c , $\rho_c (\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c)$, $\frac{1}{2} \rho_c (\vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c)^2$, mène respectivement aux équations macroscopiques de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, et de l'énergie cinétique d'agitation.

L'équation de conservation de la masse, après simplification, prend une forme classique [54] :

$$\frac{\partial \varepsilon_c \rho_c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c) = 0 \quad (\text{E.12})$$

E.3 Equation de conservation de la quantité de mouvement

Dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement, deux termes non classiques interviennent [54] : un tenseur de dispersion : $P_{dis} = n_c \rho_c \langle \widehat{\vec{V}}_c \widehat{\vec{V}}_c \rangle^c$, où $\widehat{\vec{V}}_c = \vec{V}_c - \langle \vec{V}_c \rangle^c$, et un terme de collision, au second membre de E.11.

$$\rho_c \frac{\partial \varepsilon_c \langle \vec{V}_c \rangle^c}{\partial t} + \nabla \cdot (\varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \langle \vec{V}_c \rangle^c) + \nabla \cdot (P_{dis} + P_{choc}) = \rho_c \varepsilon_c \vec{F} \quad (\text{E.13})$$

Où \vec{F} quantifie les forces volumiques sur le solide.

E.3.1 Fermeture du terme de dispersion

Gidaspow [54] a montré que lorsqu'on suppose une distribution de Maxwell des vitesses (Il précise que cette hypothèse est vérifiée, lorsque le milieu granulaire est dispersé), la matrice P_{dis} est diagonale :

$$P_{dis} = \varepsilon_c \rho_c \theta \quad (\text{E.14})$$

E.3.2 Fermeture du terme de collision

Ce terme apparaît au second membre de l'équation de Maxwell (E.10). Il est prépondérant lorsque le milieu granulaire présente une grande densité de particules et qu'il y a de nombreux chocs. La fermeture de ce terme a été proposée par Gidaspow [54]. Là encore, si une distribution de Maxwell des vitesses de particules est supposée, une contribution sous forme de pression de collision est obtenue, avec

$$P_{choc}^0 = 2(1 + \kappa) g_0 \rho_c \varepsilon_c^2 \theta \quad (\text{E.15})$$

La résolution rigoureuse de l'équation de Boltzmann (E.9) aboutit à une correction de la distribution de Maxwell : $f = f_p + f_p^1 + \dots$ (Voir Ding & Gidaspow [39] et Jenkins & Savage [80]).

Si l'on considère la contribution de la correction f^1 au tenseur P_{choc} il apparaît un nouveau terme qui s'écrit [54] :

$$P_{choc}^1 = -2\varepsilon_c \mu_{cs} \nabla \langle \vec{V}_c \rangle^c - \varepsilon_c \xi (\nabla \cdot \langle \vec{V}_c \rangle^c) . I \quad (\text{E.16})$$

où les coefficients μ_{cs} et ξ sont donnés par [54, 73, 74]

$$\begin{aligned} \mu_{cs} &= \frac{4}{5} \varepsilon_c \rho_c d_c g_0 (1 + \kappa) \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \\ \xi &= \frac{4}{3} \varepsilon_c \rho_c d_c g_0 (1 + \kappa) \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (\text{E.17})$$

E.3.3 Equation de conservation de l'énergie cinétique turbulente

L'équation de conservation de l'énergie cinétique turbulente est obtenue en écrivant l'équation de conservation de Maxwell (E.11) pour le champ $\frac{1}{2}\rho_c|\vec{V}_c|^2$ [54]. On soustrait alors à l'équation obtenue, l'équation de conservation de l'énergie cinétique moyenne, obtenue en prenant le produit scalaire de l'équation (E.13) de conservation de la quantité de mouvement avec la vitesse moyenne.

L'équation de conservation de l'énergie cinétique turbulente suivante est obtenue [54] :

$$\frac{3}{2} \left[\frac{\partial \varepsilon_c \rho_c \theta}{\partial t} + \nabla \cdot \varepsilon_c \rho_c \langle \vec{V}_c \rangle^c \theta \right] = (P_{dis} + P_{choc}) : \nabla \cdot \langle \vec{V}_c \rangle^c - \nabla \cdot (q_k + q_c) + N_c \left(\frac{m}{2} \vec{V}_c^2 \right) - 3\varphi_{\ell c} \theta \quad (\text{E.18})$$

Dans cette équation, P_{dis} (équations (E.14)) et P_{choc} (équations (E.17)) sont des tenseurs de contraintes qui apparaissent dans l'équation de conservation de la quantité de mouvement.

La fermeture du terme $q_k = \frac{1}{2}\rho_c \langle |\vec{V}_c|^2 \vec{V}_c \rangle^c$ fait intervenir une dissipation d'énergie cinétique turbulente : $q_k = -\kappa_k \nabla \theta$ [54]. Si une fonction de distribution de Maxwell des vitesses est choisie, aucune dissipation d'énergie n'est constatée [54]. Au contraire si nous considérons une correction f_p^1 à la fonction de distribution, nous obtenons un terme de transport diffusif dont le coefficient diffusif est [73, 74, 72, 54] :

$$\kappa_k = \frac{15}{4} \mu_{cs} \text{ avec } \mu_{cs} = \frac{5\sqrt{\pi}}{96} \rho_c d_p \theta^{\frac{1}{2}} \quad (\text{E.19})$$

La fermeture du terme de choc de l'équation de transport de Maxwell (équation E.11), introduit un autre terme de dissipation d'énergie cinétique turbulente [54]. Il est lui même la somme de deux termes : $q_c = q_{c1} + q_{c2} = \kappa_{c1} \nabla \theta + \kappa_{c2} \nabla \theta$. Le premier est nul pour une distribution de Maxwell des vitesses [54]. Pour une correction de la fonction de distribution f_p^1 , il apparaît un terme de dissipation d'énergie ayant le coefficient de diffusion [73, 74, 72, 54] :

$$\kappa_{c1} = \frac{2}{g_0(1+\kappa)} \left[\frac{6}{5} \varepsilon_c g_0 (1+\kappa) \right] \left[1 + \frac{6}{5} \varepsilon_c g_0 (1+\kappa) \right] \mu_{cs} \quad (\text{E.20})$$

$$\kappa_{c2} = 2\rho_c \varepsilon_c^2 d_p (1+\kappa) g_0 \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{E.21})$$

Enfin, le terme N_c correspond à une dissipation d'énergie par des collisions inélastiques [54]. [54]

$$N_c \left(\frac{m}{2} \vec{V}_c^2 \right) = 3(\kappa^2 - 1) \varepsilon_c^2 \rho_c g_0 \theta \left[\frac{4}{d_p} \left(\frac{\theta}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}} - \nabla \cdot \langle \vec{V}_c \rangle^c \right] \quad (\text{E.22})$$

Dans l'équation E.18, nous retrouvons des termes classiques tels que les termes de gauche de l'équation, et les termes de dissipation d'énergie. Par ailleurs, le premier terme de droite est un terme de production d'énergie cinétique d'agitation, alors que les deux derniers termes sont des termes de dissipation d'énergie, notamment dus aux frottements avec le fluide.

Annexe F

Modélisation des chocs

Le but de cette partie est de présenter une modélisation des chocs, qui nous permettra de fermer les équations de la quantité de mouvement de la phase solide, et l'énergie cinétique turbulente.

F.1 Libre parcours moyen et nombre de chocs

Soit un système de cristaux caractérisé par n_c (nombre de cristaux par unité de volume), ε_c (fraction volumique de solide cristallin), baignés par un liquide s'écoulant à la vitesse \vec{V}_ℓ . Les cristaux ont un diamètre d_p moyen :

$$\frac{1}{6}\pi d_p^3 n_c = \varepsilon_c \text{ donc } d_p = \sqrt[3]{\frac{6\varepsilon_c}{\pi n_c}} \quad (\text{F.1})$$

L'ordre de grandeur de la fluctuation de vitesse est $\sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c}$. Nous rappelons que $\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c$ est la variable obtenue par résolution de l'équation de conservation de l'énergie cinétique d'agitation. Dans le cas d'une phase solide très dispersée, le libre parcours moyen peut se retrouver de la façon suivante : dans le repère se déplaçant à la vitesse moyenne des cristaux, le volume de collision moyen balayé par un cristal (à cause de son agitation) pendant dt est un cylindre dont la base a un rayon d_p et dont la hauteur est $\sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} dt$:

$$V_{cyl} = \pi d_p^2 \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} dt \quad (\text{F.2})$$

Lorsque les cristaux ont balayé un volume égal à $V_{cyl} = \frac{1}{n_c}$, on a choc, et la particule s'est déplacée d'une longueur $\sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} dt$ égale au libre parcours moyen λ_p .

$$\lambda_p = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} dt = \frac{1}{n_c \pi d_p^2} = \frac{\pi d_p^3}{6\varepsilon_c \pi d_p^2} = \frac{d_p}{6\varepsilon_c} \quad (\text{F.3})$$

Ce qui correspond à une fréquence de choc pour un cristal de :

$$N_{12} = \frac{\sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c}}{\lambda_p} = \pi n_c d_p^2 \sqrt{\langle \vec{V}_c^2 \rangle^c} \quad (\text{F.4})$$

L'expression (F.4) est proche de celle obtenue par la méthode statistique (E.7).

F.2 Variation de vitesse lors d'un choc

Appelons κ le coefficient de restitution du choc, qui prend des valeurs comprises entre 0 et 1 (0 pour un choc mou et 1 pour un choc élastique). Quand deux cristaux (m_1, \vec{V}_1) et (m_2, \vec{V}_2) se choquent, ils se séparent avec des vitesses \vec{V}_1^* et \vec{V}_2^* . Notons \vec{k} le vecteur unitaire partant du centre de la première particule, et orienté vers la deuxième particule. Une première relation est donnée par la conservation de quantité de mouvement lors du choc [54] :

$$m_1 \vec{V}_1 + m_2 \vec{V}_2 = m_1 \vec{V}_1^* + m_2 \vec{V}_2^* = M \vec{V} \quad (\text{F.5})$$

On a posé $M = m_1 + m_2$ et $\vec{V} = \frac{m_1 \vec{V}_1 + m_2 \vec{V}_2}{m_1 + m_2}$.

Une deuxième relation traduit l'efficacité du choc [54] :

$$\vec{k} \cdot (\vec{V}_1^* - \vec{V}_2^*) = -\kappa \vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \quad (\text{F.6})$$

La relation (F.6) implique que les composantes des vitesses orthogonales à \vec{k} sont conservées au cours du choc, alors que les composantes selon \vec{k} sont modifiées.

En utilisant la relation (F.5) nous pouvons écrire les quatres relations suivantes :

$$\begin{aligned} \vec{V}_1 &= \vec{V} + \frac{m_2}{M} (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \\ \vec{V}_2 &= \vec{V} - \frac{m_1}{M} (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \\ \vec{V}_1^* &= \vec{V} + \frac{m_2}{M} (\vec{V}_1^* - \vec{V}_2^*) \\ \vec{V}_2^* &= \vec{V} - \frac{m_1}{M} (\vec{V}_1^* - \vec{V}_2^*) \end{aligned} \quad (\text{F.7})$$

L'utilisation des relations (F.6) et (F.7), permet d'exprimer les expressions des vitesses après le choc en fonction des vitesses avant le choc.

$$\begin{aligned} \vec{V}_1^* &= \vec{V}_1 - \frac{m_2}{M} (1 + \kappa) (\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)) \vec{k} \\ \vec{V}_2^* &= \vec{V}_2 + \frac{m_1}{M} (1 + \kappa) (\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)) \vec{k} \end{aligned} \quad (\text{F.8})$$

Si, par ailleurs, nous considérons le choc de deux particules de masse égale, alors :

$$\begin{aligned} \vec{V}_1^* &= \vec{V}_1 - \frac{1}{2} (1 + \kappa) (\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)) \vec{k} \\ \vec{V}_2^* &= \vec{V}_2 + \frac{1}{2} (1 + \kappa) (\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)) \vec{k} \end{aligned} \quad (\text{F.9})$$

F.3 Energie perdue lors d'un choc

Ecrivons maintenant le bilan du choc en terme d'énergie cinétique des deux particules avant et après le choc :

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \left(m_1 \vec{V}_1^2 + m_2 \vec{V}_2^2 \right) &= \frac{1}{2} M \left(\vec{V}^2 + \frac{m_1 m_2}{M^2} (\vec{V}_1 - \vec{V}_2)^2 \right) \\ \frac{1}{2} \left(m_1 \vec{V}_1^*{}^2 + m_2 \vec{V}_2^*{}^2 \right) &= \frac{1}{2} M \left(\vec{V}^2 + \frac{m_1 m_2}{M^2} (\vec{V}_1^* - \vec{V}_2^*)^2 \right) \end{aligned} \quad (\text{F.10})$$

En faisant la différence entre les deux équations de F.10, nous obtenons la quantité d'énergie dissipée lors du choc :

$$\Delta E = \frac{m_1 m_2}{M} (\kappa^2 - 1) \left(\vec{k} \cdot (\vec{V}_1 - \vec{V}_2) \right)^2 \quad (\text{F.11})$$

De l'équation (F.11), nous pouvons déduire une valeur moyenne des pertes d'énergie cinétique lors d'une collision entre deux particules dans un milieu granulaire uniforme (les particules ont toute la même masse m) présentant une énergie cinétique d'agitation de $\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c$. Notons $\vec{V}_1 = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \vec{u}$ et $\vec{V}_2 = \sqrt{\langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c} \vec{v}$, avec \vec{u} et \vec{v} les vecteurs unitaires dans les directions de \vec{V}_1 et \vec{V}_2 . La relation (F.11) devient :

$$\Delta E = \frac{m_1 m_2}{M} (\kappa^2 - 1) \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c (\cos(\alpha) - \cos(\beta))^2 \quad (\text{F.12})$$

Où $\cos(\alpha) = \vec{k} \cdot \vec{u}$ et $\cos(\beta) = \vec{k} \cdot \vec{v}$, vérifient la condition $\cos(\alpha) - \cos(\beta) \geq 0$, nécessaire aux chocs. Trouver la valeurs moyenne de la perte d'énergie cinétique lors d'une collision revient à moyennner sur les valeurs possibles de α et β , la relation (F.12) et donne :

$$\overline{\Delta E}^{\alpha, \beta} = \frac{m}{2} (\kappa^2 - 1) \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \overline{(\cos(\alpha) - \cos(\beta))^2}^{\alpha, \beta} = \frac{m}{2} (\kappa^2 - 1) \langle \widetilde{V}_c^2 \rangle^c \frac{2}{3} \quad (\text{F.13})$$

Annexe G

Modélisation de la nucléation de cristaux

Des changements dans les variables thermodynamiques peuvent modifier l'état d'équilibre de la matière et provoquent les changements de phases tels que la solidification. Cependant, il est possible de trouver des phases liquides dans un état métastable (le système reste liquide, alors que l'état d'équilibre est solide). Ce retard à la solidification s'explique, car au niveau moléculaire, il faut un certain délai, avant que les molécules ne s'ordonnent pour former un réseau cristallin.

On appelle nucléation, le phénomène aléatoire d'apparition de cristaux dans le coeur du bain liquide sous-refroidi. Des observations expérimentales ont permis de montrer que la fréquence d'apparition des cristaux est d'autant plus forte que le déséquilibre est important [86].

Lorsqu'un germe solide se forme dans un bain liquide, deux effets s'opposent [86] :

- La création de phase solide tend à rapprocher le système de son état d'équilibre.
- La création d'interface entre le solide et le liquide est contraire à l'évolution naturelle et tend à faire disparaître les germes.

Notons que plus les germes sont petits, et plus les effets de surface sont prépondérants devant les effets volumiques. Ce dernier mécanisme explique le retard au changement de phase : Pour que des cristaux croissent, il faut former des germes dont la taille est suffisamment grande afin que les effets volumiques soient prépondérants devant les effets surfaciques.

Dans cette annexe, nous décrivons la théorie classique de la nucléation, qui permet de trouver analytiquement le taux de nucléation dans un liquide métastable. Nous abordons ensuite des évolutions à cette théorie. Nous nous intéressons enfin aux approches qui ont été utilisées dans les modèles macroscopiques de solidification équiaxe.

G.1 La théorie Classique de la nucléation

Le second principe de la thermodynamique nous permet d'écrire qu'un système à pression et température constante (c'est le cas pour les changements de phase) évolue de façon à décroître son enthalpie libre. Cette fonction d'état dépend des conditions thermodynamiques. Notons $g_\ell(T, P)$ l'enthalpie libre volumique dans la phase liquide et $g_s(T, P)$ dans la phase solide. Le saut de l'enthalpie libre lors du changement de phase est égal à $\Delta g = g_s - g_\ell$. Lorsque cette grandeur est positive, l'état d'équilibre est l'état liquide, dans le cas contraire, c'est l'état solide. Par ailleurs, la création d'interface solide-liquide crée une enthalpie libre de surface

proportionnelle à σ_s .

G.1.1 Nucléation homogène

Supposons qu'un germe sphérique de rayon r se forme dans le liquide. La situation est celle de la figure G.1.

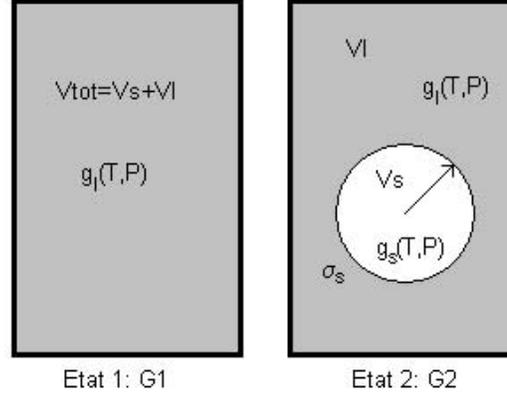


FIG. G.1: Bilan de germination en système fermé.

L'enthalpie libre totale à l'état final du système est donc : $G_2 = V_s g_s + V_l g_l + G_{\ell s}$, alors qu'initialement elle était de : $G_1 = (V_s + V_l) g_l$. L'enthalpie libre de surface $G_{\ell s}$ est proportionnelle à la tension de surface : $G_{\ell s} = 4\pi r^2 \sigma_s$. La variation qui résulte de la formation de ce germe est donc :

$$\Delta G = G_2 - G_1 = V_s \Delta g + G_{\ell s} = \frac{4}{3} \pi r^3 \Delta g + 4\pi r^2 \sigma_s \quad (G.1)$$

Nous remarquons que si Δg est positif, quelle que soit la valeur de r , l'enthalpie libre du système croît avec le rayon du germe. Sous ces conditions (la phase liquide est la phase d'équilibre) le germe ne peut se développer et disparaît. Si Δg est négatif, le polynôme de degré 3 (G.1) passe par une valeur maximale pour la valeur $r^* = \frac{-2\sigma_s}{\Delta g}$ avant de décroître vers $-\infty$. Cela implique qu'un germe de rayon $r > r^*$ peut se développer puisqu'une augmentation de sa dimension résulte en une diminution de son enthalpie libre. La valeur maximale de la variation d'enthalpie libre, est atteinte pour $r = r^*$, c'est la barrière de potentiel de germination : $\Delta G^* = \frac{16\pi\sigma_s^3}{3\Delta g^2}$.

A tout instant, des germes de toute taille se forment aléatoirement, avec un certain taux de formation par unité de temps et de volume [165, 86]. Ceux dont la dimension est inférieure au rayon critique, disparaissent instantanément, alors que ceux dont la taille dépasse le rayon critique croissent. La physique statistique nous donne la probabilité d'apparition de ces germes en fonction de la barrière d'énergie à franchir. Cette fréquence peut être donnée par la relation suivante [86, 165] :

$$F = F_1 \exp\left(\frac{-\Delta G^*}{kT}\right). \quad (G.2)$$

Où F_1 est le nombre total d'atomes présents par unité de volume.

G.1.2 Le cas particulier de la nucléation hétérogène

La nucléation homogène est l'apparition d'un germe dans le coeur d'un bain métastable. La formation de tels cristaux peut être provoquée par la présence d'inclusions dans le liquide qui servent de catalyseur. Ce processus de germination sur substrat est appelé nucléation hétérogène. Dans ce cas il n'est plus nécessaire de former un germe sphérique, car une calotte sphérique suffit pour obtenir les conditions de croissance. Appelons α_m l'angle de mouillage de la phase solide sur le substrat (figure G.2).

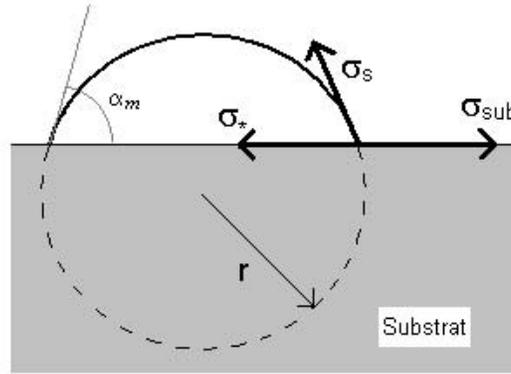


FIG. G.2: Nucléation sur substrat.

Sur cette figure, les tensions de surface du substrat avec le liquide (σ_{sub}), du solide avec le liquide (σ_s), et de l'interface solide-substrat (σ_*) sont représentées. La relation d'équilibre reliant les trois tensions de surface à la pointe de la calotte est :

$$\sigma_* + \sigma_s \cos \alpha_m = \sigma_{sub}$$

Si nous appelons β l'énergie libre d'adhésion sur le support, une nouvelle relation permet de relier les différents paramètres :

$$\sigma_* = \sigma_s + \sigma_{sub} - \beta$$

Nous en déduisons que $\sigma_s(1 + \cos \alpha_m) = \beta$, ainsi que $\sigma_* - \sigma_{sub} = -\sigma_s \cos \alpha_m$. La variation d'enthalpie libre du système, par la création d'une calotte de rayon r , avec un angle de mouillage α_m est :

$$\begin{aligned} \Delta G &= V_s \Delta g + A_{sub} * (\sigma_* - \sigma_s) + A_s \sigma_s \\ &= -\frac{1}{3} \pi r^3 (1 - \cos \alpha_m)^2 (2 + \cos \alpha_m) \Delta g + \pi r^2 \sin^2 \alpha_m (\sigma_* - \sigma_s) + 2 \pi r^2 (1 - \cos \alpha_m) \sigma_s \quad (G.3) \\ &= -\frac{1}{3} \pi r^3 (1 - \cos \alpha_m)^2 (2 + \cos \alpha_m) \Delta g - \pi r^2 \sin^2 \alpha_m \sigma_s \cos \alpha_m + 2 \pi r^2 (1 - \cos \alpha_m) \sigma_s \end{aligned}$$

Si nous calculons les valeurs de r pour lesquelles la dérivée de ΔG s'annule, nous obtenons $r^* = \frac{-2\sigma_s}{\Delta g}$. Nous retrouvons la même valeur du rayon critique que pour le cas de la nucléation homogène. Elle ne dépend pas de la valeur de l'angle de mouillage. Par contre, l'enthalpie

libre d'activation se trouve diminuée d'un facteur $f(\alpha_m) = \frac{1}{4}(1 - \cos\alpha_m)^2(2 + \cos\alpha_m)$, ce qui explique qu'il est plus facile de faire germer des cristaux sur support. La fréquence de nucléation hétérogène des cristaux sur un support avec un angle de mouillage de α_m est donc [86, 30] :

$$F = F_1 \exp\left(\frac{-\Delta E^* f(\alpha_m)}{kT}\right) \quad (\text{G.4})$$

G.2 Les évolutions de la théorie classique

Depuis l'établissement de la théorie classique de la nucléation, de nombreux travaux ont tenté de l'affiner. Des modèles à l'échelle moléculaire permettent de simuler la cinétique de formation des germes [94, 79]. Des travaux ont porté sur la généralisation au cas de mélanges multiconstituants [83]. Dans ce cas, le taux de nucléation dépend de la composition de la phase solide. Des études portent sur la possibilité de faire nucléer des phases solides métastables (ces phases ont une structure moléculaire différente de la structure normale) [76]. Enfin d'autres méthodes permettent d'améliorer la corrélation de la théorie classique. L'amélioration est possible en cherchant une expression précise de la tension de surface et du saut d'enthalpie libre. Ces grandeurs dépendent de la température, de la concentration, et en remplaçant dans l'expression du taux de nucléation, une corrélation plus précise est possible. Le travail consiste alors à trouver une expression détaillée de ces paramètres thermodynamiques. Des méthodes d'interface diffuses [62, 6, 63, 178, 9], ont permis d'obtenir des corrélations plus précises en cas de fort écart à l'équilibre.

G.3 Modélisations utilisées dans les modèles de solidification

Dans le contexte de la modélisation macroscopique de la solidification équiaxe, différentes approches ont été utilisées pour traiter le phénomène de nucléation. La modélisation la plus simple (dite nucléation "instantanée") consiste à supposer que l'on a une densité uniforme de sites de nucléation. Lorsqu'un certain sous-refroidissement est atteint, ces sites sont activés instantanément [139, 175, 18, 66]. La densité de cristaux est alors égale à la densité de sites. Cette approche semble pertinente lorsque la nucléation est hétérogène, et que des particules sont introduites en quantité connue par avance. Cependant, si tous les germes ne s'activent pas, ou s'ils s'activent à des instants différents, nous pouvons douter de la pertinence d'une telle modélisation.

Un moyen d'affiner le modèle précédent, est de supposer l'existence d'une population de sites dont la probabilité d'activation dépend du sous-refroidissement.

$$\frac{dn_c}{d\Delta T} = f(\Delta T) \quad (\text{G.5})$$

Pour un sous-refroidissement donné, la densité totale est égale à l'intégrale de cette distribution.

$$n_c = \int_0^{\Delta T_0} f(\Delta T) d\Delta T \quad (\text{G.6})$$

Au cours d'une expérience, la densité de sites actifs est donnée par le maximum de sous-refroidissement atteint. Cette approche se distingue de l'approche précédente, car la densité finale de cristaux n'est pas connue par avance, et dépend de l'historique de la solidification. Elle semble plus cohérente que la précédente, mais elle ne fait pas intervenir la cinétique du refroidissement. Stefanescu & al. [157] ont utilisé la fonction $n_c = \mu_2 \Delta T^2$. La distribution suivante de sites : $\frac{dn_c}{d\Delta T} = \frac{n_{max}}{\sqrt{2\pi}\Delta T_{\sigma_s}} \exp \frac{-(\Delta T - \Delta T_{nu})^2}{2(\Delta T_{\sigma_s})^2}$ a été testée par différents auteurs [110, 100, 186].

Le modèle qui se rapproche le plus de la physique du phénomène, est la méthode de nucléation continue pour laquelle le taux de nucléation dépend de la température :

$$\frac{dn_c}{dt} = h(\Delta T) \quad (G.7)$$

La densité finale de cristaux dépend de l'historique des phénomènes, ainsi que de la vitesse de refroidissement. En fin de solidification, la densité finale de cristaux est donnée par l'intégrale au cours du temps du taux de nucléation.

$$n_c = \int_0^{t_{final}} h(\Delta T) dt \quad (G.8)$$

Stefanescu & al. [157] ont utilisé des corrélations identiques à celles de la théorie classique :

$$\dot{n}_c = n_0 \gamma \exp^{-\frac{\Delta E}{kT}} \quad (G.9)$$

La nucléation hétérogène peut être traitée en multipliant le saut d'enthalpie libre par un coefficient dépendant de l'angle de mouillage du cristal sur son substrat. Stefanescu a prouvé, par un raisonnement analytique que la densité de cristaux est reliée à la vitesse de refroidissement :

$$n_c = K_1 + K_2 \left(\frac{dT}{dt}\right)^2 \quad (G.10)$$

La dernière relation (G.10) a été utilisée dans plusieurs modèles [45, 108].

La méthode de nucléation continue semble donc la plus pertinente. Le taux de nucléation peut-être exprimé en utilisant la théorie classique. La difficulté pour cette dernière méthode réside dans l'obtention de coefficients qui contrôlent le taux de nucléation (ΔG^* , σ_s).

Annexe H

Méthode de champ de phase

H.1 Principe

Pour la modélisation des changements d'états solide-liquide à l'échelle locale (Simulations Numériques Directes), la difficulté réside dans la modélisation numérique de l'interface entre les deux phases. En pratique, l'épaisseur de cette dernière est équivalente à la taille des molécules du mélange (quelques nm), puisque les molécules du bain touchent celles du réseau cristallin solide. Les méthodes de champ de phase supposent que l'on passe continûment d'une phase à l'autre sur une distance δ , supérieure à la taille réelle d'une interface (voir image de gauche de la figure H.1). Pour localiser les phases, il est nécessaire de disposer d'un champ présentant une discontinuité entre les phases [82, 177] : Ce champ peut être l'un de ceux du problème physique, mais il est aussi possible de rajouter une variable ϕ (dite champ de phase), qui prend des valeurs propres à chaque état (0 dans le liquide, 1 dans le solide). Elle varie continûment à la traversée de l'interface, qui est ainsi localisée. Une équation de transport sur le champ permet de suivre les changements de phases [177, 158, 3, 98].

H.2 L'énergie libre : une fonction d'état pour représenter les états d'équilibre

Les méthodes se distinguent par la façon dont l'équation différentielle d'évolution du champ de phase est écrite. La plus classique est basée sur le second principe de la thermodynamique : Tout système fermé tend à augmenter son entropie. Pour les transformations à volume et température constants (c'est une hypothèse réaliste lors de changements de phases solide liquide), la variable thermodynamique adaptée est l'**énergie libre de Helmholtz** $f = e - Ts$. Le système évolue de façon à minimiser cette fonction d'état.

Dans un mélange binaire $A - B$, l'expression de l'énergie libre volumique (ou potentiel chimique), du composé A , dans la phase k , est donnée par l'expression :

$$f_{kA}(C_A, T) = f_{kA}^0(T) + RT \ln(C_A) \quad (\text{H.1})$$

L'énergie libre volumique totale de la phase k ($k = \ell$ ou s), est :

$$f_k(C_A, T) = C_A f_{kA}^0(T) + (1 - C_A) f_{kB}^0(T) + C_A RT \ln(C_A) + (1 - C_A) RT \ln(1 - C_A) \quad (\text{H.2})$$

Nous représentons à la figure de droite de H.1, un profil de potentiel chimique typique d'un mélange binaire, en fonction de la concentration en composé A, pour une température donnée.

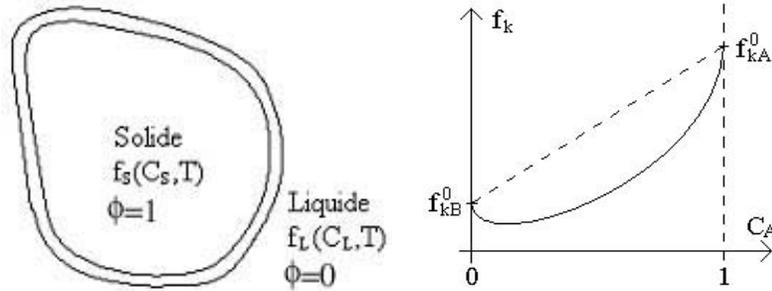


FIG. H.1: Gauche : Principe des méthodes de champ de phase ; Droite : Profil caractéristique d'un potentiel chimique de mélange binaire, en fonction de la concentration, pour une température donnée

L'énergie libre volumique du système, est combinaison des énergies libres volumiques de chaque phase, et d'un terme d'interface qui permet d'introduire les effets de surface comme la tension superficielle : $Wg(\phi)$. Cette fonction prend des minimums en 0 et 1, (figure de gauche de H.2) et un maximum W représentant une barrière de potentiel à franchir lors du changement de phase. Ce dernier terme tend à faire diminuer l'épaisseur de l'interface, pour minimiser l'énergie libre totale.

$$f(\phi, C_\ell, C_s, T) = p(\phi) f_\ell(C_\ell, T) + (1 - p(\phi)) f_s(C_s, T) + Wg(\phi) \quad (\text{H.3})$$

La fonction $p(\phi)$ dans l'équation H.3 est une fonction de pondération qui intervient pour la combinaison linéaire des énergies volumiques de phase.

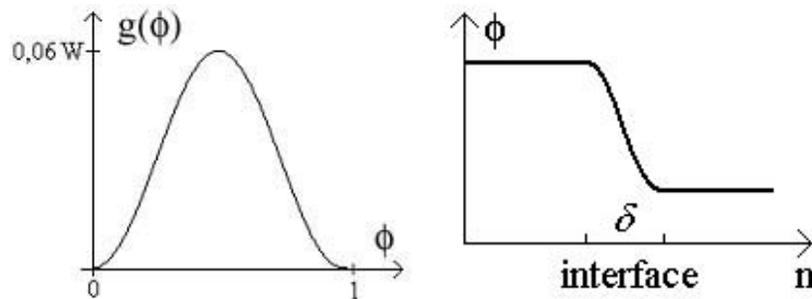


FIG. H.2: Gauche : Profil de la fonction d'interface $g(\phi)$; Droite : Profil du champ de phase à la traversée de l'interface.

H.3 Equation de transport du champ de phase

L'énergie libre totale du système est obtenue comme l'intégrale de cette fonction et d'un terme dépendant du gradient du champ de phase :

$$F(\phi, C, T) = \int_V \left[f(\phi, C_\ell, C_s, T) + \frac{\varepsilon_\phi^2}{2} \|\nabla\phi\|^2 \right] dV \quad (\text{H.4})$$

Le terme en gradient du champ de phase a pour effet d'étaler l'interface, car pour minimiser l'énergie libre, il faut réduire $\|\nabla\phi\|^2$. Ce dernier terme est en opposition avec le terme d'interface de l'équation (H.3), et il s'établit un profil d'équilibre, dont l'épaisseur δ dépend des paramètres W et ε_ϕ (voir figure de droite de (H.2)).

Les grandeurs évoluant de façon à décroître l'énergie libre totale du système, nous pouvons écrire l'équation locale d'évolution suivante du champ de phase :

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} = -\mu_\phi \left[\frac{\partial f}{\partial\phi} - \varepsilon_\phi^2 \nabla^2 \phi \right] \quad (\text{H.5})$$

Le terme de droite entre crochet correspond à la dérivée partielle par rapport à la variable ϕ de l'expression de l'intégrale du membre de droite de (H.4). Il quantifie le déséquilibre local et pilote l'évolution de ϕ à travers le coefficient de mobilité μ_ϕ . L'équation (H.5), qui porte sur un champ non conservatif, est dite une équation de **Allen-Cahn**.

Si le champ de phase est une variable conservative (concentration, masse volumique...), l'équation prend la forme d'une équation de **Cahn-Hilliard** :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \nabla \cdot \left[\mu_\phi C(1-C) \nabla \frac{\partial f}{\partial C} - \varepsilon_C^2 \nabla^2 C \right] \quad (\text{H.6})$$

De tels modèles basés sur le principe de minimisation de l'énergie libre ont été développés par Warren & Boettinger [177], Loginova & al. [98] ou Ramirez & al. [137, 136].

En injectant les relations (H.3) dans (H.4), puis dans (H.5), il est possible d'obtenir une équation de conservation sur le champ de phase.

Annexe I

Une application au contexte de la sûreté des réacteurs : Calcul des essais Rasplav

I.1 Le programme expérimental Rasplav

Le programme expérimental Rasplav, financé par l'OCDE, a été réalisé à l'institut Kurchatov à Moscou. L'objectif du programme était de caractériser le comportement d'un mélange (UO_2 , ZrO_2 , Zr) proche de la composition d'un corium [5]. En parallèle à ces essais, des travaux utilisant des mélanges plus simples à manipuler et expérimenter, tels que des sels fondus, ont été réalisés pour comprendre la physique des phénomènes. La septième série d'essai nous intéresse particulièrement, dans le contexte de notre étude, car elle porte sur l'étude expérimentale de la solidification d'un mélange de sel binaire, dans un récipient présentant la forme d'une cuve de réacteur [5, 161, 152]. L'intérêt de cette expérience est qu'elle se rapproche fortement de la configuration du corium en cuve, non seulement par la géométrie du volume expérimental, mais aussi car le mélange est continuellement chauffé par circulation d'un courant électrique. Dans cette annexe, après une description de l'expérience choisie, nous présenterons des calculs réalisés avec le modèle colonnaire simplifié de la section 2.

I.2 La Septième série d'essais

I.2.1 Principe de l'expérience

Le principe de l'expérience est représenté dans la figure I.1. La solidification du mélange expérimental a été réalisée dans un demi cylindre horizontal pour s'approcher de la géométrie sphérique d'une cuve de réacteur [5, 161, 152]. Le rayon du volume expérimental est de 20cm ce qui correspond à $1/10^{me}$ de la géométrie d'une cuve réelle. Un mélange binaire, dont nous présenterons les propriétés dans la partie suivante est utilisé [5]. Le mélange est refroidi par la paroi circulaire par circulation d'eau thermostatée. L'eau circulant peut-être froide, afin de refroidir le mélange et le solidifier, ou chaude, afin de le chauffer, voire même de le liquéfier. Par ailleurs, un dispositif électrique, permet de générer un courant électrique dans le coeur du bain, ce qui permet de générer une puissance volumique qui chauffe le volume et simule la présence des produits de fission dans le corium [5, 161, 152]. Le volume expérimental a été instrumenté

par un grand nombre de thermocouples, placés dans le coeur du mélange, mais aussi sur les parois du volume, pour contrôler les flux de chaleur. Une sonde permet de localiser en cours de solidification la position du front solide-liquide [160]. Enfin, la croûte est analysée en fin de solidification pour déterminer sa composition chimique [159].

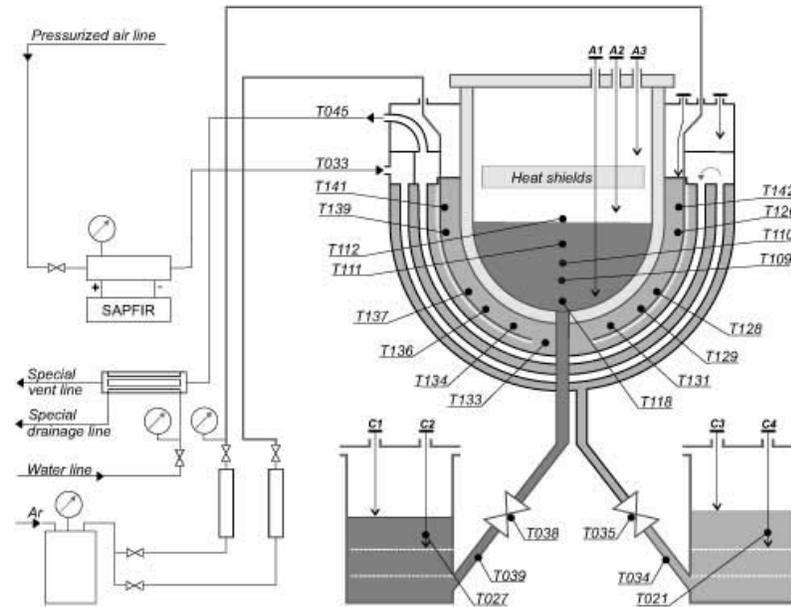


FIG. I.1: Principe de l'expérience de la septième série du projet Rasplav ; Issue de Surenkov & al. [161].

I.2.2 Mélange expérimental

Les expérimentateurs ont choisi de réaliser les expériences avec un mélange en sel binaire $NaBF_4$ (wt89%) – NaF [5]. Le diagramme de phase du mélange est présenté sur la figure I.2, où la concentration sur l'axe des abscisses est exprimée en fraction molaire (Le mélange utilisé dans l'expérience Rasplav a une concentration molaire en $NaBF_4$ de 75%). Nous pouvons noter la forte variation de la température liquidus. Celle ci évolue de 657K pour le mélange à composition eutectique à 1268K pour le mélange pur en NaF .

Ce type de mélanges a été très peu utilisé dans la littérature et les expérimentateurs ont réalisé des séries de tests pour caractériser les propriétés physiques de ce mélange. Elles sont listées dans le tableau I.1.

I.2.3 Les données sur la septième série d'essais

La septième série d'essais, a consisté à cinq régimes d'essais, alternant la solidification et la fusion du mélange. Pour chaque régime, la température de paroi et la puissance générée par la circulation de courant électrique est imposée. La simulation est réalisée jusqu'à ce qu'un régime permanent est atteint [5, 161, 152]. Nous représentons dans la figure I.3 l'évolution temporelle de la puissance volumique dégagée par la circulation du courant électrique ainsi

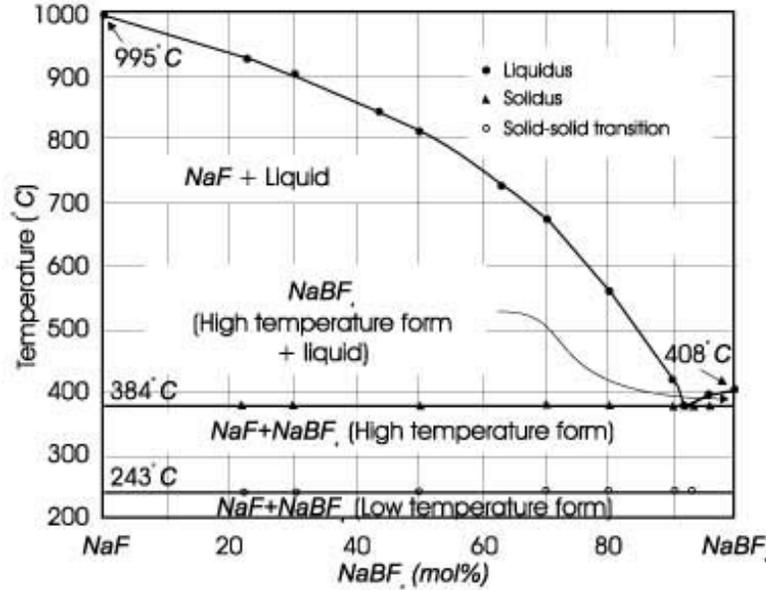


FIG. I.2: Diagramme de phase du sel binaire $NaBF_4(75\%) - NaF$ (image issue de Asmolov & al. [5]).

$C_{p\ell}, C_{ps}$	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	1500	λ_ℓ	$W.m^{-1}.K^{-1}$	0,44
L	$J.kg^{-1}$	100000	λ_s	$W.m^{-1}.K^{-1}$	1,4
D_ℓ	$m^2.s^{-1}$	$4,8.10^{-9}$	ρ_ℓ, ρ_s	$kg.m^{-3}$	1843
D_s	$m^2.s^{-1}$	1.10^{-12}	β_T	K^{-1}	$4,08.10^{-4}$
λ_1	μm	1000	β_C		0,115
λ_2	μm	300	μ_ℓ	$kg.m^{-1}.s^{-1}$	$1,5.10^{-3}$

TAB. I.1: Propriétés du sel $NaBF_4 - NaF$

que l'évolution temporelle de la température de la paroi. Les régimes sont délimités sur ces courbes par leurs discontinuités. Lors du premier régime, qui s'étend jusqu'à l'instant 175000s une faible puissance (4550W) est appliquée au mélange alors que la température de paroi est chaude (950K). Ce régime vise donc à complètement liquéfier les matériaux et atteindre un état stationnaire. Lors du second régime qui se termine à l'instant 190000s, la puissance volumique est augmentée à 5500W alors que la température est progressivement abaissée de 950 à 650K. Ce régime voit la formation d'une croûte solide au contact de la paroi, et permet d'atteindre un état stationnaire contenant à la fois du solide et du liquide. Dans le troisième régime, la température est conservée à une faible valeur et la puissance générée est abaissée, ce qui permet de continuer la solidification. Le quatrième régime est caractérisé par une augmentation de la température de paroi qui entraîne une liquéfaction. Enfin, la température du mur est diminuée fortement lors du dernier régime, ce qui entraîne une solidification rapide du mélange [5, 161, 152].

Nous présentons sur la figure I.4 les mesures qui ont été réalisées par la sonde pour la mesure de la taille de la croûte. Les mesures ont été réalisées à 30° de l'axe vertical. Le graphique I.4 présente l'évolution temporelle de l'épaisseur de croûte [160, 159]. Celle-ci correspond bien aux

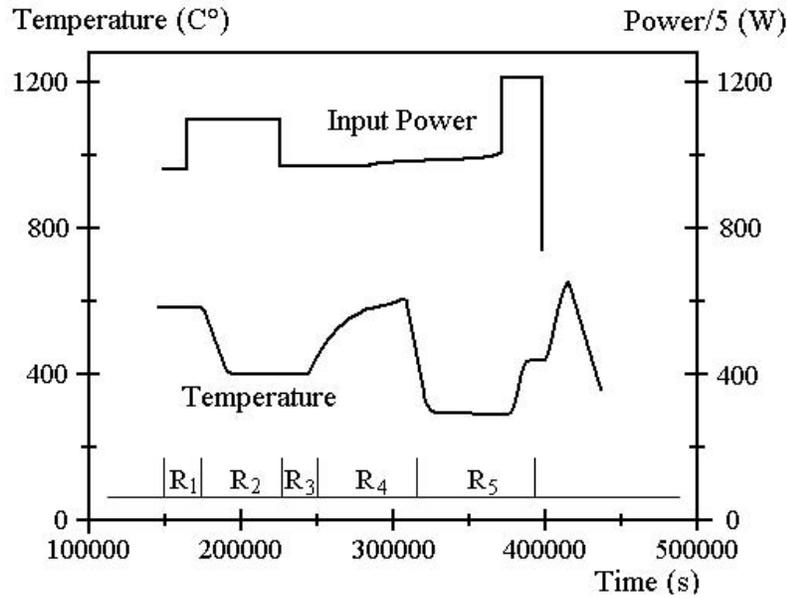


FIG. I.3: Profil de l'évolution temporelle de la température sur la paroi circulaire, et profil de la puissance apportée au mélange pour les 5 régimes expérimentaux de la septième série.

différents cycles qui ont été réalisés lors de l'expérience.

I.3 Calculs réalisés avec le modèle colonnaire simplifié

Nous avons utilisé le modèle colonnaire simplifié décrit dans le chapitre 2, en adaptant la discrétisation à la géométrie hémicylindrique de l'expérience. Nous avons utilisé un maillage hémicylindrique (30 mailles dans la direction radiale, et 20 dans la direction orthoradiale), avec un raffinement au voisinage de la paroi circulaire, afin de bien modéliser les phénomènes qui ont lieu dans la couche limite au contact de cette paroi. Le principe du calcul, avec les conditions initiales et aux limites est donné sur la figure I.5. Le champ de fraction volumique liquide en fin d'expérience est représenté sur l'image de droite de la figure I.5. On y voit une couche très poreuse en bas du domaine se former. Il est difficile de comparer quantitativement l'épaisseur de notre croûte avec celle mesurée expérimentalement et donnée sur la figure I.5, mais l'isovaleur 0,93 donne un bon accord. Nous avons représenté les champs de température et concentration sur la figure I.6. Ces champs présentent une forme stratifiée qui résulte de l'enrichissement en soluté du liquide interdendritique, qui augmente sa masse volumique et le maintient en bas du domaine.

Enfin, nous avons utilisé le champ de température, pour calculer le flux thermique transmis vers l'extérieur, et nous avons tracé son évolution en fonction de la position angulaire sur la figure I.7. Comme nous l'attendions, le flux maximal est obtenu au sommet du bain (angle 0°), et le minimum est atteint dans la direction verticale. Ce genre de profil est intéressant dans le contexte de la sûreté nucléaire, dans l'optique de prévoir le flux thermique transmis à la cuve par le corium.

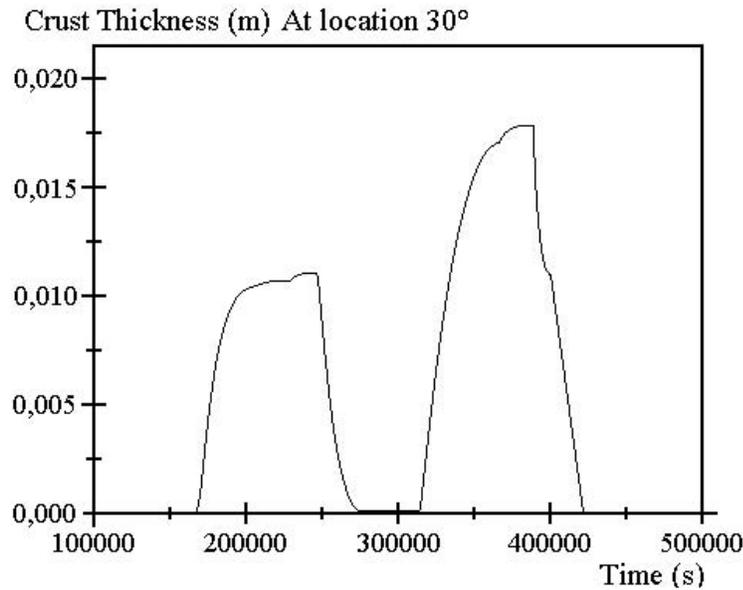


FIG. I.4: Evolution de l'épaisseur de croûte au contact de la paroi circulaire; L'épaisseur est mesurée à 30° par rapport à l'axe horizontal.

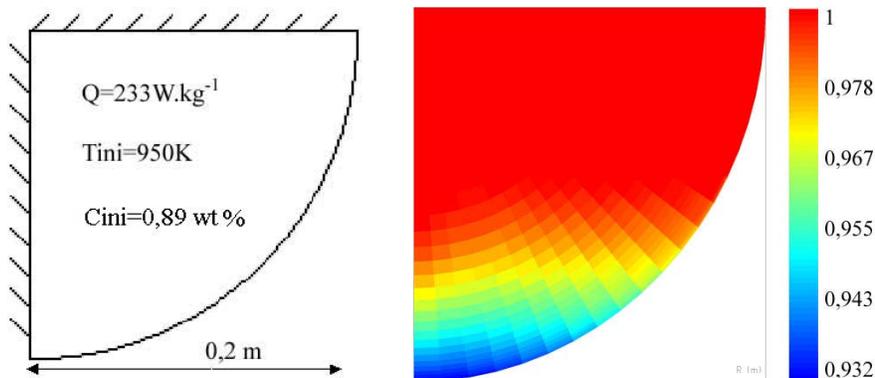


FIG. I.5: Expérience de solidification avec le mélange en sel binaire : Gauche : Principe de la simulation, avec conditions initiales et conditions aux limites; Droite : Champ de fraction volumique liquide calculé par le modèle lorsqu'un état d'équilibre est atteint.

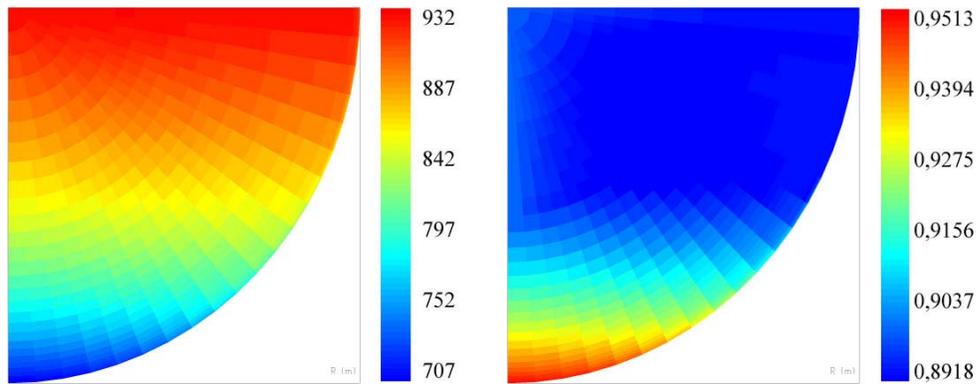


FIG. I.6: *Expérience de solidification avec le mélange en sel binaire : Gauche : Champ de température calculé par le modèle ; Droite : Champ de concentration liquide obtenu par le modèle lorsqu'un état d'équilibre est atteint.*

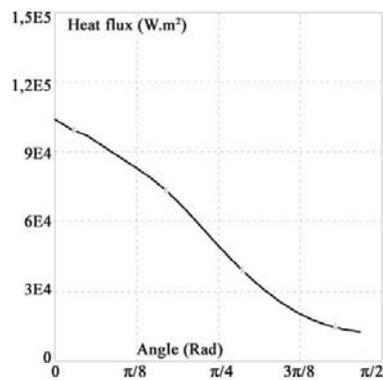


FIG. I.7: *Flux de chaleur calculé par le modèle, sur la paroi circulaire ; La localisation est exprimée en fonction de l'angle en radian.*

Bibliographie

- [1] AHMAD, N., COMBEAU, H., DESBIOLLES, J. L., JALANTI, T., LESOULT, G., RAPPAZ, J., RAPPAZ, M., AND STOMP, C. Numerical simulation of macrosegregation : a comparison between finite volume method and finite element method prediction and a confrontation with experiments. *Metallurgical and Materials Transactions 29A* (1998), 617–630.
- [2] ANDERSON, D. M., MAC FADDEN, G. B., AND WHEELER, A. A. Diffuse-interface methods in fluid mechanics. *Annu. Rev. Fluid Mech.* 30 (1998), 139–165.
- [3] ANDERSON, D. M., MAC FADDEN, G. B., AND WHEELER, A. A. A phase field model of solidification with convection. *Physica D* 135 (2000), 175–194.
- [4] ANDREW, M. J., AND O’ROURKE, P. J. The multiphase particule-in-cell (MP-PIC) method for dense particulate flows. *Int. J. Multiphase Flow* 22 N°2 (1996), 379–402.
- [5] ASMOLOV, V., ABALIN, S., MERZLIAKOV, A., AND IGNATOCHKIN, A. Property measurement of $75NaBF_4 + 25NaF$ salt composition. *Russian Research Center "Kurchatov Institute" OECD RASPLAV Project* (1998).
- [6] ASSADI, H., AND SCHROERS, J. Crystal nucleation in deeply undercooled melts of bulks metallic glass forming systems. *Acta Materialia* 50 (2002), 89–100.
- [7] AURIAULT, J. L., AND ADLER, P. M. Taylor dispersion in porous media : Analysis by multiple scale expansions. *Advances in Water Resources* 18 (1995), 217–226.
- [8] BALZER, G. Gas-solid flow modelling based on the kinetic theory of granular media : validation, applications and limitations. *Powder Technology* 113 (2000), 299–309.
- [9] BATTEZZATI, L. Thermodynamic quantities in nucleation. *Materials Science and Engineering A304-306* (2001), 103–107.
- [10] BEAR, J. *Dynamics of Fluids in Porous Media*. Dover, 1972.
- [11] BECKERMANN, C. Modelling of macrosegregation : Applications and future needs. *International Materials Reviews* 47 (2002), 243–261.
- [12] BECKERMANN, C., BADILLO, A., AND RAMIREZ, J. C. Phase-field simulations of coupled columnar and equiaxed growth. *TMS 2005 Annual meeting : Technical program 134th Annual Meeting and Exhibition, San Francisco, CA* (2005), 33.
- [13] BECKERMANN, C., DIEPERS, H. J., STEINBACH, I., KARMA, A., AND TONG, X. Modeling melt convection in phase-field simulations of solidification. *Journal of Computational Physics* 154 (1999), 468–496.

- [14] BECKERMANN, C., LI, Q., AND TONG, X. Microstructure evolution in equiaxed dendritic growth. *Science and Technology of Advanced Materials* 2 (2001), 117–126.
- [15] BECKERMANN, C., AND VISKANTA, R. Double-diffusive convection during dendritic solidification of a binary mixture. *PhysicoChemical Hydrodynamics* 10 (1988), 195–213.
- [16] BECKERMANN, C., AND VISKANTA, R. Mathematical modeling of transport phenomena during alloy solidification. *Appl. Mech. Rev.* 46 (1993), 217–231.
- [17] BECKERMANN, C., AND WANG, C. Y. Multiphase/scale modeling of alloy solidification. *Annual Review of Heat Transfer* 6 (1995), 115–198.
- [18] BECKERMANN, C., AND WANG, C. Y. Equiaxed dendritic solidification with convection : 3) comparison with $\text{NH}_4\text{Cl-H}_2\text{O}$ experiments. *Metallurgical and Materials Transactions* 27 A (1996), 2784–2795.
- [19] BENIHADDADENE, T. *Modélisation Macroscopique des Ecoulements et des Transferts dans un milieu Poreux Hétérogène : Application à la Solidification*. PhD thesis, Université de Paris 6, 1997.
- [20] BENNON, W. D., AND INCROPERA, F. P. A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems. 1) model formulation. *Int. J. Heat Mass Transfer* 30 (1987), 2161–2170.
- [21] BENNON, W. D., AND INCROPERA, F. P. A continuum model for momentum, heat and species transport in binary solid-liquid phase change systems. 2) application to solidification in a rectangular cavity. *Int. J. Heat Mass Transfer* 30 (1987), 2171–2187.
- [22] BERGANTZ, G. W., AND NI, J. A numerical study of sedimentation by dripping instabilities in viscous fluids. *Int. J. Multiphase Flow* 25 issue 2 (1999), 307–320.
- [23] BOETTINGER, W. J., WARREN, J. A., BECKERMANN, C., AND KARMA, A. Phase-field simulation of solidification. *Annu. Rev. Mater. Res.* 32 (2002), 163–194.
- [24] BOUSQUET-MELOU, P. *Modélisation macroscopique et simulation numérique de la solidification des mélanges binaires*. PhD thesis, Université Paris 6, 2000.
- [25] BOUSQUET-MELOU, P., GOYEAU, B., QUINTARD, M., FICHOT, F., AND GOBIN, D. Average momentum equation for interdendritic flow in a solidifying columnar mushy zone. *Int. J. Heat Mass Transfer* 45 (2002), 3651–3665.
- [26] BOUSQUET-MELOU, P., NECULAE, A., GOYEAU, B., AND QUINTARD, M. Average solute transport during solidification of a binary mixture : active dispersion in dendritic structures. *Metallurgical and Materials Transactions* 33B (2002), 365–376.
- [27] BRENNER, H. Dispersion resulting from flow through spacially periodic porous media. *Phil Trans R Soc Lond* 81 (1980), A297.
- [28] BROUGHTON, J., KUAN, P., PETTI, D., AND TOLMAN, E. A scenario of the Three Mile Island unit 2 accident. *Nuclear Technology* 87 (1989), 34–53.
- [29] CANDEL, S. M., AND POINSOT, T. Flame stretch and the balance equation for the flame area. *Comb. Science and Tech.* 70 (1990), 1–15.
- [30] CANTOR, B., AND DOHERTY, R. D. Heterogeneous nucleation in solidifying alloys. *Acta Metall.* 27 (1978), 33–46.

- [31] CARBONELL, R. G., AND WHITAKER, S. Dispersion in pulsed systems 2) theoretical developments for passive dispersion in porous media. *Chemical Engineering Science* 38 N° 11 (1982), 1795–1802.
- [32] COURTRIS, N., DELHAYE, J. M., AND NAKACH, R. Two phase-flow modeling : the closure issue for the two-layer flow. *Int. J. Multiphase Flow* 15 (1989), 977–983.
- [33] CRANK, J. *Free and moving boundary problems*. Oxford Science Publications, 1984.
- [34] CROWE, C. T. Review-numerical models for dilute gas-particle flows. *ASME J. Fluids Eng.* 104 (1982), 297–303.
- [35] CUSHMAN, J. H., BENNETHUM, L. S., AND HU, B. X. A primer on upscaling tools for porous media. *Advances in Water Resources* 25 (2002), 1043–1067.
- [36] DE LEMOS, M. J. S., AND PEDRAS, M. H. J. On volume and time averaging of transport equations for turbulent flow in porous media. *Proceedings of ASME/JSME FEDS San Francisco, California Presentation Category : F-207* (1999), July 18–23.
- [37] DELHAYE, J. M. Fundamentals of time-varying two-phase flow formulation. *Transient Phenomena in Multiphase Flow Afgan, N.H., Ed., Hemisphere Publ. Corp.* (1988), 3–35.
- [38] DI FELICE, R. The sedimentation velocity of dilute suspensions of nearly monosized spheres. *Int Journal of multiphase flow* 25 issue 4 (1999), 559–574.
- [39] DING, J., AND GIDASPOW, D. A bubbling fluidization model using kinetic theory of granular flow. *AIChE J.* 36 (1990), 523–538.
- [40] DONG, H. B., AND LEE, P. D. Simulation of the columnar-to-equiaxed transition in directionally solidified Al-Cu alloys. *Acta Materialia* 53 (2005), 659–668.
- [41] ELASKAR, S. A., GODOY, L. A., GRAY, D. D., AND STILES, J. M. A viscoplastic approach to model the flow of granular solids. *Int. Journal of Solids and Structures* 37 (2000), 2185–2214.
- [42] ERHART, T., WALL, W. A., AND RAMM, E. A robust computational approach for dry powders under quasi-static and transient impact loadings. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* 194 (2005), 4115–4134.
- [43] FEDKIW, R. P. Coupling an eulerian fluid calculation to a lagrangian solid calculation with the ghost fluid method. *Journal of computational physics* 175 (2002), 200–224.
- [44] FELICELLI, S. D., HEINRICH, J. C., AND POIRIER, D. R. Numerical model for dendritic solidification of binary alloys. *Numerical Heat Transfer* 23 B (1993), 461–481.
- [45] FELLER, R. J., AND BECKERMANN, C. Modeling of the globulitic solidification of binary metal alloy. *Int. Comm. Heat Mass Transfer* 20 (1993), 311–322.
- [46] FERZIGER, J., AND PERIC, M. *Computational Methods for Fluid Dynamics*. Springer, 1999.
- [47] FICHOT, F., BARRACHIN, M., CHATELARD, P., GUILLARD, V., MELIS, S., ZABIEGO, M., AND LEFEVRE, B. A computer code for analysis of severe accidents in lwr icare2 v3mod1 : Description of physical models. *Technical Report 00/03, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire - DRS/SEMAR, CEN Cadarache, 13 108 Saint Paul Lez Durance, France* (2000).

- [48] FICHOT, F., DELHAYE, B., VEYNANTE, D., AND CANDEL, S. M. Strain rate modelling for a flame surface density equation with application to non-premixed turbulent combustion. *Symp. on Comb., Irvine 25* (1994).
- [49] FLOOD, S. C., AND HUNT, J. D. Columnar and equiaxed growth : 1) a model of a columnar front with a temperature dependent velocity. *Journal of Crystal Growth 82* (1987), 543–551.
- [50] GAMWO, I., SOONG, Y., AND LYCZKOWSKI, R. W. Numerical simulation and experimental validation of solids flows in a bubbling fluidized bed. *Powder Technology 103* (1999), 117–129.
- [51] GANESAN, S., CHAN, C. L., AND POIRIER, D. R. Permeability for flow parallel to primary dendrite arms. *Materials Science and Engineering A151* (1992), 97–105.
- [52] GANESAN, S., AND POIRIER, D. R. Conservation of mass and momentum for the flow of interdendritic liquid during solidification. *Metallurgical Transactions 21 B* (1990), 173–181.
- [53] GELHAR, L. W., AND AXNESS, C. L. Three dimensional stochastic analysis of macrodispersion in aquifers. *Water Resour. Res. 19* (1983), 161–180.
- [54] GIDASPOW, D. *Multiphase Flow and Fluidization : Continuum and kinetic Theory Description*. Academic Press, New York, 1994.
- [55] GLOWINSKI, R., PAN, T. W., HESLA, T. I., AND JOSEPH, N. D. A distributed lagrange multiplier/fictitious domain method for particulate flows. *Int. J. Multiphase Flow 25 issue 5* (1999), 755–794.
- [56] GOBBE, C., AND QUINTARD, M. Macroscopic description of unsteady heat transfer in heterogeneous media. *High Temperatures-High Pressures 26* (1994), 535–548.
- [57] GOBBE, C., RAMOND, L., AND QUINTARD, M. Macroscopic description of unsteady heat transfer in heterogeneous media with consideration of interfacial thermal barriers. *High Temperatures-High Pressures 30* (1998), 365–372.
- [58] GOUTTEBROZE, S. *Modélisation 3D par éléments finis de la macroségrégation lors de la solidification d’alliages binaires*. PhD thesis, ENSMP Sophia Antipolis, 2005.
- [59] GOYEAU, B., BENIHADDADENE, T., GOBIN, D., AND QUINTARD, M. Averaged momentum equation for flow through a non homogeneous porous structure. *Transport in Porous Media 28* (1997), 19–50.
- [60] GOYEAU, B., BENIHADDADENE, T., GOBIN, D., AND QUINTARD, M. Numerical calculation of the permeability in a dendritic mushy zone. *Metallurgical and Materials Transactions 30 B* (1999), 613–622.
- [61] GOYEAU, B., BOUSQUET-MELOU, P., GOBIN, D., QUINTARD, M., AND FICHOT, F. Macroscopic modeling of columnar dendritic solidification. *Computational and Applied Mathematics 23(1-2)* (2004), 1–20.
- [62] GRANASY, L. Diffuse interface model of crystal nucleation. *Journal of Non-Crystalline Solids 219* (1997), 49–56.
- [63] GRANASY, L., BORZSONYI, T., AND PUSZTAI, T. Crystal nucleation and growth in binary phase-field theory. *Journal of Crystal Growth 237-239* (2002), 1813–1817.

- [64] GRANT, S. B., KIM, J. H., AND POOR, C. Kinetic theories for the coagulation and sedimentation of particles. *Journal of Colloid and Interface Science* 238 (2001), 238–250.
- [65] GRAY, W. G. A derivation of the equations for multi-phase transport. *Chemical Engineering Science* 30 (1975), 229–233.
- [66] GRONG, O., DAHLE, A. K., ONSOEN, M. I., AND ARNBERG, L. Analytical modelling of equiaxed solidification. *Acta Mater.* 46 (1998), 5045–5052.
- [67] GU, J., AND BECKERMANN, C. Simulation of convection and macrosegregation in a large steel ingot. *Metallurgical and Materials Transactions* 30A (1999), 1357–1366.
- [68] GU, J. P., BECKERMANN, C., AND GIAMEI, A. F. Motion and remelting of dendrite fragments during directional solidification of a nickel-base superalloy. *Metallurgical and Materials Transactions* 28 A (1997), 1533–1542.
- [69] HEBDITCH, D. J., AND HUNT, J. D. Observations of ingot macrosegregation on model systems. *Metallurgical Transactions* 5 (1974), 1557–1564.
- [70] HORNUNG, U. *Homogenization and porous media*. New York : Springer, 1997.
- [71] HUANG, S. C., AND GLICKSMAN, M. E. Fundamentals of dendritic solidification : 1. steady state tip growth. *Acta Metall.* 29 (1981), 701.
- [72] HUANPENG, L., WENTIE, L., JIANXIANG, Z., XIUJIAN, J. D. Z., AND HUILIN, L. Numerical study of gas-solid flow in a precalciner using kinetic theory of granular flow. *Chemical Engineering Journal* 102 (2004), 151–160.
- [73] HUILIN, L., GIDASPOW, D., BOUILLARD, J., AND WENTIE, L. Hydrodynamic simulation of gas-solid flow in a riser using kinetic theory of granular flow. *Chemical Engineering Journal* 95 (2003), 1–13.
- [74] HUILIN, L., YURONG, H., AND GIDASPOW, D. Hydrodynamic modelling of binary mixture in gas bubbling fluidized bed using kinetic theory of granular flow. *Chemical Engineering Science* 58 (2003), 1197–1205.
- [75] HUPPERT, H. E. The fluid mechanics of solidification. *J. Fluid Mech.* 212 (1990), 209–240.
- [76] ISHIHARA, K. N., MAEDA, M., AND SHINGU, P. H. The nucleation of metastable phases from undercooled liquids. *Acta Metall.* 33 N° 12 (1985), 2113–2117.
- [77] ISHII, M., AND ZUBER, N. Drag coefficient, and relative velocity in bubbly, droplet and particulate flows. *AIChE J.* 25 (1979), 843–855.
- [78] ISHII, R., UMEDA, Y., AND YUHI, M. Numerical analysis of gas-particle two-phase flows. *J. Fluid Mech.* 203 (1989), 475–515.
- [79] IZUMI, S., HARA, S., KUMAGAI, T., AND SAKAI, S. Molecular dynamics study of homogeneous crystal nucleation in amorphous silicon. *Journal of Crystal Growth* 274 (2005), 47–54.
- [80] JENKINS, J. T., AND SAVAGE, S. B. A theory for the rapid flow of identical, smooth, nearly elastic spherical particles. *J. Fluid Mech.* 130 (1983), 187–202.
- [81] JEONG, J., GOLDENFELD, N., AND DANTZIG, J. Phase field model for three-dimensional dendritic growth with fluid flow. *Physical Review E* 64 (2001), 1–13.

- [82] KARMA, A., AND RAPPEL, W. J. Phase field method for computationally efficient modeling of solidification with arbitrary interface kinetics. *Physical Review E* 53 (1996), R3017–R3020.
- [83] KHARKOV, E. I., LYSOV, V. I., AND FEDEROV, V. E. The theory of homogeneous crystallisation of binary and multicomponent systems. *Materials Science and Engineering B45* (1997), 36–44.
- [84] KRANE, M. J., AND INCROPERA, F. P. Experimental validation of continuum mixture model for binary alloy solidification. *Heat Transfer* 119 (1997), 783–791.
- [85] KRANE, M. J. M., AND INCROPERA, F. P. A scaling analysis of the unidirectional solidification of a binary alloy. *Int. J. Heat Mass Transfer* 39 (1996), 3567–3579.
- [86] KURZ, W., AND FISHER, D. J. *Fundamentals of solidification*. Trans Tech Publications, 1992.
- [87] LAN, C. W., HSU, C. M., AND LIU, C. C. Efficient adaptive phase-field simulation of dendritic growth in a forced flow at low supercooling. *Proceedings of IMECE2002 ASME International Mechanical Engineering Congress & Exposition (New Orleans)*. (2002).
- [88] LASCAUX, P., AND THEODOR, R. *Analyse matricielle appliquée à l'art de l'ingénieur : 1) Methodes directes*. Masson, 1994.
- [89] LASCAUX, P., AND THEODOR, R. *Analyse matricielle appliquée à l'art de l'ingénieur : 2) Methodes itératives*. Masson, 1994.
- [90] LATSA, M., ASSIMACOPOULOS, D., STAMOU, A., AND MARKATOS, N. Two-phase modeling of batch sedimentation. *Applied Mathematical Modelling* 23 issue 12 (1999), 881–897.
- [91] LAUX, H., AND YTREHUS, T. Computer simulation and experiments on two-phase flow in an inclined sedimentation vessel. *Powder Technology* 94 (1997), 35–49.
- [92] LEHR, F., AND MEWES, D. A transport equation for the interfacial area density applied to bubble columns. *Chemical Engineering Science* 56 (2001), 1159–1166.
- [93] LESIEUR, M. *La turbulence*. Presses Universitaires de Grenoble, 1994.
- [94] LEYSSALE, J. M., DELHOMMELLE, J., AND MILLOT, C. A molecular dynamics study of homogeneous crystal nucleation in liquid nitrogen. *Chemical Physics Letters* 375 (2003), 612–618.
- [95] LIBMANN, J. *Éléments de Sûreté Nucléaire*. EDP Sciences, 2000.
- [96] LIMTRAKUL, S., CHALERMWATTANATAI, A., UNGGURAWIROTE, K., TSUJI, Y., KAWAGUCHI, T., AND TANTHAPANICHAKOON, W. Discrete particle simulation of solids motion in a gas-solid fluidized bed. *Chemical Engineering Science* 58 (2003), 915–921.
- [97] LIU, W. *Modélisation par éléments finis des phénomènes thermomécaniques et de macroségrégation dans les procédés de solidification*. PhD thesis, CEMEF Mines de Paris (ENSMP), 2005.
- [98] LOGINOVA, I., AMBERG, G., AND AGREN, J. Phase-field simulations of non-isothermal binary alloy solidification. *Acta Mater.* 49 (2001), 573–581.

- [99] LUDING, S. Shear flow modeling of cohesive and frictional fine powder. *Powder Technology* 158 (2005), 45–50.
- [100] LUDWIG, A., AND WU, M. Modelling of globular equiaxed solidification with a two-phase approach. *Metallurgical and Materials Transactions* 33 A (2002), 3673–3683.
- [101] MARBLE, F. E., AND BROADWELL, J. E. The coherent flame model for turbulent chemical reactions. *Project Squid Report TRW-9-PU* (1977), TRW, El secundo.
- [102] MARLE, C. Ecoulements monophasiques en milieu poreux. *Revue de l'Institut Français du Pétrole XXII(10)* (1967), 1471–1509.
- [103] MARTORANO, M. A., BECKERMANN, C., AND GANDIN, C. A. A solutal interaction mechanism for the columnar-to-equiaxed transition in alloy solidification. *Metallurgical and Materials Transactions* 34 A (2003), 1657–1674.
- [104] MASSON, C., AND BALIGA, B. R. Simulation of gas-solid particule flows over a wide range of concentration. *Int. J. for Numerical Methods in Fluids* 28 (1998), 1441–1479.
- [105] MILLIES, M., AND MEWES, D. Interfacial area density in bubbly flow. *Chemical Engineering and Processing* 38 issue 4-6 (1999), 307–319.
- [106] NECULAE, A., GOYEAU, B., QUINTARD, M., AND GOBIN, D. Passive dispersion in dendritic structures. *Materials Science and Engineering A323* (2002), 367–376.
- [107] NI, J., AND BECKERMANN, C. A volume-averaged two-phase model for transport phenomena during solidification. *Metallurgical Transactions* 22 B (1991), 349–361.
- [108] NI, J., AND BECKERMANN, C. Modeling of globulitic alloy solidification with convection. *Materials Processing and Manufacturing Science* 2 (1993), 217–231.
- [109] NI, J., AND INCROPERA, F. P. Extension of the continuum model for transport phenomena occurring during metal alloy solidification. 1. the conservation equations. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 (1995), 1–27.
- [110] NI, J., AND INCROPERA, F. P. Extension of the continuum model for transport phenomena occurring during metal alloy solidification. 2. microscopic considerations. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 (1995), 1285–1296.
- [111] NI, J. R., AND XIA, J. X. Particle fluctuation intensities in sediment-laden flows. *Mechanics Research Communications* 30 issue 2 (2003), 25–32.
- [112] OCHOA-TAPIA, J. A., AND WHITAKER, S. Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid 1) theoretical development. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 (1995), 2635–2646.
- [113] OCHOA-TAPIA, J. A., AND WHITAKER, S. Momentum transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid 2) comparison with experiment. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 (1995), 2647–2655.
- [114] OCHOA-TAPIA, J. A., AND WHITAKER, S. Heat transfer at the boundary between a porous medium and a homogeneous fluid. *Int. J. Heat Mass Transfer* 46 (1997), 2691–2707.
- [115] OGER, L., AND SAVAGE, S. B. Smoothed particle hydrodynamics for cohesive grains. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* 180 (1999), 169–183.

- [116] PATANKAR. *Numerical heat transfert and fluid flow*. hpc, 1980.
- [117] PATANKAR, N. A., AND JOSEPH, D. D. Lagrangian numerical simulation of particulate flows. *Int. J. Multiphase Flow* 27 issue 10 (2001), 1685–1706.
- [118] PATANKAR, N. A., AND JOSEPH, D. D. Modeling and numerical simulation of particulate flows by the eulerian-lagrangian approach. *Int. J. Multiphase Flow* 27 (2001), 1659–1684.
- [119] PIAR, B. A component framework for scientific computing. *Journées de travail sur la modélisation de problèmes à interfaces avec couplage. PPF Mécanique Numérique Hautes Performances, ESM2* (2002).
- [120] PIAR, B., CHAILAN, L., AND VOLA, D. Scientific software architecture designed to survive change. *Trends in Physical and Numerical Modeling of Multiphase Flows. Cargèse* (2003).
- [121] POIRIER, D. R. Permeability for flow of interdendritic liquid in columnar-dendritic alloys. *Metallurgical Transactions* 18 B (1987), 245–255.
- [122] POPE, S. B. *Turbulent flows*. Cambridge University Press, 2000.
- [123] PRESCOTT, P. J., AND INCROPERA, F. P. Numerical simulation of a solidifying Pb-Sn alloy : The effects of cooling rate on thermosolutal convection and macrosegregation. *Metallurgical Transactions* 22 B (1991), 529–540.
- [124] PRESCOTT, P. J., AND INCROPERA, F. P. Convective transport phenomena and macrosegregation during solidification of a binary metal alloy : 1) numerical predictions. *Journal of Heat Transfer* 116 (1994), 735–741.
- [125] PRESCOTT, P. J., INCROPERA, F. P., AND GASKELL, D. R. The effects of undercooling, recalescence and solid transport on the solidification of binary metal alloys. *Transport Phenomena in Materials Processing and Manufacturing* 196 (1992), 31–39.
- [126] PRESCOTT, P. J., INCROPERA, F. P., AND GASKELL, D. R. Convective transport phenomena and macrosegregation during solidification of a binary metal alloy : 2) experiments and comparisons with numerical predictions. *Journal of Heat Transfer* 116 (1994), 742–749.
- [127] QUILLET, G. *Influence de la convection, naturelle ou forcée, sur l'apparition des mésoségrégation lors de la solidification d'alliages métalliques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2003.
- [128] QUINTARD, M., KAVIANY, M., AND WHITAKER, S. Two-medium treatment of heat transfer in porous media : numerical results for effective properties. *Advances in Water Resources* 20 (1997), 77–94.
- [129] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Two-phase flow in heterogeneous porous media : The method of large-scale averaging. *Transport in Porous Media* 3 (1988), 357–413.
- [130] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. One- and two-equation models for transient diffusion processes in two-phase systems. *Advances in Heat Transfer* 23 (1993), 369–464.
- [131] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Convection, dispersion, and interfacial transport of contaminants : Homogeneous porous media. *Advances in Water Resources* 17 (1994), 221–239.

- [132] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Transport in ordered and disordered porous media 1 : The cellular average and the use of weighting functions. *Transport in Porous Media* 14 (1994), 179–206.
- [133] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Transport in ordered and disordered porous media 2 : Generalized volume averaging. *Transport in Porous Media* 14 (1994), 179–206.
- [134] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Transport in ordered and disordered porous media 3 : Closure and comparison between theory and experiment. *Transport in Porous Media* 15 (1994), 31–49.
- [135] QUINTARD, M., AND WHITAKER, S. Local thermal equilibrium for transient heat conduction : Theory and comparison with numerical experiments. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 (1995), 2779–2796.
- [136] RAMIREZ, J. C., AND BECKERMANN, C. Examination of binary alloy free dendritic growth theories with a phase-field model. *Acta Materialia* 53 (2005), 1721–1736.
- [137] RAMIREZ, J. C., BECKERMANN, C., KARMA, A., AND DIEPERS, H. J. Phase-field modelling of binary alloy solidification with coupled heat and solute diffusion. *Physical Review E* 69 (2004), 1–15.
- [138] RAPPAZ, M. Modelling of microstructure formation in solidification processes. *International Materials Reviews* 34 (1989), 93–123.
- [139] RAPPAZ, M., AND THEVOZ, P. Solute diffusion model for equiaxed dendritic growth. *Acta Metall.* 35 N° 7 (1987), 1487–1497.
- [140] RAPPAZ, M., AND THEVOZ, P. Solute diffusion model for equiaxed dendritic growth : Analytical solution. *Acta Metall.* 35 N° 12 (1987), 2929–2933.
- [141] RAPPAZ, M., AND VOLLER, V. Modelling of micro-macroseggregation in solidification processes. *Metallurgical Transactions* 21 A (1990), 749–753.
- [142] RICHARDSON, J. F., AND ZAKI, W. N. Sedimentation and fluidization : Part i. *Trans. Inst. Chem. Engrs.* 32 (1954), 35–53.
- [143] RIDDER, S. D., KOU, S., AND MEHRABIAN, R. Effect of fluid flow on macrosegregation in axi-symmetric ingots. *Metallurgical Transactions* 12 B (1981), 435–447.
- [144] ROUX, P., GOYEAU, B., GOBIN, D., F. FICHOT, AND QUINTARD, M. Chemical non-equilibrium modelling of columnar solidification. *Int. J. Heat Mass Transfer* (2006), to appear.
- [145] SAAD, Y. *Iterative Methods for Sparse Linear Systems*. PWS, 2000.
- [146] SAVAGE, S. B. Analyses of slow high-concentration flows of granular materials. *J. Fluid Mech.* 377 (1998), 1–26.
- [147] SCHNEIDER, M. C., AND BECKERMANN, C. Formation of macrosegregation by multicomponent thermosolutal convection during the solidification of steel. *Metallurgical and Materials Transactions* 26 A (1995), 2373–2388.
- [148] SCHNEIDER, M. C., AND BECKERMANN, C. A numerical study of the combined effects of microsegregation, mushy zone permeability and flow, caused by volume contraction and thermosolutal convection, on macrosegregation and eutectic formation in binary alloy solidification. *Int. J. Heat Mass Transfer* 38 N° 18 (1995), 3455–3473.

- [149] SCHNEIDER, M. C., GU, J. P., BECKERMANN, C., BOETTINGER, W. J., AND KATTNER, U. R. Modeling of micro- and macrosegregation and freckle formation in single-crystal nickel-base superalloy directional solidification. *Metallurgical and Materials transactions 28 A* (1997), 1517–1531.
- [150] SEILER, J. M., AND FROMENT, K. Material effects on multiphase phenomena in late phases of severe accidents of nuclear reactors. *Multiphase Science and Technology 12, 2* (2000), 117–257.
- [151] SEKERKA, R. F. Morphology : from sharp interface to phase field models. *Journal of Crystal Growth 264* (2004), 530–540.
- [152] SEMENOV, V., STRIZHOV, V., AND KRYLOV, S. Results of the post-test analysis of the non-eutectic salt mixture and proposal for the next test. *Russian Research Centre, KURCHATOV INSTITUTE, OECD RASPLAV Project RP-TR-38* (1999), 1–18.
- [153] SNIDER, D. M., O’ROURKE, P. J., AND ANDREWS, M. J. Sediment flow in inclined vessels calculated using a multiphase particule-in-cell model for dense particule flows. *Int. J. Multiphase Flow 24* (1998), 1359–1382.
- [154] SOMBOONSUK, K., MASON, J. T., AND TRIVEDI, R. K. Interdendritic spacing. 1 : Experimental studies. *Metallurgical Transactions 15 A* (1984), 967–975.
- [155] SOO, S. L. *Fluid Dynamics of Multiphase Systems*. Blaisdell Publishing Company, 1967.
- [156] SPALDING, D. B. Numerical computation of multi-phase fluid flow and heat transfer. *Recent Advances in Numerical Methods in Fluids 1* (1980), 139–168.
- [157] STEFANESCU, D. M., UPADHYA, G., AND BANDYOPADHYAY, D. Heat transfer-solidification kinetics modeling of solidification of castings. *Metallurgical Transactions 21 A* (1990), 997–1005.
- [158] STEINBACH, I., PEZZOLA, F., NESTLER, B., SEEBELBERG, M., PRIELER, R., SCHMITZ, G. J., AND REZENDE, J. L. L. A phase field concept for multiphase systems. *Physica D 94* (1996), 135–147.
- [159] STRIZHOV, V. Results of salt test series. *12th Rasplav PRG Meeting* (April 18-19 2000).
- [160] SURENKOV, A. I., ABALIN, S. S., AND GNIDOY, I. P. Results of salt experiments performed during phase 1 of rasplav project. *Russian Research Center "Kurchatov Institute"* (1998).
- [161] SURENKOV, A. I., ABALIN, S. S., GNIDOY, I. P., BARKOVSKY, B. V., KOMISSAROVA, N. V., AND YU CHUVILIN, D. The data base for the seventh (s2-1) series of salt experiments under the rasplav project. *No reference, Available on Rasplav web site* (1998).
- [162] SZEKELY, J., AND JASSAL, A. S. An experimental and analytical study of the solidification of a binary dendritic system. *Metallurgical Transactions 9 B* (1978), 389–398.
- [163] TARDOS, G. I. A fluid mechanistic approach to slow, frictional flow of powders. *Powder Technology 92* (1997), 61–74.

- [164] THEVOZ, P., DESBIOLLES, J. L., AND RAPPAZ, M. Modelling of equiaxed microstructure formation in casting. *Metallurgical Transactions 20 A* (1989), 311–322.
- [165] THOMPSON, C. V., AND SPAEPEN, F. Homogeneous crystal nucleation in binary metallic melts. *Acta Metall.* 31 N°12 (1983), 2021–2027.
- [166] TORQUATO, S. *Random Heterogeneous Materials Microstructure and Macroscopic Properties*. Springer-Verlag, 2002.
- [167] UNVERDI, S. O., AND TRYGGVASON, G. A front-tracking method for viscous incompressible, multi-fluid flows. *Journal of Computational Physics* 100 (1992), 25–37.
- [168] VOLLER, V. R., AND PRAKASH, C. A fixed grid numerical modelling methodology for convection-diffusion mushy region phase-change problems. *Int. J. Heat Mass Transfer* 30 (1987), 1709–1719.
- [169] VOLLER, V. R., AND PRAKASH, C. The modelling of heat, mass and solute transport in solidification systems. *Int. J. Heat Mass Transfer* 32 (1989), 1719–1731.
- [170] VREEMAN, C. J., AND INCROPERA, F. P. The effect of free-floating dendrites and convection on macrosegregation in direct chill cast aluminium alloys. part2 : Predictions for Al – Cu and Al – Mg alloys. *Int J. Heat Mass Transfer* 43 (2000), 687–704.
- [171] VREEMAN, C. J., KRANE, M. J. M., AND INCROPERA, F. P. The effect of free-floating dendrites and convection on macrosegregation in direct chill cast aluminium alloys. part1 : Model developpement. *Int J. Heat Mass Transfer* 43 (2000), 677–686.
- [172] WANG, C. Y., AHUJA, S., BECKERMANN, C., AND DE GROH, H. C. Multi-particule interfacial drag in equiaxed solidification. *Met. Transactions B* 26 B (1995), 111–119.
- [173] WANG, C. Y., AND BECKERMANN, C. A multiphase solute diffusion model for dendritic alloy solidification. *Metallurgical Transactions 24 A* (1993), 2787–2802.
- [174] WANG, C. Y., AND BECKERMANN, C. Prediction of columnar to equiaxed transition during diffusion-controlled dendritic alloy solidification. *Metallurgical and Materials Transactions 25 A* (1994), 1081–1093.
- [175] WANG, C. Y., AND BECKERMANN, C. Equiaxed dendritic solidification with convection : Part 1. multiscale/multiphase modelling. *Metallurgical and Materials Transactions 27 A* (1996), 2754–2764.
- [176] WANG, C. Y., AND BECKERMANN, C. Equiaxed dendritic solidification with convection : Part 2. numerical simulations for an Al-(4 wt %) Cu alloy. *Metallurgical and Materials Transactions 27 A* (1996), 2765–2783.
- [177] WARREN, J. A., AND BOETTINGER, W. J. Prediction of dendritic growth and microsegregation patterns in a binary alloy using the phase-field method. *Acta metall. mater.* 43 (1995), 689–703.
- [178] WEINBERG, M. C., POISL, W. H., AND GRANASY, L. Crystal growth and classical nucleation theory. *C. R. Chimie* 5 (2002), 765–771.
- [179] WEN, C. Y., AND YU, Y. H. Mechanics of fluidization. *Chemical Engineering Progress Symposium Series* 62 (1966), 100–113.

- [180] WHITAKER, S. Flow in porous media 1 : A theoretical derivation of darcy's law. *Transport in Porous Media 1* (1986), 3–25.
- [181] WHITAKER, S. Improved constraints for the principle of local thermal equilibrium. *American Chemical Society 30* (1991), 983–997.
- [182] WHITAKER, S. The forchheimer equation : A theoretical development. *Transport in Porous Media 25* (1996), 27–61.
- [183] WHITAKER, S. *The Method of Volume Averaging*. Kluwer Academic Publishers, 1999.
- [184] WORSTER, M. G. Natural convection in a mushy layer. *J. Fluid Mech. 224* (1991), 335–359.
- [185] WRIGHT, R. W. *Core melt progression : Status of current understanding and principal uncertainties*. Rogers, J.T., 1996.
- [186] WU, M., LUDWIG, A., BUHRIG-POLACZEK, A., FEHLBIER, M., AND SAHM, P. R. Influence of convection and grain movement on globular equiaxed solidification. *Int J. Heat Mass Transfer 46* (2003), 2819–2832.
- [187] ZHAO, D. P., JING, T., AND LIU, B. C. Computer simulation of 3-dimensional dendrite growth using modified phase field method. *ISIJ International 43* (2003), 1095–1099.

Résumé :

Cette thèse a pour thème la modélisation de la solidification dendritique dans les mélanges binaires. La modélisation à grande échelle est faite par prise de moyenne volumique des équations de conservation microscopiques. L'intérêt de la méthode est d'obtenir rigoureusement les équations de conservation vérifiées par les champs moyens et de poser des problèmes de fermetures portant sur les fluctuations des champs. Ces dernières équations peuvent ensuite être résolues sur des cellules périodiques représentatives de structures dendritiques et fournir une évaluation précise des coefficients de transfert macroscopiques (coefficients de traînée, coefficients d'échanges, tenseurs de diffusion-dispersion...). Un modèle de croissance de zones dendritiques colonnaires avait déjà été développé et ce travail a permis de l'étendre aux situations où la phase solide est également mobile. Les écoulements diphasiques sont modélisés par une approche eulérienne-eulérienne dont la particularité est de pouvoir tenir compte de l'agitation cinétique des cristaux et de ses effets sur les transferts. Le couplage entre les deux modèles pour prévoir la transition colonnaire-équiaxe est proposé grâce à une modification originale du modèle colonnaire pour calculer la surfusion : un champ de densité d'aire interfaciale solide-liquide est introduit et intervient dans les échanges entre le solide et le liquide. Enfin, pour appréhender les phénomènes locaux, un modèle de simulation numérique directe de croissance de dendrites, avec une méthode à interface diffuse est proposé.

Mots clés : Solidification, Mélanges binaires, Transition colonnaire-équiaxe, Ecoulements diphasiques, Prise de moyenne volumique, Modèle macroscopique, Simulation numérique directe, Méthode à interface diffuse, Transferts de chaleur et de masse.

Abstract :

This work deals with the modelling of dendritic solidification in binary mixtures. Large scale phenomena are represented by volume averaging of the local conservation equations. This method allows to rigorously derive the partial differential equations of averaged fields and the closure problems associated to the deviations. Such problems can be resolved numerically on periodic cells, representative of dendritic structures, in order to give a precise evaluation of macroscopic transfer coefficients (Drag coefficients, exchange coefficients, diffusion-dispersion tensors...). The method had already been applied for a model of columnar dendritic mushy zone and it is extended to the case of equiaxed dendritic solidification, where solid grains can move. The two-phase flow is modelled with an Eulerian-Eulerian approach and the novelty is to account for the dispersion of solid velocity through the kinetic agitation of the particles. A coupling of the two models is proposed thanks to an original adaptation of the columnar model, allowing for undercooling calculation : a solid-liquid interfacial area density is introduced and calculated. At last, direct numerical simulations of crystal growth are proposed with a diffuse interface method for a representation of local phenomena.

Key words : Solidification, Binary Mixtures, Columnar to equiaxed transition, Two-phase flows, Volume averaging, Macroscopic model, Direct Numerical simulations, Diffuse interface methods, Heat and mass transfer.